Eigenschaften und Dynamik verschiedener Transferprozesse in Arsenid- und Nitrid-Quantenpunkten

vorgelegt von
Diplom-Physiker
Stefan Werner
aus
Templin

Von der Fakultät II - Mathematik und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades
Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. Michael Lehmann
Gutachter: Prof. Dr. Axel Hoffmann
Gutachter: Prof. Dr. Janina Maultzsch
Gutachter: Prof. Dr. Alejandro Goñi

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 10. Februar 2012

Berlin 2012

D 83

Eidesstattliche Versicherung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorgelegte Dissertationsschrift "Eigenschaften und Dynamik verschiedener Transferprozesse in Arsenid- und Nitrid-Quantenpunkten" selbstständig verfasst habe.

Des Weiteren versichere ich an Eides statt, dass ich die benutzten Hilfsmittel und Quellen nach bestem Wissen und Gewissen und unter Berücksichtigung wissenschaftlich korrektem Arbeitens markiert und genannt habe.

Sofern in meiner Arbeit Ergebnisse genannt werden, welche in Zusammenarbeit mit anderen Wissenschaftlern erlangt wurden, wurden diese namentlich in der Arbeit erwähnt. Soweit es mir bekannt ist, ist es durch Dritte nicht geplant, Ergebnisse der vorgelegten Arbeit teilweise oder vollständig im Rahmen einer anderen Dissertation zu verwenden. Auch wurden, soweit nicht anders gekennzeichnet, keine in der vorgelegten Arbeit dargestellten Ergebnisse im Rahmen einer anderen Dissertationsschrift verwendet.

Stefan Werner
Berlin, Februar 2012

Erklärung

Ich erkläre hiermit, dass ich keine Promotionsabsicht an einer anderen Universität oder Fakultät beantragt habe.

Teile dieser Arbeit wurden bereits veröffentlicht als:

1 S. Werner, P. Zimmer, A. Strittmatter und A. Hoffmann: *Phonon Interaction in InGaAs/GaAs Quantum Dots*, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 1053, EE03-03 (2008)

2 J. Kabuss, S. Werner, A. Hoffmann, P. Hildebrandt, A. Knorr und M. Richter: *Theory of Time-Resolved Raman Scattering and Fluorescence Emission from Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. B 81, 075314 (2010)

3 S. Werner, J.S. Reparaz, M.R. Wagner, P. Zimmer, N.N. Ledentsov, J. Kabuss, M.R. Dachner, M. Richter, A. Knorr, C. Thomsen und A. Hoffmann: *Decay Dynamics of Excitonic Polarons in InAs/GaAs Quantum Dots*, Journ. of Appl. Phys. 110, 074303 (2011)

Weitere Veröffentlichungen, die nicht in dieser Arbeit verwendet wurden:

1 E. Malguth, A. Hoffmann, S. Werner, M.H. Kane und I.T. Ferguson: *Mn- and Fe-Doped GaN for Spintronic Applications*, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 1040, Q06-09 (2008)

2 V. Rinnbauer, H.J. Egelhaaf, K. Hingerl, P. Zimmer, S. Werner, T. Warming, A. Hoffmann, M. Kovalenko, W. Heiss, G. Hesser und F. Schaffler: *Energy Transfer in Close-packed PbS Nanocrystal Films*, Phys. Rev. B 77, 085322 (2008)

3 C. Erk, S. Martin Caba, H. Lange, S. Werner, C. Thomsen, M. Steinhart, A. Berger und S. Schlecht: *Thin-walled* Er^{3+}*:*Y_2O_3 *Nanotubes Showing Up-converted Fluorescence*, Phys. Chem. Chem. Phys. 11, 3623-3627 (2009)

Stefan Werner
Berlin, Februar 2012

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **7**

2 Experimentelle Methoden **13**
2.0.1 Erzeugung von ps-Laserpulsen . . . 14
2.0.2 Optisch-parametrischer Oszillator . . . 14
2.0.3 Frequenzverdopplung . . . 15
2.1 Photolumineszenzspektroskopie (PL) . . . 16
2.2 Photolumineszenzanregungsspektroskopie (PLE) . . . 16
2.3 Mikrophotoluminezenzspektroskopie (μPL) . . . 17
2.3.1 Herausforderungen der Mikrophotolumineszenz an einzelnen QPs . 17
2.4 Zeitaufgelöste Photolumineszenzspektroskopie (TRPL) . . . 19

3 Dynamische Eigenschaften kohärenter und inkohärenter vibronischer Prozesse in InAs-Quantenpunkten **21**
3.1 Der Stand der Dinge und eigene Vorarbeiten . . . 22
3.1.1 Phononenwechselwirkung in Quantenpunkten in der Literatur . . . 22
3.1.2 Eigene Vorarbeiten an In(Ga)As/GaAs-Quantenpunkten . . . 23
3.1.3 Theoretische Berechnungen zur Dynamik von Phononenprozessen . 32
3.2 Die InAs/GaAs-Quantenpunktprobe . . . 38
3.3 Zeitintegrierte PL unter nicht-resonanter und resonanter Anregung . . . 39
3.3.1 Einfluß der Anregungswellenlänge auf die Lumineszenz . . . 41
3.3.2 Temperaturabhängigkeit . . . 44
3.4 Dynamische Eigenschaften der InAs-Quantenpunkte . . . 48
3.4.1 Anregungsabhängigkeit der LO-Moden-Dynamik . . . 51
3.4.2 Temperaturabhängigkeit der LO-Moden-Dynamik . . . 53
3.5 Zusammenfassung des Kapitels . . . 56

4 InAs-Submonolagen-Quantenpunkte **57**
4.1 Die verschiedenen Proben . . . 58
4.1.1 Einfluss der Spacerdicke . . . 59
4.1.2 Einfluss unterschiedlicher Wachstumsunterbrechungen . . . 59
4.2 Anregungsphotolumineszenzspektroskopie . . . 60
4.2.1 Temperaturabhängigkeit . . . 63
4.2.2 Wachstumseinfluss auf die Anregungskanäle . . . 66
4.3 Dynamik der Submonolagen-Quantenpunkte . . . 67
4.3.1 Die SK-Quantenpunktdynamik . . . 68
4.3.2 InAs-Submonolagen-Quantenpunkte . . . 69
4.3.3 Einfluss der Anregungsbedingungen auf die Dynamik . . . 71
4.4 Polarisationseigenschaften . . . 75
4.4.1 Motivation: CdSe-Submonolagen-Quantenpunkte . . . 75
4.4.2 InAs-Submonolagen-Quantenpunkte . . . 77

4.5 Zusammenfassung des Kapitels 83

5 Einzelne Quantenpunkte - Mikrophotolumineszenzmessungen an InGaN-Quantenpunkten 85

5.1 Die Probe 85
5.2 Spektrale Diffusion 88
5.2.1 Kathodolumineszenz 88
5.2.2 Photolumineszenz 89
5.3 Leistungsabhängigkeit einzelner QPs 91
5.4 Polarisationsabhängigkeit einzelner QPs 92
5.4.1 Kathodolumineszenz 92
5.4.2 Photolumineszenz 93
5.5 Lebenszeiten einzelner Quantenpunkte 96
5.5.1 Numerisches Modell: Vorhersagen 96
5.5.2 Erste experimentelle Ergebnisse 96
5.6 Zusammenfassung des Kapitels 100

6 Zusammenfassung 101

7 Danksagung 105

8 Literaturverzeichnis 106

Abbildungsverzeichnis

1 Schema: Streuprozesse 21
2 PL-Spektren von In(Ga)As-Quantenpunkten: Ramaneffekt 24
3 Raman-Verschiebung 25
4 Temperaturabhängigkeit der Raman-Moden 26
5 Transiente der LO-Phononenmode 26
6 Transiente der LO-Phononenmode: ohne Lumineszenz 27
7 PL von In(Ga)As-Quantenpunkten: Anregungsabhängigkeit 28
8 Lumineszenzverschiebung 29
9 Anregungsabhängigkeit der 1LO- bzw. 2LO-Lumineszenzen 30
10 PL-Spektren bei steigenden Temperaturen 31
11 Berechnung: verwendeter Messaufbau 34
12 Berechnete Emissionspektren eines Quantenpunktes 36
13 Zeitentwicklung der Emissionen 36
14 Zeitliche Entwicklung von Leitungsbanddichte und Anregungspuls 37
15 PLE der InAs-Quantenpunkte 38
16 PL-Spektren: nicht-resonante und resonante Anregung 39
17 PL-Spektren: Anregungsabhängigkeit 42
18 Emissionsverschiebung 43
19 Anregungsabhängigkeit der 1LO- bzw. 2LO-Mode 44
20 PL-Spektren: Temperaturabhängigkeit 45
21 Temperatureinfluss auf das Intensitätsverhalten 45
22 Temperaturbedingte Verschiebung 46
23 PL-Spektren: Temperaturabhängigkeit, andere Anregung 47
24 PL und TRPL von Grundzustand und 1LO-Mode 48
25 Transiente der LO-Mode 50
26 Transientenvergleich: Messung mit theoretischer Berechnung 50
27 Transienten der LO-Phononenmode für verschiedene Anregungsenergien . . 51
28 Anregungsabhängigkeit der Signalanteile der 1LO-Mose 52
29 Temperaturabhängigkeit der LO-Moden-Dynamik 53
30 PL-Spektren der verschiedenen SML-Proben 60
31 PL und PLE der Probe ohne Wachstumsunterbrechungen 61
32 PLE-Spektren der 5 nm-Spacer-Probe für verschiedene Detektionsenergien 62
33 PLE der Probe mit 120 s SK-Wachstumsunterbrechung 63
34 Verschiebung der phononischen Linie in den PLE-Spektren 63
35 PL-Spektren: Temperaturabhängibkeit 64
36 PL und PLE: SK- und SML-Lumineszenz 65
37 Einfluss der Spacerdicke auf Anregungskanäle 66
38 PLE: Vergleich der verschiedenen SML-Proben 67
39 Temperatureinfluss auf Dynamik der SK-Lumineszenz 69
40 PL und Lebenszeiten: SML-Probe mit 120 s SK-Wachstumsunterbrechung . 70
41 TRPL der SML-Probe mit 120 s SK-Wachstumsunterbrechung 71

42 TRPL der SML-Luminszenz: Anregungsabhängigkeit 72
43 TRPL: Einfluss der Anregungsleistung 74
44 CdSe-SML: Polarisationeigenschaften 76
45 Polarisationsabhängigkeit eines reinen Quantenfilmes 77
46 PL-Spektren der verschiedenen SML-Proben 78
47 Polarisation: Probe mit 10 s SML-Wachstumsunterbrechung 79
48 TE- bzw. TM-Polarisation der Probe mit 10 s SML-Wachstumsunterbrechung 79
49 Polarisationsabhängigkeit der Probe ohne Wachstumsunterbrechung 80
50 Polarisationsabhängigkeit der Probe mit 120 s SK-Wachstumsunterbrechung 80
51 Polarisationsabhängigkeit der Probe mit 50 s SML-Wachstumsunterbrechung 81
52 Polarisationsabhängigkeit der Probe mit 120 s SK-WU und 50 s SML-WU . 81
53 μPL-Spektrum an ungeeigneter Stelle 86
54 μPL-Spektrum weniger Quantenpunkte 87
55 Spektrale Diffusion: CL-Spektren 88
56 Spektrale Diffusion der QP-Emissionen, Bild 1 90
57 Spektrale Diffusion der QP-Emissionen, Bild 2 90
58 Einfluss der Anregungsleistung 91
59 Polarisationseigenschaften von Emissionslinien vereinzelter Quantenpunkte 94
60 Einzelne Quantenpunkte: Verschiedene Polarisationswinkel 94
61 Transiente A eines einzelnen Quantenpunktes 97
62 Transiente B eines einzelnen Quantenpunktes 97
63 Lebenszeiten in Abhängigkeit von der Emissionsenergie 98

Tabellenverzeichnis

1 Lebenszeiten der 1LO-Mode: Anregungsabhängigkeit 52
2 Lebenszeiten der 1LO-Mode: Temperaturabhängigkeit 54
3 Anregungsabhängigkeit der Lebenszeit der SML-Quantenpunktlumineszenz 73
4 Winkelabhängigkeit: Maximale Intensität 95

1 Einleitung

Die vielseitigen Anwendungsmöglichkeiten von den verschiedenen selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunktsystemen löste ein großes Interesse an den fundamentalen Eigenschaften dieser Halbleiter-Nanostrukturen aus. Die stetig größer werdende Bedeutung in der Anwendung liegt in den Möglichkeiten, ihre Eigenschaften in sehr kleinen und kostengünstigen Bauelementen auszunutzen. So findet man sie unter anderem in Halbleiterlasern und -dioden [Bimberg98, Bimberg99], optischen Verstärkern [Bimberg03] oder als Möglichkeit zur Realisierung der Quantenkryptographie [Michler01] in Form von Einzelphotonenemittern [Bennett05, Lochmann06]. Quantenpunkte haben gewisse Vorteile gegenüber dem Bulk-Material. Zum Beispiel besitzen sie eine größere Temperaturstabilität[Arakawa82], einen niedrigeren Schwellstrom [Asada86] oder verbesserte Rauscheigenschaften[Arakawa86]. Der physikalische Ursprung dieser erwünschenswerten Eigenschaften liegt hauptsächlich in der elektronischen Zustandsdichte der Quantenpunkte. Diese δ-funktionsartige Zustandsdichte wird aufgrund des starken Quantum-Confinement-Potentials hervorgerufen. Die Relaxationsmechanismen angeregter Ladungsträger werden allerdings stark von dieser Diskretisierung beeinflusst.

Wachstumsbedingungen und deren Folgen - wie zum Beispiel Defekteinbau, Quantenpunktgröße, -komposition oder -dichte - oder Anregungskonditionen haben erheblichen Einfluss auf die in Experimenten beobachtbaren verschiedenen Relaxationsmechanismen, Transferprozesse und Wechselwirkungen sowie deren dynamischen Eigenschaften. Für die Entwicklung von optischen Bauelementen benötigt man natürlich Kenntnisse über mögliche Dephasierungs- und Transferprozesse in den als aktives Medium verwendeten Quantenpunkten. Auch die Dynamik von Relaxationmechanismen ist von großem Interesse, da in der Anwendung beispielsweise eine optimale Modulationsfrequenz wünschenswert ist. So stellen sich dann unteranderem auch Fragen nach Kohärenzeffekten oder die Beeinflussbarkeit von Lebenszeiten der angeregten Prozesse. Ziel dieser Arbeit soll die Untersuchung einiger dieser zahlreichen Mechanismen und deren Dynamik sein.

Im Fokus dieser Arbeit stehen drei Themengebiete: Zunächst werden die dynamischen Eigenschaften kohärenter und inkohärenter vibronischer Prozesse in InAs/GaAs-Quantenpunktensembles betrachtet, also der Einfluss von Phononen sowie deren Wechselwirkung mit Exzitonen. Danach wird die Folge einer größeren Quantenpunktdichte untersucht. Dazu wird das Submonolagen-Wachstum betrachtet. Insbesonders soll die Kopplung der Submonolagenquantenpunkte an einer Schicht Stranski-Krastanov-Quantenpunkte im Zentrum dieses Kapitels stehen. Im letzten Teil dieser Arbeit werden dann die optischen Eigenschaften und die Dynamik einzelner Quantenpunkte besprochen. In diesem Fall werden erste experimentelle Resultate an InGaN-Quantenpunkten präsentiert.

Exziton-Phonon-Wechselwirkung

Das erste Themengebiet dieser Arbeit ist die Wechselwirkung von optisch angeregten Exzitonen mit Phononen in Quantenpunkten. Aufgrund ihrer Diskretisierung können die elektronischen Zustände der Quantenpunkte nicht so effizient an Phononen koppeln wie

es beim Bulk-Material der Fall ist. Exziton-Phonon-Wechselwirkungen in selbstorganisierten Halbleiterquantenpunkten sind infolgedessen Gegenstand einer großen Anzahl an Untersuchungen[Bimberg99]. Unter anderem beeinflusst diese Wechselwirkung auch die Relaxation freier Ladungsträger oder die Rekombination und Dephasierungsdynamik eingeschränkter Exzitonen. Wegen der räumlichen Lokalisation ist der Überlapp zwischen der elektronischen und der exzitonischen Wellenfunktion ziemlich groß, was die Elektron-Phonon-Wechselwirkung erheblich verstärkt. Außerdem führt die resultierende starke Kopplung zwischen Phononen mit Elektronen[Hameau99, Hameau02] beziehungsweise Exzitonen [Heitz99, Bissiri00, Verzelen04] zur Bildung eines exzitonischen Polarons[Ferreira02, Heitz00].

Bisher beschäftigten sich Veröffentlichungen zu Wechselwirkungen von Exzitonen mit Phononen größtenteils mit polaren CdSe-Quantenpunkten[Klimov00, Cooney07]. In diesem Materialsystem ist eine Phononenkopplung viel stärker im Vergleich zu beispielsweise den nichtpolaren In(Ga)As-Quantenpunkten, die jedoch wiederum in der Anwendung in Bauelementen erheblich erfolgreicher waren. Deswegen soll sich der erste Teil dieser Arbeit mit der Exziton-Phonon-Wechselwirkung im InAs-System beschäftigen. Bisher wurden größtenteils Phononen-Seitenbanden als phononen-assistierte Exzitonrekombinationen wie der "Heißen Elektronen-Relaxation" zugeschrieben[Heitz99]. Diese Form der Lumineszenz kann dann beobachtet werden, wenn andere Mechanismen mit der Exzitonrelaxation konkurrieren und diese unter gewissen Umständen sogar unterdrücken. In der Literatur finden sich bereits Arbeiten, die eine Exziton-Phonon-Wechselwirkung unter resonanter Anregung diskutieren. Es konnte experimentell gezeigt werden, dass unter resonanter Anregung auch Raman-Streuprozesse möglich sind[Heitz00]. So wurden zum Beispiel transversal-optische (TO), longitudinal-optische (LO) oder auch Interface-Phononenmoden in InAs-Quantenpunkten beobachtet. Weitgehend fehlt jedoch eine ausführliche Untersuchung der dynamischen Eigenschaften von Exziton-Phonon-Wechselwirkungen in Quantenpunkten.

Die unterschiedlichen phononen-gekoppelten Relaxationskanäle, die unter resonanter Anregung beobachtbar sind, werden in der vorliegenden Dissertationsarbeit untersucht. Um dies zu erreichen, wurden Proben ausgesucht, die besonders bezüglich dieser Mechanismen geeignet sind. Dabei sollen folgende Fragen geklärt werden:

- Phononische Wechselwirkungen wie Raman-Streuung oder phononen-assistierte Lumineszenz sollen mithilfe resonanter Photolumineszentspektroskopie in Abhängigkeit von der Anregungsenergie untersucht werden, um Informationen über deren Resonanzeigenschaften zu erhalten. So kann man erfahren, unter welchen Bedingungen bestimmte Kanäle besonders gut oder schlecht anregbar sind. Außerdem müßten phononische Emissionen mit der Anregung mitschieben. Zusätzlich stellt sich die Frage, ob Mehrphononenprozesse möglich oder sogar wahrscheinlicher sind.

- Mittels zeitaufgelöster Photolumineszenz soll geklärt werden, ob Raman-Streuung und der phononen-assistierte Lumineszenzprozess aufgrund ihrer Lebensdauern von

einander unterscheidbar sind. Es ist zu erwarten, dass Raman-Streuung kohärent zum anregenden Laserpuls abläuft, während phononen-assistierte Lumineszenz durch die Kohärenzzeit des resonanten Zustandes, mit dessen Energie angeregt wird oder mit dem sie verknüpft ist, bestimmt wird. Treten beide Prozesse simultan auf, so wird es für diese Arbeit von Bedeutung sein, wie groß die Anteile der verschiedenen Prozesse zum gesamten Messsignal sind.

- Eine wichtige Fragestellung wird die Temperaturabhängigkeit und die damit verbundene Intensitätsveränderung der phononen-gekoppelten Wechselwirkungen sein. Die Anregbarkeit der Phononenprozesse sollte sich mit der Temperatur stark verändern. Informationen über die Dynamik der Phononen unter variierenden Temperaturen sollen zeigen, ob die verschiedenen Kanäle unterschiedlich beeinflussbar sind.

- Und schließlich sollen Hinweise auf die Exzistenz des Phononen-Bottleneck-Effektes gefunden werden. Zum Beispiel müßte sich für erhöhte Temperaturen eine Intensitätszunahme der Quantenpunktgrundzustandslumineszenz verzeichnen lassen. Auch hier können zeitaufgelöste Messungen hilfreich sein. Eine Frage wird dabei unteranderem sein, ob die phononen-gekoppelten Mechanismen aufgrund des Phononen-Bottleneck-Effektes bevorzugt werden oder ob sie einen rein polaronischen Ursprung haben.

InAs-Submonolagen-Quantenpunkte

Das Wachstum von InAs-Submonolagen-Quantenpunkte (SML-QPs) stellt eine Alternative zum herkömmlichen Stranski-Krastanov-Wachstum (SK-QPe) dar. Sie werden bei einer abwechselnden Abscheidung von weniger als einer Monolage InAs und wenigen Monolagen GaAs gewachsen. Eine Monolage ist eine Schicht, die genau eine Atomlage dick ist. An InAs-Monolagen wurden an der TU Berlin bereits verschiedene Untersuchungen durchgeführt. So wurden hier beispielsweise Messungen bezüglich der Lasing-[Goni98] oder Polarisationseigenschaften[Goni00] sowie Raman-Streuexperimente[Reich99] an solchen Monolagenschichten von InAs, die in GaAs eingebettet sind, durchgeführt.

Eine Submonolage von Atomen bedeckt entsprechend nicht vollständig eine Oberfläche. Es bilden sich kleine Akkumulationen von Atomen. Diese Inseln können als Quantenpunkte bezeichnet werden. Solche Submonolagen-Quantenpunkte besitzen einige Vorteile gegenüber den SK-Quantenpunkten. Zum einen wäre da ihre hohe laterale Dichte, die beim SK-Wachstum nicht erreicht werden kann. Eine hohe QP-Dichte ist zum Beispiel für bestimmte optoelektronische Bauelemente ideal[Ledentsov07]. Zusätzlich besitzen SML-QPs keine Benetzungsschicht (*wetting layer*), über die bei nichtresonanter Anregung Transferprozesse ablaufen müssten oder könnten. Dies geht immer mit einer gewisser Zeitverzögerung einher. Damit sind SML-Quantenpunkte ohne Benetzungsschicht insbesondere in der Verwendung in Höchstgeschwindigkeitsbauelementen interessant[Mutig09], weil die Ladungsträger direkt in die Quantenpunkte relaxieren können.

Die für diese Arbeit zur Verfügung stehenden SML-Proben wurden zusätzlich mit einer Schicht von Stranksi-Krastanov-Quantenpunkten gewachsen, die als Keimschicht für

die darüber liegenden Submonolagenschichten dient und aufgrund der infolgedessen vertikalen Stapelung zur Formation von kolumnaren Quantenpunkten führt. Natürlich haben diese SK-Quantenpunkte auch einen Einfluss auf die optischen Eigenschaften. Eine zentrale Fragestellung dieses Kapitels wird der Einfluss der SK-Quantenpunkte auf die optischen und dynamischen Eigenschaften der SML-Quantenpunkte sein. Außerdem wurden verschiedene Wachstumsparameter variiert (Spacerdicke, verschiedene Wachstumsunterbrechungen). Bezüglich der optischen Eigenschaften und insbesondere hinsichtlich unterschiedlicher Transferprozesse sollen die Submonolagen-Quantenpunkte charakterisiert werden.

- Zunächst muss geklärt werden, wie sich verschiedene Wachstumsparameter auf die optischen Eigenschaften der Submonolagen-Quantenpunktensembles auswirken. Dazu werden zum Beispiel (i) der Einfluss der Spacerschichtdicke zwischen den SML-Quantenpunkten oder (ii) einer Schicht von Stranski-Krastanov-Quantenpunkten unterhalb der Submonolagenschichten sowie (iii) die Folgen von verschiedentlichen Wachstumsunterbrechungen thematisiert.

- Unterschiedliche Anregungsbedingungen (zum Beispiel Anregungsleistung, -wellenlänge oder Pulsbreite) und deren Einfluss auf die Lumineszenzeigenschaften und die Dynamik werden untersucht. Lassen sich limitierende Faktoren hinsichtlich einer schnellen Dynamik identifizieren?

- Anregungsphotolumineszenzspektroskopie soll die verschiedenen, möglichen Anregungskanäle aufdecken. Auch der Einfluss der Temperatur wird in den PLE-Messungen angesprochen. Welche Transferprozesse spielen dabei eine Rolle?

- Lassen sich Hinweise auf eine Wechselwirkung mit Phononen finden?

- Die Temperaturabhängigkeit der Submonolagenlumineszenz (insbesondere hinsichtlich der dynamischen Eigenschaften) wird analysiert.

- Die Polarisationseigenschaften verschiedener Submonolagen-Quantenpunktproben sollen in Photolumineszenzmessungen in Kantengeometrie untersucht und untereinander verglichen werden. Lassen sich Aussagen über eine vertikale Kopplung zwischen den Quantenpunktschichten treffen? Es soll geprüft werden, ob korrelierte bzw. antikorrelierte Konfiguration in gestapelten SML-QP-Schichten auftritt. Beeinflussen dabei die SK-Quantenpunkte aufgrund ihrer Kopplung die SML-Quantenpunkte?

Optische Eigenschaften und Dynamik einzelner Quantenpunkte

Um das Potential von Quantenpunkten vollständig ausnutzen zu können, so müssen individuelle Quantenpunkte untersucht und deren Transferprozesse verstanden und kontrolliert werden können. Um Quantenpunkte zum Beispiel in der Quanten-Informationsverarbeitung als Quelle eines einzelnen, kontrollierten Photons anzuwenden, muss es möglich sein, den individuellen Quantenpunkt addressierbar zu machen. Dies bedeutet in der Anwendung,

dass lediglich ein einzelner Quantenpunkt gezielt zur Lumineszenz angeregt werden kann.

In diesem Kapitel wird also das Interesse weg vom Quantenpunktenensemble hin zum einzelnen Quantenpunkt gelenkt. Für diese Arbeit stand jedoch leider keine geeignete Arsenid-Quantenpunktprobe zur Verfügung (hauptsächlich bezüglich einer genügend geringen Quantenpunktdichte). Außerdem ist der für diese Messungen genutzte Mikrophotolumineszenzaufbau für den für Nitride typischen Wellenlängenbereich optimiert gewesen. Folglich wurde eine Nitrid-basierte Quantenpunktprobe ausgewählt. Nitrid-basierte Quantenpunkte sind zum Beispiel vielversprechende Kandidaten für nicht-klassische Lichtquellen bei Zimmertemperatur. Bei den hier untersuchten Quantenpunkten handelt es sich InGaN. Sie wurden an der TU Berlin in einem MOCVD-Reaktor gewachsen. Genaugenommen handelt es sich bei diesen Quantenpunkten um Indium-reiche Bereiche innerhalb eines InGaN-Quantenfilmes, der sich in einer GaN/InGaN/GaN-Heterostruktur befindet.

Allgemein fluktuieren innerhalb eines Quantenpunktensembles die einzelnen Quantenpunkte bezüglich ihrer Größe und Komposition. Dies führt zu einer inhomogenen Verbreiterung in den Photolumineszenzspektren. Das PL-Spektrum eines einzelnen Quantenpunktes weist scharfe Emissionslinien auf, wie es ein einziges Atom ebenfalls tut. Die optische Untersuchung einzelner InGaN-Quantenpunkte ist jedoch auch deshalb nicht einfach, weil ihre Emssionslinien signifikant verbreitert sind. Die Emissionsenergie der Wurtzit-InGaN-Quantenpunkte wird stark von fluktuierenden elektrischen Feldern beeinflusst, was zu einer Linienverbreiterung in den Spektren führt.

In dem entsprechenden Kapitel werden räumlich sowie zeitlich aufgelöste Photolumineszenzmessungen einzelner oder weniger InGaN/GaN-Quantenpunkte präsentiert. Dazu wurde ein neu aufgebauter Mikrophotolumineszenzmessplatz genutzt. Folgende Fragenstellungen und Ziele wurden adressiert, um das Verhalten verschiedener exzitonischer Komplexe und ihrer Rekombinationsdynamik zu untersuchen:

- Zunächst muss geklärt werden, ob sich die gewählte Probe dafür eignet, optische Untersuchungen an vereinzelten Quantenpunkten durchzuführen. Deshalb stellt sich die Frage, ob sich Stellen auf der Probenoberfläche finden lassen, die nur sehr wenige Emissionslinien in den entsprechenden Photolumineszenzspektren aufweisen.

- Es soll grundlegend die Möglichkeit untersucht werden, ob die Photolumineszenzspektroskopie eine geeignete Methode zur Einzelpunktuntersuchung darstellt und damit eine Alternative zur Kathodolumineszenz bieten kann.

- Lassen sich Aussagen über die spektrale Diffusion der beobachtbaren Emissionslinien einzelner Quantenpunkte mittels Photolumineszenzspektroskopie machen?

- Leistungsabhängige Photolumineszenzuntersuchungen einzelner Quantenpunkte sollen helfen, den Ursprung der verschiedenen, beobachteten Linien zu klären. Dabei

können aufgrund von Sättigungsverhalten beziehungsweise eines superlinearen Intensitätsanstieges exzitonischen von biexitonischen Emssionen unterschieden werden.

- Polarisationsabhängige Photolumineszenzmessungen sollen zeigen, ob verschiedene Linien ein unterschiedliches Polarisationsverhalten aufweisen, und damit von unterschiedlichen Quantenpunkten hervorgerufen werden.
- Zeitaufgelöste Photolumineszenzuntersuchungen werden durchgeführt, um zusätzliche Informationen über den Ursprung der beobachtbaren Emissionslinien zu geben.
- Ergänzend werden die beobachteten Dynamikeigenschaften einzelner Quantenpunkte mit theoretischen Vorhersagen per Achtband-$\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$-Modell verglichen.

2 Experimentelle Methoden

Im Folgenden sollen die verschiedenen Messmethoden erläutert werden, die zur Erstellung dieser Doktorarbeit verwendet wurden. Zu den verwendeten spektroskopischen Methoden im Rahmen dieser Arbeit zählen die zeitintegrierte und zeitaufgelöste Photolumineszenz, die Photolumineszenzanregungsspektroskopie sowie Mikro-Photoluminezenzspektoskopie.

Da die meisten Messungen bei tiefen Temperaturen durchgeführt werden mussten, wurden die zu untersuchenden Proben in Kryostaten gebracht. Je nach Zielsetzung der jeweiligen Untersuchung standen zwei unterschiedliche Arten von Kryostaten zur Verfügung. Für Messungen bei möglichst tiefen Temperaturen wurde ein Helium-Badkryostat genutzt, bei dem die Probe komplett in flüssiges Helium eingetaucht wird. Das abdampfende Helium wird aus zwei Gründen aus der Probenkammer abgepumpt. Zum einen geschieht dies, um die Bildung von Heliumgasbläschen in der Probenkammer zu unterbinden, die Photolumineszenzmessungen behindern können. Zum anderen kann so das flüssige Helium den Zustand der Suprafluidität einnehmen, das heißt jegliche innere Reibung wird verhindert. Auf diesem Wege konnten Temperaturen um 2 K erreicht werden. Will man jedoch temperaturabhängige PL-Serien aufnehmen, also Photolumineszenzmessungen bei verschiedenen Temperaturen, so kann ein Helium-Durchflusskryostat verwendet werden. Über die Regulierung der Durchflussmenge des Heliums mittels eines Ventils und einer internen Heizung ist es möglich, jegliche gewünschte Probentemperatur einzustellen. Da die Proben nicht direkt mit dem Helium in Kontakt treten, sondern lediglich das durchfließende Helium einen Kühlfinger, auf den die Probe aufgebracht wird, abkühlt, ist die tiefstmögliche Temperatur in dieser Art von Kryostat natürlich höher als bei Badkryostaten. Die niedrigste Temperatur, die an der Temperaturkontrolleinheit eingestellt werden kann, liegt bei Durchflusskryostaten um etwa 5 K, allerdings ist die tatsächliche Probentemperatur sicherlich noch etwas höher.

Die zu untersuchenden Quantenpunktproben wurden für sämtliche zeitintegrierten und zeitaufgelösten Photolumineszenzmessungen mit Hilfe des Titan-Saphir-Lasersystems "Millennia XS" (Ti:Sa) von Spectra Physics angeregt. Ein Ti:Sa-Kristall wird mit einem etwa 7,5 W-starken Neodym-Vanadat-cw-Laser mit einer Wellenlänge von 532 nm gepumpt. Für den Laserbetrieb von Ti:Sa sind Ti^{3+}-Ionen verantwortlich, welche im Saphir-Kristall (Al_2O_3) Al^{3+}-Ionen ersetzen. Obwohl sich die Emissionsbänder zwischen Wellenlängen von 600 bis über 1000 nm erstrecken, ist ein Lasing erst ab 670 nm möglich, da für kleinere Wellenlängen das Absorptionsband das Emissionsband überlappt. Der durchstimmbare Bereich wird zusätzlich noch eingeschränkt, da ein schwaches Ti^{4+}-Ionen-Absoptionsband beobachtbar ist. Und schließlich ist der abdeckbare Wellenlängenbereich von technischen Faktoren abhängig. Beispielsweise sind Spiegelbeschichtungen, Verluste durch optischen Elementen zum Durchstimmen der Emissionswellenlänge (Lyot-Filter), die zur Verfügung stehende Pumpleistung und die Modenqualität zu beachten. Mittels des innerhalb der Ti:Sa-Kavität verwendeten Spiegelsatzes konnte für diese Arbeit die Laserwellenlänge kontinuierlich zwischen 730 nm und 870 nm durchgestimmt werden.

2.0.1 Erzeugung von ps-Laserpulsen

Im Laser schwingen alle Moden im Allgemeinen unabhängig von einander und ohne feste Phasenbeziehung. Deshalb interferieren manche Moden destruktiv, während andere zum gleichen Zeitpunkt konstruktiv interferieren. Da aber beide Möglichkeiten in etwa gleich häufig auftreten, schwankt die Laserleistung nur gering um einen Mittelwert und es liegt ein kontinuierlicher Betrieb (Continious-Wave-Betrieb, cw) vor. Durch Modulation der Lichtleistung im Resonator mittels einer Frequenz, die der Umlaufzeit des Lichts im Resonator entspricht, bilden sich Seitenbänder aus, die den Resonatormoden entsprechen und zueinander in Phase schwingen. Durch die konstruktive Interferenz der Einzelmoden bilden sich kurze Pulse aus. Eine solche Modulation erfolgt in diesem Fall durch einen akusto-optischer Modulator (AOM), der ein 80 MHz-Mode-Locking garantiert. Zusätzlich erlaubt ein AOM dem System, für längere Dauer ohne Aussetzer oder Abschaltungen zu operieren, wie das häufig für passive Modenkopplungssysteme der Fall ist.

Die Pulsbreite eines Titan:Saphir-Lasers wird von zwei Faktoren beeinflusst: die dem Ti:Sa-Kristall anhaftenden sowie den von der Kavität bestimmten. Das Material selbst kann natürlich wenig beeinflusst werden, allerdings kann die Netto-Gruppengeschwindigkeitsdispersion (*Group Velocity Dispersion*, GVD) modifiziert werden. Die optischen Komponenten in der Laserkavität bewirken eine positive GVD und rufen somit eine Pulsverbreiterung hervor. Weitere Pulsverbreiterung wird durch Selbstphasenmodulation im Ti:Sa-Kristall verursacht, welche aus der Wechselwirkung des kurzen optischen Impulses mit dem nichtlinearen Brechungsindex resultiert. Um stabile, kurze Ausgangspulse zu erreichen, müssen solche Effekte durch eine negative GVD kompensiert werden. Im Falle des für diese Arbeit verwendeten Ti:Sa-Lasers in ps-Konfiguration wurde ein GTI (Gires-Tournois-Interferomter) im Mode-Locking-Design verwendet. Dieses Bauteil funktioniert ähnlich wie ein Fabry-Perot-Interferometer (mit dem Unterschied, dass der erste Spiegel nicht hochreflektierend sondern lediglich teilreflektierend ist). Das GTI ruft eine große negative GVD hervor, ist allerdings stark wellenlängenabhängig und muss dementsprechend angepasst werden, wenn eine neue Wellenlänge ausgewählt wird.

Die mittels Ti:Sa-Laser erzeugten Anregungspulse besitzen eine Pulsbreite von etwa 1,4 ps bei einer Repetitionsrate von 80 MHz.

2.0.2 Optisch-parametrischer Oszillator

Für die resonant angeregten Photolumineszenzmessungen werden im Falle der InAs-Quantenpunkte jedoch größere Wellenlängen benötigt. Die hier untersuchten InAs-Quantenpunkte haben bei tiefen Temperaturen eine Grundzustandsenergie von etwa 1,5 eV. Dies entspricht in etwa einer Wellenlänge von 1200 nm. Um solche Anregungswellenlängen zu erreichen, wurde ein Optisch-parametrischer Oszillator (OPO) von Spectra Physics verwendet. Dieser OPO wird durch den Ti:Sa-Laser gepumpt. Der Pumppuls wird dabei von einem nichtlinearen Kristall in zwei Teilstrahlen größerer Wellenlänge zerlegt. Die Summe der Quantenenergien dieser Teilstrahlen entspricht dabei der Quantenenergie der Anregung. Für den in dieser Arbeit benötigten Teilstrahl (Signal-Strahlung) kann beim verwendeten Ti:Sa-

Laserbereich die Wellenlänge zwischen 1060 nm und 1220 nm eingestellt werden. Es könnte auch der sogenannte Idler-Teilstrahl des OPO verwendet werden. Aufgrund der viel zu hohen Wellenlänge des Idler-Strahls (um 1600 nm) ist dieser für die Untersuchung der in dieser Arbeit untersuchten InAs-QP-Proben allerdings ungeeignet. Der Ti:Sa-Puls und der mittels OPO erzeugte Anregungspuls besitzen die gleiche Pulsbreite. Der OPO hat also keinerlei Einfluss auf die Pulsbreite, der für die zeitaufgelösten Messungen verwendeten Anregungspulse.

2.0.3 Frequenzverdopplung

Für die Untersuchung der InGaN-Quantenpunkte in Kapitel 5 wurde eine Anregung im UV-Bereich benötigt, die ein Ti:Sa-Laser nicht emittieren kann. Zu diesem Zweck läßt sich eine Strahlungsquelle realisieren, die auf der Mischung optischer Frequenzen in optisch nichtlinearen Kristallen basiert[Demtröder00].

Eine elektromagnetische Welle, die auf ein dielektrisches Medium fällt, induziert in den dortigen Atomen durch Ladungsverschiebung elektrische Dipolmomente, also eine dielektrische Polarisation P(E):

$$P(E) = \varepsilon_0(\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + ...),$$

wobei $\chi^{(n)}$ die Suszeptibilität n-ter Ordnung ist. Sie ist nichtlinear und hängt vom Medium ab. Unter dem Einfluß der einfallenden Welle $E(\omega)$ oszillieren die induzierten Dipolmomente und wirken somit als Quelle neuer elektromagnetischer Wellen. Deren Frequenzen werden durch P(E) bestimmt. Diese sogenannten Oberschwingungen können dann zur Frequenzvervielfachung verwendet werden.

Die Intensität der von den oszillierenden induzierten Dipolen emittierten Oberwellen ist proportional zum Quadrat ihrer Schwingungsamplitude. Deshalb werden zur optischen Frequenzverdopplung meistens gepulste Laser mit hohen Spitzenleistungen verwendet. Die von den induzierten atomaren Dipolen abgestrahlten Wellen laufen mit der Phasengeschwindigkeit

$$nu_{Ph} = \frac{\omega}{k} = \frac{c_0}{n(\omega)}$$

durch das nichtlineare Medium. Die von unterschiedlichen Atomen ausgehenden Wellen addieren sich nur dann zu einer makroskopischen Welle, wenn alle mikrokopischen Anteile in Phase sind, also die erzeugende Welle dieselbe Phasengeschwindigkeit hat wie die induzierten Oberwellen. Dies ist der Fall, wenn die Phasenanpassungsbedingung (*Phase Matching*) erfüllt ist:

$$\mathbf{k}(\omega_1 \pm \omega_2) = \mathbf{k}(\omega_1) \pm \mathbf{k}(\omega_2).$$

Für die optische Frequenzverdopplung ist es wichtig, daß das nichtlineare Medium ein optisch einachsiger Kristall ist (z.B. KDP oder BBO) und für eine bestimmte Richtung θ und Wellenlänge der außerordentliche Brechungsindex $n_a(2\omega)$ für die Oberwelle gleich dem ordentlichen Brechungsindex $n_0(\omega)$ für die Grundwelle ist. Wird also eine Grundwelle in diese bestimmte Richtung eingestrahlt, so wird für die Frequenzverdopplung das Phase Matching erfüllt. Es kann sich dann eine makroskopische Welle der Frequenz 2ω aufbauen.

2.1 Photolumineszenzspektroskopie (PL)

Innerhalb dieser Arbeit ist die **P**hoto**L**umineszenzspektroskopie eine der häufigst verwendeten Messmethoden. Bei nicht-resonanter Photolumineszenzspektroskopie an Quantenpunkten wird oberhalb der Bandkante des Matrixmaterials, das die Quantenpunkte umgibt, eingestrahlt. Die auf diesem Wege erzeugten Ladungsträger können daraufhin in die Quantenpunktniveaus relaxieren. Das Emissionspektrum der strahlenden Rekombinationsprozesse kann gemessen werden, indem die Detektionswellenlänge durchgefahren wird. Es können jedoch auch nichtstrahlende Relaxationsprozesse auftreten. Da strahlungslose Relaxation auf kürzeren Zeitskalen abläuft, ist bei geringer Anregungsintensität größtenteils eine strahlende Rekombination aus dem Grundzustand der Quantenpunkte beobachtbar, wohin die Ladungsträger relaxieren bevor sie rekombinieren. Bei hohen Anregungsintensitäten werden allerdings mehr Exzitonen generiert als über die Quantenpunktgrundzustände strahlend rekombinieren können. Bei Hochanregung werden die QP-Niveaus von unten nach oben aufgefüllt, und mit zunehmender Anregungsintensität steigt zwangsläufig die Luminszenz aus angeregten Zuständen im Vergleich zum Grundzustand an.

2.2 Photolumineszenzanregungsspektroskopie (PLE)

Im Gegensatz zur Photolumineszenzspektroskopie wird bei der Photolumiszenzanregungsspektroskopie (**P**hoto**L**uminescence **E**xcitation Spectroscopy) die Detektionswellenlänge festgehalten, während das Photolumiszenzverhalten der zu untersuchenden Übergangsenergie in Abhängigkeit von der Anregungswellenlänge aufgenommen wird. Die anregende Wellenlänge kann zum Beispiel über einen durchstimmbaren Laser erfolgen. Es ist aber auch denkbar, eine starke Lampe zu verwenden, deren Licht mittels eines Monochromators ausgewählt werden kann. Über das Durchfahren der Monochromatorwellenlänge wird somit das Anregungsverhalten der Probe ermittelt. Die für diese Arbeit durchgeführten PLE-Messungen wurden mit Hilfe einer Lampe durchgeführt.

Wenn für die anregende Wellenlänge ein Zustand existiert, der das Licht absorbieren kann, ist die Erzeugung eines Exzitons möglich. Dieses Exziton kann dann in den für die Messung entsprechend interessanten Zustand (z.B. der QP-Grundzustand) relaxieren, von wo es dann strahlend rekombiniert. Natürlich ist eine Absorption nicht für jede Anregungswellenlänge gleich effektiv oder gar möglich. Ein PLE-Spektrum kann dementsprechend Auskunft darüber erteilen, unter welchen Wellenlängen das zu untersuchende System besser oder schlechter absorbiert. Auf diesem Wege kann mittels PLE die Anregbarkeit des Grundzustandes zum Beispiel über höhere Niveaus der Quantenpunkte beziehungsweise anderer Zustände ermittelt werden.

Bei der Photolumineszenzanregungsspektroskopie erfolgt die Detektion in einem eingeschränkten Wellenlängenintervall, das spektral erheblich schmaler ist im Vergleich zur inhomogenen Verbreiterung der QP-Ensembleluminszenz. Infolgedessen wird also lediglich das Absorptionsverhalten eines Quantenpunkt-Subensembles untersucht, deren Exzitongrundzustandsenergie der gewählten Nachweisenergie entspricht. Interessiert man sich insbesondere für angeregte Zustände, ist deren Auflösung hinsichtlich der inhomogenen

Verbreiterung erheblich verbessert.

2.3 Mikrophotoluminezenzspektroskopie (μPL)

Die optische Spektroskopie einzelner Quantenpunkte bietet die Möglichkeit, individuelle Quantenpunkte gezielt anzuregen und so das Verständnis von Transferprozessen in Halbleiterquantenpunkten erheblich zu verbessern. Optische Einzelpunktspektroskopie wird typischerweise mit einem Mikrophotolumineszenzaufbau realisiert.

Die Mikrophotolumineszenzspektroskopie (μPL) kombiniert die Photolumineszenz mit der ortsaufgelösten Mikroskopie. Der Anregungslaser wird mit einem Strahlteiler in den afokalen Strahlengang eines Mikroskops eingekoppelt. Dabei wird die zu untersuchende Probe über den mittels Mikroskop-Objektivlinse fokussierten Laser zur Photolumineszenz angeregt. Die Detektion erfolgt über dieselbe Objektivlinse. Das Objektiv sammelt die PL ein. Durch eine Lochblende wird der Teil des Abbildes, der zur Detektion beiträgt, räumlich begrenzt und anschließend auf den Eintrittsspalt eines Monochromators abgebildet.

Das optische Aufösungsvermögen wird durch zwei Effekte begrenzt: Abbildungsfehler (Aberrationen) und Beugung. Bei hochwertigen Mikroskop-Objektiven sind die Aberrationen soweit korrigiert, dass die Beugungseffekte erheblich stärker ins Gewicht fallen. Selbst die beste Linse wirkt als beugende Öffnung, da sie durch ihren Rand bzw. ihre Fassung begrenzt wird. Da nicht einmal von einem genügend weit entfernten Punkt ein scharfer Bildpunkt entworfen wird, kann auch eine einfallende ebene Welle nicht in einem Punkt fokussiert werden. Der minimal kleinste Laserfleck eines fokussierten Laserstrahles wird vom Rayleigh-Kriterium bestimmt:

$$a = \frac{1,22\lambda}{2nsin\Theta},$$

wobei λ die Wellenlänge des Lichtes, n der Brechungkoeffizient des Mediums und Θ der halbe Winkel abhängig von der Fokussierlinse sind. Der Ausdruck $nsin\Theta$ wird auch als numerische Apertur NA bezeichnet. In der Praxis wird a durch λ begrent. Bei resonanter Anregung von InAs-Quantenpunkten liegt beispielsweise das Auflösungsvermögen also in der Größenordnung von etwa $1\,\mu$m.

Für die μPL-Messungen wird die Probe in einen Durchflusskryostaten eingebracht, der fest montiert wird. Im Gegensatz dazu kann die Objektivlinse mit Hilfe einer Piezo-Ansteuerung in alle Richtungen präzise verschoben werden. Auf diese Weise kann die Lumineszenz gezielt an verschiedenen Positionen auf der Probe gemessen werden.

2.3.1 Herausforderungen der Mikrophotolumineszenz an einzelnen QPs

Zur optischen Spektroskopie einzelner Quantenpunkte ist eine sehr hohe räumliche Auflösung experimentell nötig, da für die meisten Materialsysteme die Quantenpunktdichte viel zu hoch ist. Auch wenn über die Wahl geeigneter Wachstumsparameter die Dichte der Quantenpunkte verringert werden kann, so sind bestenfalls Abstände von mehreren 100 nm zwischen benachbarten Quantenpunkten erreichbar. Mittels räumlich aufgelöster

Mikrophotolumineszenzspektroskopie kann typischerweise eine Auflösung von 1 μm erreicht werden. Dies reicht selbst bei idealen QP-Proben nicht aus, um isolierte Quantenpunkte zu untersuchen. Also sind weitere Anstregengungen von Nöten. Nur die Kombination einer niedrigen Quantenpunktdichte mit Mikrophotolumineszenzspektroskopie und zusätzlicher Probenpräparation machen das experimentelle Untersuchen optischer Eigenschaften einzelner Quantenpunkte möglich.

Die technologische Isolierung von Quantenpunkten kann unter Verwendung kleiner Mesastrukturen[Marzin94] oder von metallenen Schattenmasken mit sehr kleinen Aperturen[Park98] realisiert werden. Ein einfacher Weg, um einzelne Quantenpunkte vom Ensemble zu entkoppeln, wäre zum Beispiel einen Hauptteil der Probe zu entfernen - beispielsweise durch Ätzen. Für auf diese Weise erzeugte Mesastrukturen ist die Einsammeleffizienz des vom Quantenpunkt emittierten Lumineszenzlichtes höher. Mesastrukturen haben allerdings auch Nachteile. Zum Beispiel können Ladungsträgeransammlungen in Oberflächenzuständen der geätzten Mesakante problematisch werden, wenn sich der Quantenpunkt zu nah an dieser Kante befindet. Es kann dann zu einer Coulombwechselwirkung dieser Ladungen mit Ladungsträgern im Quantenpunkt kommen, was eine Linienverbreiterung oder eine spektrale Diffusion[Seufert00] zur Folge hat. Ist es jedoch möglich, die Quantenpunkte resonant anzuregen, so kann diese Problematik umgangen werden. Ein weiteres Problem bei Mesastrukturen stellt die spektrale Verschiebung von Emissionslinien als Funktion der Anregungsleistung um bis zu mehrere 10 meV dar. Eine weitere, schlichtere Möglichkeit zur Isolierung einzelner Quantenpunkte bietet das Abdecken der gesamten Probenoberfläche mit einem lichtundurchlässigen Material, wobei vereinzelte Löcher ausgespart bleiben. Da Schattenmasken keine geätzten Halbleiteroberflächen in der Nähe des Quantenpunktes besitzen, sind keine Wechselwirkungen mit Ladungsträgern aus Oberflächenzuständen zu erwarten. Nicht nur aus diesem Grund sind Schattenmasken von Vorteil. Im Gegensatz zu Mesastrukturen ist eine elektrische Kontaktierung für elektrisch getriebene Quantenpunkte erheblich leichter zu realisieren. Demzufolge ist eine experimentelle Untersuchung mittels sowohl Photo- als auch Elektrolumineszenz an ein und demselben Quantenpunkt ohne Probleme möglich, wenn die Schattenmaskentechnik angewandt wird. Die Aperturen werden durch kleine Polystyrol-Kügelchen erzeugt, die vor der Bedampfung mit Platin (Titan dient dabei als Haftvermittler) auf die Oberfläche gebracht werden und hinterher einfach im Ultraschallbad abgeschüttelt werden können. Zurück bleiben Öffnungen in der Metallmaske mit Durchmessern von 10 μm, 200 nm oder 100 nm.

Im Falle der Schattenmasken regt das optische Nahfeld der Laseranregung lediglich die Quantenpunkte unterhalb der Aperturen der Maskierung an. Die Auflösung wird also hauptsächlich von dem Durchmesser der Aperturen bestimmt. Im Falle der für diese Arbeit verwendeten Schattenmaskenaperturen beträgt der kleinstmögliche Durchmesser etwa 100 nm. Kleinere Öffnungen sind nicht mehr sinnvoll, da der Betrag des Lichtes, dass durch die Schattenmaske transmittiert wird, stark mit kleiner werdenden Aperturdurchmessern abnehmen. Außerdem sollten die zu untersuchenden Quantenpunkte nah an der Oberfläche sein, da die Eindringtiefe unter Schattenmaskenaperturen stark beschränkt ist. In optischen Experimenten wie der Photolumineszenz ist nicht nur Anregung durch eine Schattenmaske hindurch beeinflusst durch die Apertur. Auch das vom Quantenpunkt emittierte Lumi-

neszenzlicht wird räumlich durch die Schattenmaske gefiltert. Im allgemeinen begrenzt die Diffusionslänge optisch angeregter Exzitonen das räumliche Auflösungsvermögen. Im Falle von Quantenpunkten ist jedoch bei tiefen Temperaturen die Exzitondiffusion auf Grund des starken Confinements von Exzitonen in den Quantenpunkten genügend unterdrückt.

2.4 Zeitaufgelöste Photolumineszenzspektroskopie (TRPL)

Die Untersuchung der dynamischen Eigenschaften von Transferprozessen in Quantenpunkten wurde für diese Arbeit mittels zeitaufgelöster Photolumineszenzspektroskopie (**T**ime-**R**esolved **P**hoto**L**uminescence) durchgeführt. Die mittels Ti:Sa-Laser erzeugten Anregungspulse besitzen eine Pulsbreite von etwa 1,4 ps bei einer Repetitionsrate von 80 MHz. Der zeitliche Abstand zwischen zwei Laserpulsen wird durch die Länge des Laserresonators bestimmt. Für das verwendete Lasersystem beträgt dieser Abstand etwa 12,5 ns. Nach diesem Zeitintervall erfolgt also der nächste Laserpuls. Damit ist man allerdings nach oben beschränkt, was die möglichen zu untersuchenden Lebensdauern betrifft. Ist ein Prozess nach 12,5 ns noch nicht vollständig abgeklungen, so wird die gemessene Lebensdauer auch immer vom nachfolgenden Laserpuls beeinflusst und entspricht somit nicht mehr der tatsächlichen Abklingzeit. Auch nach unten ist die Zeitauflösung beschränkt. Zum einen natürlich durch die Pulsbreite selbst, aber auch durch das verwendete Detektionssystem. Die verwendete Photokathode MCP-S1 von Hamamatsu besitzt eine Zeitauflösung von ungefähr 30 ps. Also sind kurzlebigere Prozesse nicht mehr auflösbar und die gemessene Transiente wird der Systemantwortsfunktion entsprechen.

Zur Messung der Transienten wurde das Single-Photon-Counting-Prinzip verwendet, bei dem einzelne Photonen in Abhängigkeit von ihrem zeitlichen Auftreffen im Detektor registriert werden. Diese einzelnen Photonen werden dabei als Verzögerung zwischen einem Referenzsignal und einem tatsächlichen Zeitpunkt der Registrierung im Detektor als entsprechendes Zeitintervall aufgenommen. Das Referenzsignal wird vom anregenden Laserpuls mittels eines Strahlteilers abgespalten und mit einer Photodiode registriert. Dieses Referenzsignal dient allerdings nicht als Startpuls. Da bei zeitaufgelösten PL-Untersuchungen von Quantenpunkten der Wirkungsquerschnitt verhältnismäßig klein ist, wird nicht für jeden anregenden Puls ein Signal von der Probe detektiert. Also invertiert man die Zählkette. Erreicht ein Photon den Detektor, so wird eine Sägezahnspannung ausgelöst, die erst in dem Moment gestoppt wird, in dem der nächste Referenzpuls auf der entsprechenden Photodiode auftrifft. Also bildet das tatsächliche Signal den Startpunkt und der nächste Referenzpuls den Stop einer Zeitmessung. Zum Auslösen der Messung wird ein Constant Fraction Discriminator (CFD) verwendet. Weil die Pulshöhe des zu messenden Signals unter gewissen Umständen sehr unterschiedlich sein kann, wird keine festgesetzte Pulshöhe als Auslöser genutzt. Mittels des CFD genügt bereits ein bestimmter Bruchteil der höchstmöglichen Pulshöhe, um als Triggerpuls die Messung auszulösen. Allerdings ist die Transientmessung sehr sensitiv auf die Einstellung des CFD und kann durch eine falsche Einstellung stark verfälscht werden, wenn man nicht genau arbeitet. Auf diese Weise kann jedoch immer nur ein Photon im Detektor detektiert und einem Zeitintervall zugeordnet

werden. Trifft ein zweites Signalphoton auf bevor der nächste Laserpuls die Zeitmessung stoppt, so kann es nicht registriert werden und geht der Gesamtmessung verloren. Eine Verfälschung der Ergebnisse auf Grund dieser Tatsache kann jedoch vernachlässigt werden, da bei verhältnismäßig niedrigen Signalintensitäten gearbeitet wird (circa $10^4 s^{-1}$). Das schließlich gemesse Zeitintervall wird über einen Time-to-Amplitude-Konverter (TAC) in eine Spannungamplitude konvertiert, die wiederum von einem Analog-Digital-Konverter (ADC) zu einer Kanalnummer umgewandelt wird, die dem tatsächlich gemessenen Zeitintervall zugeordnet wird. Schließlich erhöht jedes folgende registrierte Photon die Zählrate des entsprechenden Kanalzählers um jeweils eins. Summiert man nun über einen längeren Zeitraum viele weitere Ereignisse auf, so erhält man schließlich die typischen TRPL-Transienten.

3 Dynamische Eigenschaften kohärenter und inkohärenter vibronischer Prozesse in InAs-Quantenpunkten

Das Quasiteilchen Phonon hilft, Gitterschwingungen in einem Kristall quantenmechanisch zu beschreiben. Diese Gitterschwingungen, die quantisierte Energien besitzen, können unterschiedlicher Natur sein. Schallwellen, die sich durch das Kristallgitter fortpflanzen, werden Schallquanten oder akustische Phononen genannt. Neben akustischen Phononen gib es noch optische Phononen. Hierbei handelt es sich eine gegenphasige Bewegung aller Atome einer Einheitszelle. Im Gegensatz dazu schwingen bei akustischen Phononen alle Atome in Phase. Außerdem unterscheidet man noch zwischen longitudinal beziehungsweise transversal schwingenden Phononen.

In polaren Kristallen wie Indiumarsenid (InAs) oder Galliumarsenid (GaAs) tritt ein elektrisches Dipolfeld auf. Die sogenannte Fröhlich-Wechselwirkung[Cardona82] beschreibt den Einfluss dieses elektrischen Dipolfeldes auf Elektronen und damit auch auf Exzitonen. Aus Symmetriegründen bevorzugt die Fröhlich-Wechselwirkung longitudinal-optische Phononen (LO). 1950 stellten Huang und Rhys ein Modell auf[Huang50], das die Kopplung von Exzitonen mit LO-Phononen berechnet. Mit dem sogenannten Huang-Rhys-Faktor S kann die Wahrscheinlichkeit beschrieben werden, mit der während eines Elektronenüberganges ein optisches Phonon zusätzlich emittiert beziehungsweise absorbiert werden kann.

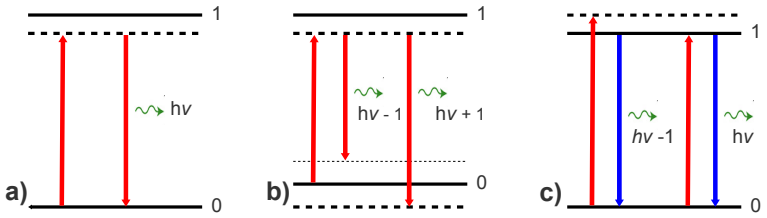

Abbildung 1: Schematische Darstellung der verschiedenen Streuprozesse: (a) Elastische Rayleigh-Streuung. (b) Inelastische Raman-Streuung (Stokes und Anti-Stokes). (c) Phononen-assistierter Photolumineszenzprozess für ausgehende (links) und eingehende (rechts) Resonanz.

Es sind verschiedene Arten von Streuprozessen an Quantenpunkten denkbar (siehe Abb.1). Zunächst gibt es natürlich die elastische Rayleigh-Streuung (a). Bei dieser wird das Licht an einem virtuellen Zustand gestreut und verliert dabei jedoch keinerlei Energie. Da hier keine Phononen involviert sind, soll die Rayleigh-Streuung für diese Arbeit nicht weiter interessieren. Viel relevanter werden jedoch die Möglichkeiten der Raman-Streuung (b) und der phononen-assistierten Lumineszenz (c) sein. Natürlich sind noch weitere phononische Prozesse denkbar, wie zum Beispiel die Phononenseitenbande, die der Relaxation über einen exzitonischen Zustand unter Aufnahme- bzw. Abgabe eines Phonons entspricht. Phononen-assistierten Lumineszenz ist allerdings ein Prozess, der über reelle, exzitonische Zustände der Quantenpunkte verknüpft ist, und energetisch um Vielfache von Phononen-

energien vom anregenden Laser entfernt beobachtbar ist.

Als mögliches Hilfsmittel zur optischen Untersuchung von Phononen kann beispielsweise die Raman-Streuung genutzt werden. Die über virtuelle Zustände ablaufende, inelastische Streuung von Lichtphotonen benötigt zunächst die Existenz eines Exzitons, da keine direkte Photon-Phonon-Wechselwirkung stattfindet. Photonen regen also in den Quantenpunkten Exzitonen an, an denen Phononen gestreut werden. Dabei werden entweder Energiequanten an das Gitter abgegeben (Stokes-Prozess) beziehungsweise davon aufgenommen (Anti-Stokes-Prozess), vergleiche dazu Abb.1. Die Energie des abgestrahlten Lichtes ist dann entweder um Vielfache der entsprechenden Phononenergie reduziert oder erhöht. In Quantenpunktsystemen ist aufgrund der geringen aktiven Materialdichte (typische Werte sind $3*10^{10}$ Quantenpunkte pro cm^3) der Raman-Wirkungsquerschnitt allerdings sehr niedrig, was zum Beispiel zu einem sehr schwachen Raman-Signal in Photolumineszenzspektren führt. Der Raman-Wirkungsquerschnitt kann jedoch verbessert werden, wenn die Energie des anregenden Lichtes etwa der eines tatsächlichen, exzitonischen Überganges entspricht. Man spricht in diesem Fall von eingehender Resonanz (*incoming resonance*). Es gibt aber auch noch die Möglichkeit, dass sich das gestreute Licht in Resonanz zum exzitonischen Energieniveau befindet (ausgehende Resonanz bzw. *outgoing resonance*). Resonante Raman-Spektroskopie kann die Streueffizienz um bis zu drei Größenordnungen erhöhen, und erleichtert eine experimentelle Untersuchung erheblich.

Bei InAs-Quantenpunkten konnten drei verschiedene Phononenenergien beobachtet werden [Paarmann05], deren Zuordnung allerdings schwierig und möglichweise nicht absolut geklärt ist. Im Moment geht man jedoch von folgender Zuordnung aus:

≈31 meV	transversal-optische Phononen (TO)
≈33 meV	longutidunal-optische Phononen (LO)
≈36 meV	Quantenpunkt-Interface-Phononen (IF)

3.1 Der Stand der Dinge und eigene Vorarbeiten

3.1.1 Phononenwechselwirkung in Quantenpunkten in der Literatur

Ladungsträgerrelaxationsmechanismen in Quantenpunkten, die Phononen mit einschließen, wurden bereits mehrfach experimentell als auch theoretisch beschrieben (zum Beispiel in [Verzelen02]). Auch ein resonantes Koppeln an LO-Phononen in einzelnen InGaAs-Quantenpunkten konnte bewiesen werden[Lemaitre01, Oulton03].

Zeitaufgelöste Untersuchungen von Ladungsträgertransfers in InGaAs/GaAs-Quantenpunkten mit unterschiedlichen Übergangsenergien zeigten, dass eine effiziente Elektronenrelaxation über LO-Phononen für Proben bei denen die Energieniveauseparation mit der LO-Phononenergie vergleichbar ist, beobachtbar sind[Marcinkevicius01].

Besonders von Interesse für diese Arbeit sind jedoch vor allen Dingen Arbeiten zum sogenannten Phononen-Bottleneck-Effekt[Mukai96, Heitz01, Sanguinetti08]. Unterdrückte Ladungsträgerrelaxation über exzitonische Zustände konnte von Heitz et.al. an InGaAs-Quantenpunkten demonstriert werden. Der Phononen-Bottleneck-Effekt hat eine starke Erhöhung der Relaxationszeit auf das bis zu 15-fache der strahlenden Lebenszeit τ_{rad} zur Folge, was einen Ladungsträgerabbau über "Hot Luminescence" via ersten angeregten Zustand wahrscheinlicher macht als über den Grundzustand des Exzitons. Bei 120 K konnte beobachtet werden, dass strahlende Lebenszeit und Relaxationszeit gleich sind, was den Übergang von Relaxations- zur rekombinationslimitierenden Exzitonendynamik darstellt. Die Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit kann schließlich inelastische Phononenstreuung zum dominanten Relaxationsmechanismus machen. Eine solche rekombinationslimitierenden Exzitonendynamik wird von Heitz et.al. mittels der unterdrückenden, polaren Exziton-LO-Phonon-Kopplung erklärt. Achtband-$\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$-Berechnungen deuten darauf hin, dass, abhängig von der Quantenpunktform und damit von der polaren Exziton-LO-Phonon-Kopplungsstärke, entweder die Bildung eines exzitonischen Polaritons oder ein Phonon-Bottleneck die jeweils limitierende Dynamik zur Folge haben. Der Einfluß von Temperatur und QP-Form auf die Relaxationsdynamik untermauert dabei eine phononenassistierte Relaxation für stark lokalisierte Exzitonzustände.

Einen Beweis für die Existenz eines exzitonischen Polarons in InAs-Quantenpunkten lieferten Preisler et.al.[Preisler06]. Es wurden PLE-Messungen von Interbandübergängen in InAs-QP-Ensembles unter starken Magnetfeldern von bis zu 28 T aufgenommen, in denen wohldefinierte Resonanzen beobachtbar waren. Die Magnetfeldabhängigkeit der Resonanzenergien erlaubt eine eindeutige Zuordnung der Interbandübergänge einschließlich diskreter QP-Zustände und Benetzungsschichtzustände. Es konnte jedoch ein starkes Anticrossing zwischen zwei Zuständen in allen Proben beobachtet werden, dass nicht mit einem rein exzitonischen Modell erklärt werden kann. Mittels Fröhlich-Hamiltongleichung wurde eine Kopplung zwischen gemischten Exziton-LO-Zuständen berechnet, mit dessen Hilfe exzitonische Polaritonenergien sowie die Oszillatorstärke von Interbandübergängen bestimmt werden konnte. Dabei konnte die Vorhersage gemacht werden, dass, wenn zwei Exziton-LO-Zustände energetisch dicht genug beieinanderliegen (mit Phononenbesetzungen, die sich um 1 unterscheiden), es zu dem experimentell beobachteten Anti-Crossing kommen müsste.

3.1.2 Eigene Vorarbeiten an In(Ga)As/GaAs-Quantenpunkten

Bereits im Rahmen der Diplomarbeit konnten zwei verschiedene Exziton-Phonon-Wechselwirkungen an Quantenpunkten beobachtet werden[Werner08]. Dazu wurden zwei an der TU Berlin mittels MOCVD-Verfahren gewachsene Proben aus dem In(Ga)As/GaAs-Materialsystem ausgewählt, die sich bezüglich ihrer optischen Eigenschaften als geeignet erwiesen. Der erste untersuchte Effekt ist die Resonante Ramanstreuung. Bei der entsprechenden Probe konnten energetisch scharfe Strukturen, die um eine Phononenenergie vom anregenden Laser verschoben sind, in den Photolumineszenzspektren beobachtet werden. Zeitaufgelöste Messungen zeigten, dass dieser Prozess kohärent zum anregenden Laserpuls

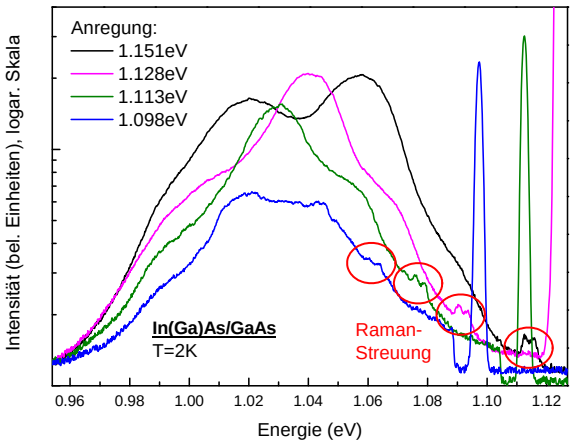

Abbildung 2: Photolumineszenzspektren bei 2 K von In(Ga)As-Quantenpunkten für unterschiedliche Anregungsenergien.

stattfindet. Der zweite phononen-assistierte Prozess ist ein über den Quantenpunktgrundzustand gekoppelter inkohärenter Lumineszenzprozess. Die entsprechende Probe weist sehr intensive, stark homogen verbreiterte Lumineszenzstrukturen unter resonanter Anregung auf, die um das Mehrfache von Phononenenergien verschoben messbar sind.

Resonanter Ramaneffekt

In Abb.2 sind Photolumineszenzspektren für unterschiedliche Anregungsenergien in der Nähe der Resonanz zur Grundzustandsenergie eines In(Ga)As/GaAs-Quantenpunktensembles dargestellt. In den Spektren sind verschiedene Emissionsstrukturen zu sehen, deren Ursprung nicht vollständig geklärt werden konnte. Die Spektren verändern sich stark, wenn die Anregung verschoben wird. Fast sämtliche Emissionen schieben mit der Anregung. Lediglich eine konstant bei etwa 0,99 eV beobachtbare, allerdings vergleichsweise schwach leuchtende Schulter auf der niederenergetischen Flanke der Lumineszenzen konnte als Grundzustand der Quantenpunkte identifiziert werden. Unterhalb dieser Flanke, treten keine weiteren Emissionen auf. Von besonderem Interesse soll aber hier eine in allen PL-Spektren beobachtbare Doppelstruktur sein (hervorgehoben in Abb.2 durch die roten Kreise). Sie befindet sich für sämtliche Anregungsenergien jeweils in einem konstanten Energieabstand von ungefähr 34,0 meV beziehungsweise 36,5 meV zum anregenden Laser. Bei den gemessenen Linien werden also Photonen detektiert, deren Energie um die eines Phonons reduziert ist. Dies geschieht durch Raman-Streuung. Die beobachteten Energien stimmen in etwa mit Quantenpunkt-LO- (≈33 meV) beziehungsweise Interface-Moden (≈36 meV) überein. Diese Raman-Doppelstruktur setzt sich aus spektral sehr scharfen Linien zusammen, die allerdings von der Anregungsenergie nahezu unabhängige Intensitäten

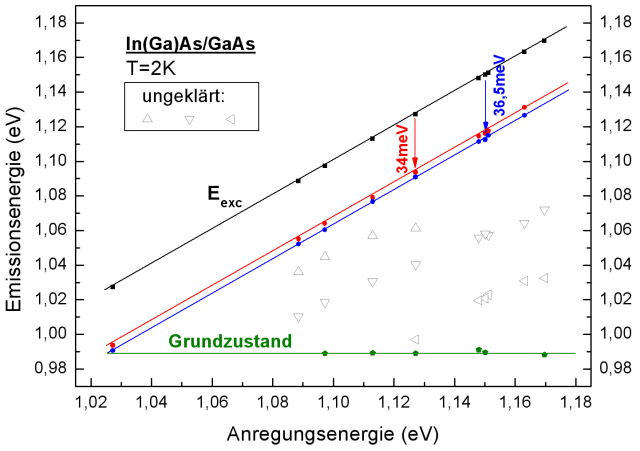

Abbildung 3: Abstände der Raman-Doppelstruktur zur Laseranregung als Funktion der Anregungsenergie.

zeigen. Sie addieren sich lediglich konstant zum Lumineszenzsignal dazu und schieben parallel mit der Anregungsenergie (siehe Abb.3). Die Raman-Linien sind jedoch nur unter Resonanzbedingungen zum Quantenpunktsystem detektierbar; bei höherenergetischer Laseranregung können sie nicht beobachtet werden.

Betrachtet man die Temperaturabhängigkeit der Raman-Linien (siehe Abb.4), so kann festgestellt werden, dass sie bis zu einer Temperatur von ungefähr 100 K eine gleichbleibend starke Intensität besitzen. Doch schon bei etwa 130 K sind sie fast vollständig verschwunden. Ihre energetische Position hält die Raman-Doppelstruktur jedoch für jede Temperatur bei.

Bei zeitaufgelösten Photolumineszenzuntersuchungen an der Quantenpunkt-LO-Mode (ΔE$\approx$34 meV) zeigte sich, dass sich die Emission der entsprechenden Energie aus zwei verschieden schnell ablaufenden Prozessen zusammensetzt (siehe Abb.5). Zum einen gibt es einen inkohärenten Lumineszenzuntergrund mit einer Anklingzeit von τ_r=270 ps und einer Abklingkonstante von τ_d=650 ps. Dazu läßt sich allerdings eine sehr kurzlebige Komponente (τ $\leq$30 ps) messen, die in der Transiente als kleine Spitze kurz nach der Anregung erkennbar ist. Dieser Beitrag ist als kohärenter Prozess der Raman-Streuung zuzuordnen. Der Raman-Prozess ist lediglich auf einen spektral sehr scharfen Bereich detektierbar. Misst man die Dynamik für eine Emissionsenergie, die leicht von der LO-Mode abweicht, so wird ausschließlich ein langlebiges, inkohärentes Lumineszenzsignal aufgenommen. Zieht man die leicht verschoben gemessene Transiente von der an der LO-Mode detektierten ab, so bleibt als Differenz der kohärente, Raman-gestreute Anteil übrig (siehe 6). In diesem Fall wurde für die zweite Transiente eine etwas geringere Detektionsenergie gewählt, um einen Einfluss durch die um 2,5 meV höherenergetische Interface-Mode ausschließen zu können. In Abb.6 wird klar, da man den Raman-Anteil mit der instrumentellen Antwort auf den

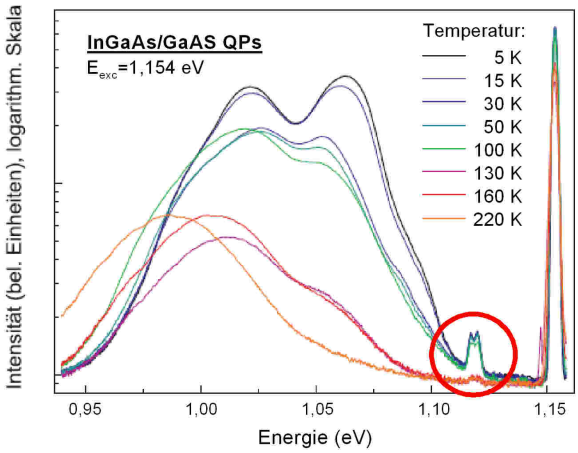

Abbildung 4: Temperaturabhängigkeit der Raman-Moden (rot hervorgehoben) unter einer Anregung von 1,154 eV.

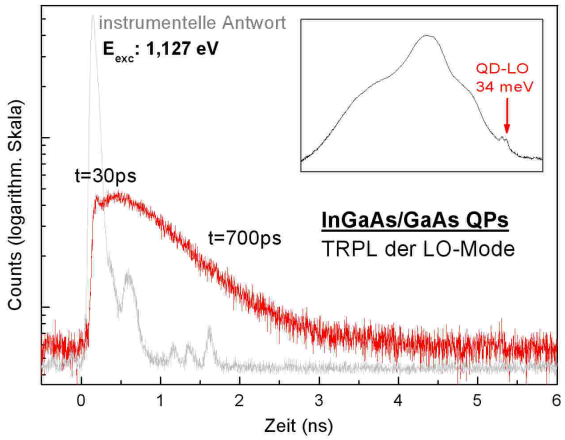

Abbildung 5: Transiente der LO-Phononenmode bei 2 K unter einer Anregung von 1,127 eV.

anregenden Laserpuls vergleicht, dass die Zeitauflösung des Aufbaus nicht ausreichend ist, um eine präzise Aussage über die Dynamikeigenschaften des Raman-Prozesses zu machen. Es kann lediglich eine Obergrenze von etwa 30 ps angegeben werden.

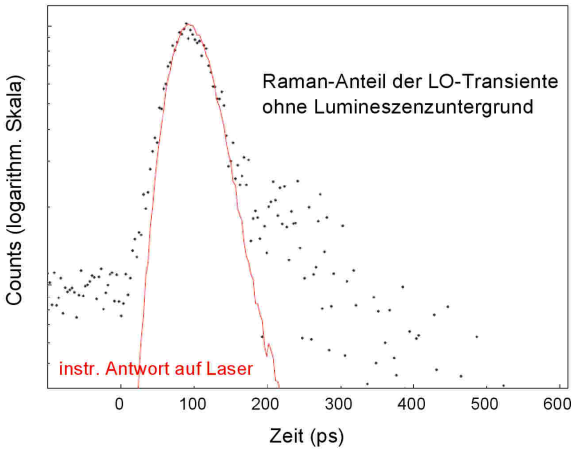

Abbildung 6: Transiente der LO-Mode: Der Raman-Anteil ohne Lumineszenzuntergrund unter einer Anregung von 1,127 eV. (schwarz). Zum Vergleich ist zusätzlich die instrumentelle Antwort auf die Laseranregung aufgetragen (rot).

Phononen-assistierter Lumineszenzprozess

Auch für diese Messungen wurden In(Ga)As/GaAs-Quantenpunkte untersucht, die mittels MOCVD in der TU Berlin gewachsen wurden. Die Grundzustandsenergie dieses Quantenpunktensembles befindet sich je nach Anregungsenergie bei etwa 1,005 eV. Unter nahezu resonanter Anregung sind auch bei dieser Probe zusätzliche Lumineszenzstrukturen zu beobachten (siehe Abb.7), die mit Phononen verknüpft sind. In Abb.7 sind PL-Spektren in einem Anregungsintervall zwischen 1,153 eV und 1,081 eV aufgetragen. Die energetischen Abstände sind mittels der Pfeile eingetragen. Die mit Phononen assoziierten Strukturen sind hier allerdings spektral verbreitert (21 meV) und bezüglich ihrer Intensität erheblich stärker - im deutlichen Gegensatz zu dem zuvor untersuchten Raman-Streuprozess. So findet sich zum Beispiel bei einer Anregungsenergie von 1,153 eV (oberstes Spektrum in Abb.7) unter anderem eine starke Lumineszenzlinie, die um 67,5 meV von der Grundzustandslumineszenz (beziehungsweise um 76,1 meV vom anregenenden Laser) entfernt ist. Dieser Energieabstand deutet wiederum auf einen 2LO-Prozess hin.

Die hier beobachtbare phononen-assistierte Lumineszenz ist ein dominierender Relaxationsprozess, der mit der Exzitonenrelaxation verknüpft ist, jedoch mit ihr konkurriert. Tatsächlich nimmt bei einer Verschiebung in Richtung des Quantenpunktgrundzustandes die Stärke eben dieser Grundzustandslumineszenz ab während gleichzeitig die phononen-assistierte Lumineszenz an Intensität gewinnt. Also kann man sagen, dass dieser Prozess

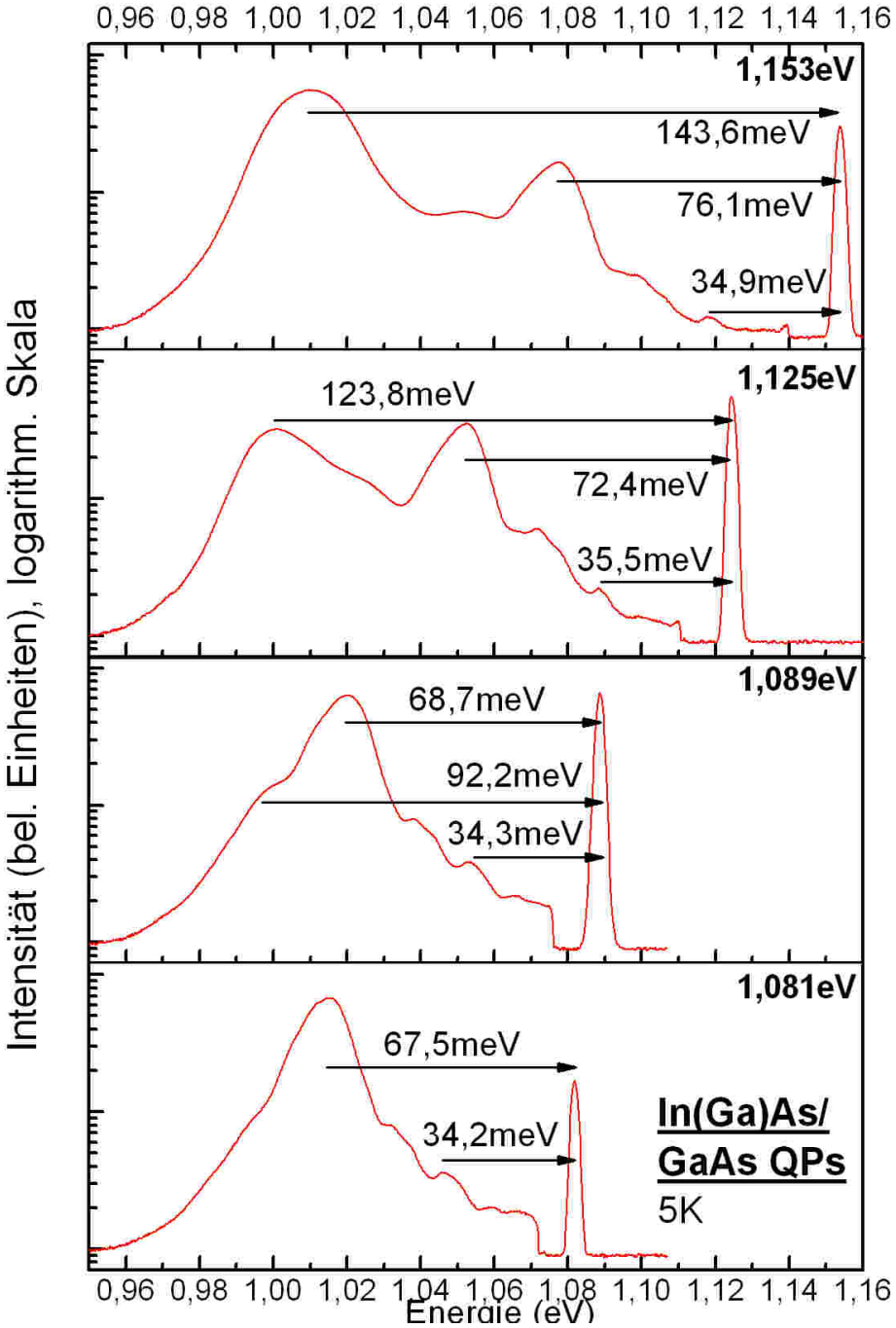

Abbildung 7: Photolumineszenzspektren bei 5 K von In(Ga)As-Quantenpunkten für unterschiedliche Anregungsenergien.

dem herkömmlichen Ralaxationsprozess an Intensität entzieht. Die Halbwertsbreite von 21 meV des phononen-assistierten Lumineszenzprozesses ist mit der Tatsache erklärbar, dass ein Quantenpunktensemble angeregt wird und die inhomogene Verbreiterung des Grundzustandes aufgrund der variierenden Größe oder Komposition der einzelnen Quantenpunkte sich auf die phononen-assistierte Lumineszenz überträgt.

Bei fortschreitender Verringerung der Anregungsenergie verschieben sich diese Strukturen ebenfalls mit der Anregung hin zu kleineren Energien (siehe dazu Abb.8). Die 2LO-Lumineszenz schiebt schließlich in den Grundzustand hinein. Bei einer Anregungsenergie von ungefähr 1,08 eV (siehe unterstes Spektrum aus Abb.7) sind Phononen und Grundzustand spektral nicht mehr zu unterscheiden. Bei weiterer Verringerung der Anregungsenergie gewinnt die Grundzustandslumineszenz zunächst wieder an Intensität, nur um sie bald wieder an einen 1LO-assistierten Lumineszenzprozess gleichen Ursprungs zu verlieren.

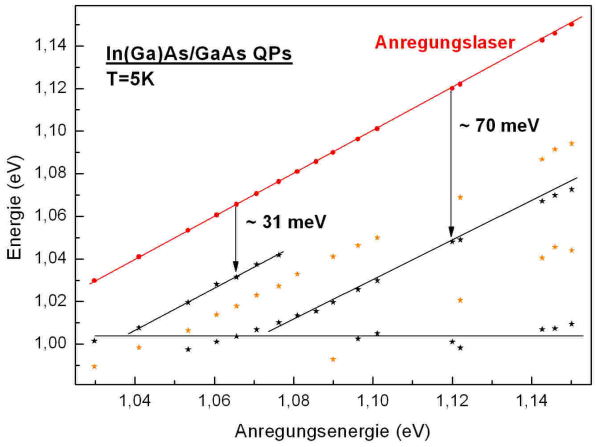

Abbildung 8: Abstände der Lumineszenzen zur Laseranregung als Funktion der Anregungsenergie.

Es wird an dieser Stelle auf zwei Fakten hingewiesen, die nicht verschwiegen werden sollten. Zum einen schieben die Phononenlumineszenzlinien nicht absolut parallel mit der Anregung mit wie es die Raman-Moden tuen. Die Differenz zwischen Lumineszenz- und Anregungsenergie wird mit kleinerer Anregung unvernachlässigbar kleiner. Bei einer Anregungsenergie von 1,153 eV beträgt diese Differenz 76,1 meV während bei 1,081 eV der Abstand sich auf 67,5 meV verringert hat. Auch der 1LO-Abstand schrumpft von circa 35 meV auf 31,5 meV (bei einer Anregung von 1,042 eV). Zum anderen sind neben den 2LO- bzw. 1LO-phononen-assistierten Lumineszenzen noch weitere Lumineszenzstrukturen beobachtbar, die mit der Anregung durchschieben, aber zu keinen Phononenenergie passen, die mit In(Ga)As, InAs oder GaAs in Verbindung gebracht werden können. Zum Beispiel findet sich bei einer Anregungsenergie von 1,153 eV (oberstes Spektrum in Abb.7) eine Struktur im Abstand von etwa 103 meV zum Anregungslaser oder bei 1,081 eV (unterstes Spektrum

aus Abb.7) eine zusätzliche Linie bei etwa 45 meV unterhalb der Anregungsenergie. Diese Linien, die in Abb.8 als gelbe Sterne markiert und etwas schwächer als die anderen Lumineszenzen emittieren, schieben allerdings offensichtlich ebenso mit der Anregung mit wie es die zuvor diskutierten phononen-assistierten Lumineszenzen tun.

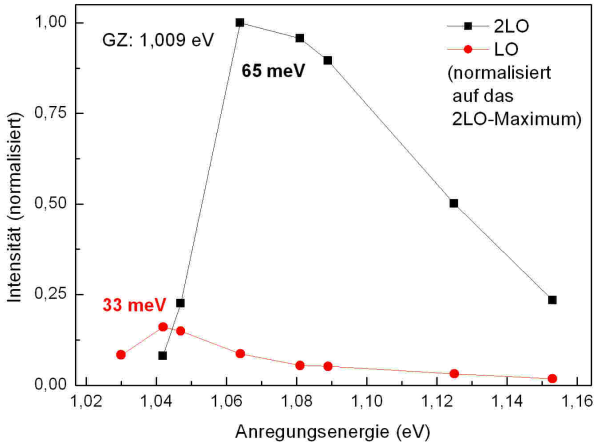

Abbildung 9: Anregungsabhängigkeit der 1LO- bzw. 2LO-Lumineszenzen: Stark ausgeprägte Überhöhung unter eingehenden Resonanzbedingungen für beide Prozesse.

In Abb.9 sind die Intensitäten der 1LO- bzw. 2LO-Lumineszenzen als Funktion der Anregungsenergie aufgetragen. Diese Resonanzprofile der 1LO- bzw. 2LO-Intensitäten zeigen mit kleiner werdenden Anregungsenergien eine Intensitätszunahme der 1LO- und 2LO-Moden auf. Dies geschieht bis das Maximum bei einer Anregung von 1,089 eV erreicht wird und fällt darunter wieder stark ab. Dieser Wert entspricht etwa der Energie von einem LO-Phononen zusätzlich zum Quantenpunktgrundzustand. Es ist insbesondere hervorzuheben, dass dieses starke Resonanzverhalten ausschließlich im Fall der „Outgoing"-Resonanz beobachtbar ist ($E_{Anr} = E_{GZ} + E_{1LO}$), während keine Resonanz im „Incoming"-Fall ($E_{Anr} = E_{GZ}$) feststellbar ist. Ein vergleichbares Verhalten kann auch für die 2LO-Mode beobachtet werden. Das entsprechende Resonanzmaximum tritt hier auf, wenn die Anregungsenergie um 2LO-Phononenenergien zum Grundzustand entfernt ist. Die im Vergleich zur 1LO-Mode höhere Maximalintensität der 2LO-Mode kommt aufgrund der Phononenwellenvektorabhängigkeit ($\vec{\mathbf{q}}$) der Elektron-Phonon-Fröhlich-Wechselwirkung[Cardona82] zustande. Im Resonanzfall wird diese Wechselwirkung erheblich verstärkt, was zu einem maximalen Streuquerschnitt für Phononen führt, die folgende Bedingung erfüllen:

$$|\vec{\mathbf{q}}|a_B \approx 2,$$

wobei a_B der Bohrradius des Exzitons ist. Folglich wird die Elektron-Phonon-Fröhlich-Wechselwirkung für den 2LO-Prozess stärker sein im Vergleich zum 1LO.

Die Lebensdauern dieser phononen-assistierten Lumineszenzen ist natürlich von zentralem Interesse für diese Arbeit. Zu diesem Zweck wurden die verschiedenen Lumineszenzlinien mittels zeitaufgelöster Photolumineszenzmessungen bei unterschiedlichen Anregungsenergien untersucht. Dabei zeigte sich, dass sämtliche Strukturen ähnliche An- und Abklingkonstanten aufweisen. Sowohl Grundzustandslumineszenz als auch die 1LO- oder 2-LO-Linien haben ein vergleichsweise langes Anklingen zwischen 500 und 580 ps. Dabei hat der Grundzustand für die meisten Anregungsenergien eine leicht höhere Zeitkonstante im Vergleich zu den phononen-gekoppelten Prozessen. Das Abklingen dauert für alle Strukturen je nach Anregungswellenlänge zwischen 720 und 840 ps. Die Abklingkonstanten schwanken allerdings in Abhängigkeit von der Anregungsenergie und sind für eine feste Anregung tatsächlich nahezu gleich. Abschließend ist festzuhalten, dass die phononen-assistierten Lumineszenzen - im Gegensatz zum Raman-Streuprozess - mit den Lebensdauern des Quantenpunktgrundzustandes korreliert sind und nur mithilfe dessen überhaupt stattfinden können.

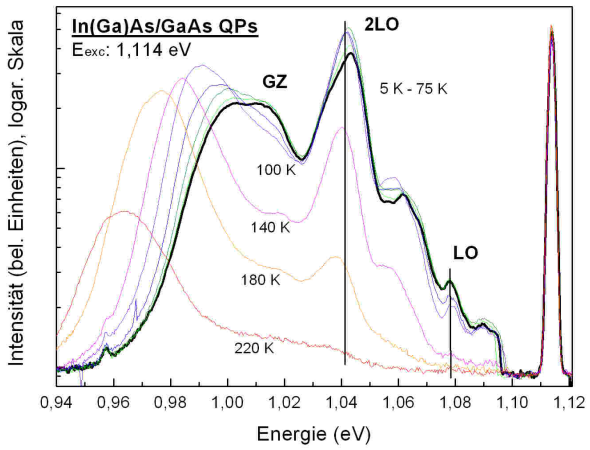

Abbildung 10: PL-Spektren bei steigenden Temperaturen: Abnahme der phononischen Intensität und leichte Erhöhung der Grundzustandslumineszenz.

Von entscheidender Relevanz ist noch das Temperaturverhalten der phononen-assistierten Lumineszenz. Mit steigender Temperatur verändern sich die PL-Spektren stark, wie Abb.10 illustriert. Zum einen nehmen die 1LO- bzw. 2LO-Linien ab einer Temperatur von ungefähr 130 K dramatisch an Intensität ab, bleiben jedoch energetisch an der gleichen Position. Zum anderen ist zu beobachten, dass der Grundzustand neben seiner typischen Rotverschiebung zusätzlich für einen gewissen Temperaturbereich eine Erhöhung der Intensität zeigt. Diese Entwicklung spricht dafür, dass bei tiefen Temperaturen die angeregten Ladungsträger bevorzugt über den phononen-assistierten Lumineszenzprozess abgebaut werden und der eigentliche Grundzustand etwas unterdrückt wird. Man spricht in diesem Fall vom sogenannten Phononen-Bottleneck-Effekt.

3.1.3 Theoretische Berechnungen zur Dynamik von Phononenprozessen

Ergänzend zu den experimentellen Ergebnissen, die im Mittelpunkt dieser Arbeit stehen, wurden in Zusammenarbeit mit Julia Kabuß (Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Andreas Knorr am Institut für Theoretiosche Physik, Nichtlineare Optik und Quantenelektronik, Technische Universität Berlin) theoretische Berechnungen zu zeitaufgelöster Lumineszenz und Raman-Streuung an Halbleiterquantenpunkten durchgeführt[Kabuss10]. Dabei wurden die zeitaufgelösten, optischen Eigenschaften eines gekoppelten Phononen-Quantenpunkt-Systems untersucht.

In einem resonant angeregten Streuexperiment sind neben elektronischen Quantenpunktübergängen auch verschiedene, phononische Streuanteile beobachtbar: direkte, elastische Streuung (Rayleigh) und inelastische Streuung (Raman). Die Streufrequenz ω_s der Rayleigh- sowie der Raman-Streuung ist mit der Frequenz des anregenden Lasers ω_l verknüpft, während die spektrale Position der QP-Lumineszenz von der Bandlücke des elektronischen QP-Systemes abhängt: ω_{cv}. Die Streuanteile liegen unterschiedlichen Prozessen zugrunde. Dies wird mit unterschiedlichen Elementen der Dichtematrix über gewisse Lebenszeitkonstanten beschrieben. Demzufolge können diese Streuprozesse auch über ihre spezifischen, dynamischen Eigenschaften voneinander unterschieden werden. Neben experimentellen Untersuchungen wurden auch theoretische Betrachtungen zum zeitlichen Emissionsverhalten aufgestellt[Mukamel95, Rho01, Richter09]. Einer der möglichen Ansätze zu diesem Problem ist der Dichtematrixformalismus im Liouville-Raum, welcher Response-Funktionen dritten Grades[Sue86, Mukamel95] benützt. Dies führt allerdings zunächst nur zu stationären Raman- und Lumineszenzspektren.

Wird für die Beschreibung der Quantenpunktemission ein Störungsrechnungansatz zur Dichtematrix gewählt, so ermöglicht dies die simultane Beschreibung von frequenz- und zeitaufgelöster Lumineszenzemission sowie Raman-Streuung. Dabei geht die Elektron-Phonon-Wechselwirkung mikroskopisch in die Rechnung ein. Basierend auf der Bewegungsgleichung von Heisenberg wurde mittels Korrelationsexpansionsmethode[Richter07] ein geschlossener Satz von Gleichungen abgeleitet, welche anschließend numerische gelöst werden. Damit erhält man letztendlich das Emissionsspektrum sowohl im Frequenz- als auch im Zeitbereich. Die Methode der Korrelationsexpansion wurde hier erstmals angewandt, um die Zeitauflösung der Raman-Streuung sowie der Lumineszenz eines Zweiniveau-Halbleiterquantenpunktes zu erhalten.

Hamilton-Gleichung

Die Hamilton-Gleichung $H = H_0 + H_{e-l} + H_{el-pt} + H_{el-pn}$ des Quantenpunktes, der mit einem äußeren, elektromagnetischen Feld und einem thermischen Phononenbad wechselwirkt, besteht aus dem freien Anteil H_0 und der Hamilton-Gleichung der Wechselwirkung. $H_0 = H_{pt} + H_{pn} + H_{el}$ steht für die freie Energie der Photonen, der Bulk-LO-Phononen und der quasi-freien elektronischen Bewegung. In Rotating-Wave-Näherung (RAW)[Louisell73] sieht die Hamilton-Gleichung wie folgt aus[Ahn05]:

$$H_0 = \sum_\lambda \epsilon_\lambda a_\lambda^\dagger a_\lambda + \sum_k \epsilon_k c_k^\dagger c_k + \sum_q \epsilon_q b_q^\dagger b_q q, \tag{1}$$

$$H_{el-pt} = \sum_k \{D_{cv}^k a_c^\dagger a_v c_k + D_{cv}^{k*} a_v^\dagger a_c c_k^\dagger\}, \tag{2}$$

$$H_{el-pn} = \sum_q \{g^q a_c^\dagger a_c b_q q + g^{q*} a_c^\dagger a_c b_q^\dagger\}, \tag{3}$$

$$H_{e-l} = \mathbf{d}_{cv} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{t}) a_v^\dagger a_c + \mathbf{d}_{cv} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{t}) a_c^\dagger a_v. \tag{4}$$

Dabei sind die fermionischen $a^{(+)}$ und die bosonischen Operatoren $b^{(+)}$, $c^{(+)}$ die Erzeugung- bzw. Vernichtungsoperatoren der Elektronen, Phononen und Photonen. $\epsilon_i = \hbar\omega_i$ sind die freien Energien der damit verbundenen Quantenfeldern. Der Quantenpunkt wird hier als ein Zweiniveausystem behandelt, wobei v and c die elektronischen Valenz- und Leitungsbandzustände des Quantenpunktes repräsentieren. Die optische Anregung des Quantenpunktes wird mit der semiklassischen Elektronenfeld-Hamilton-Gleichung H_{e-l} beschrieben, während das quantenoptische Photonenfeld, das mit dem elektronischen System wechselwirkt, von der quantisierten Hamilton-Gleichung H_{el-pt} (mit den Kopplungmatrixelemente D_{cv}^k) beschrieben wird. Die Elektron-Phonon-Wechselwirkung H_{el-ph} (mit den Fröhlich-Kopplungsmatrixelementen g^q) wird für diese Arbeit auf die LO-Phononmode beschränkt. Die Methode kann aber durchaus auch ohne Probleme auf Wechselwirkungen mit anderen Phononmoden erweitert werden.

Die Observablen

Bei einem stationären, äußeren Lichtfeld wird die Emissionsintensität der Mode k_s mit

$$S(\omega_{k_s}) = \partial_t n_{k_s}, \tag{5}$$

beschrieben, wobei $n_s = \langle c_{k_s}^\dagger c_{k_s} \rangle$ die durchschnittliche Photonanzahl der Mode k_s ist.

Zur Berechnung des zeitaufgelöste Spektrums muss der spezifische Messaufbau berücksichtigt werden (vergleiche Abb.11): Das System wird mit einem Laserpuls angeregt und emittiert Licht $E_{k_s}(\mathbf{r}, t)$ quantenoptisch. Das Lichtfeld passiert einen spektralen Filter, was durch die Filterfunktion $F_{k_s}(t)$ (mit dem mittleren Frequenzwert ω_{k_s}) beschrieben wird. Die gefilterte Intensität $S(\mathbf{r}, \omega_{k_s}, t) = \langle E_D^{(-)}(\mathbf{r}, t) E_D^{(+)}(\mathbf{r}, t) \rangle$ wird abschließend von einem zeit- und frequenzauflösenden Detektor aufgenommen. $S(\mathbf{r}, \omega_{k_s}, t)$ ist gegeben durch die Intensität des Detektor an der Position $\mathbf{r}$:

$$\begin{aligned} S(\mathbf{r}, \omega_{k_s}, t) &= \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 F_{k_s}^*(t - t_1) F_{k_s}(t - t_2) \\ &\times \langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t_1) E^{(+)}(\mathbf{r}, t_2) \rangle e^{-i\omega_{k_s} t_1} e^{i\omega_{k_s} t_2}. \end{aligned} \tag{6}$$

Für die folgenden Berechnungen wird die Filterfunktion $F_{k_s}(t)$ als eine Gaussform angenommen $F_{k_s}(t) = exp(-(\frac{\tau}{\sqrt{2}\Delta})^2)$. $E^{(\pm)}$ bezeichnet jeweils die positiven und negativen Frequenzkomponenten des emittierten elektrischen Feldes. Benutzt man $F_{k_s}(t)$ und die

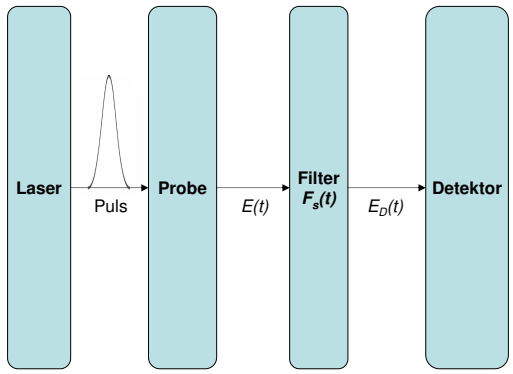

Abbildung 11: Messaufbau, der für die Berechnung der zeitaufgelösten Spektren verwendet wird.

freie E-Feld-Ausbreitung zwischen Probe und Detektor zum Beispiel in Richtung $\mathbf{r} = z\mathbf{e}_z$ und setzt $E^{\pm}(\mathbf{r},t) = E^{\pm}(z-ct) = \sum_k \sqrt{(\hbar\omega_k/2\epsilon_0 V)}e^{\pm ik\cdot z}c_k^{\dagger}(t))$, so erhält man:

$$\begin{aligned} S(z\mathbf{e}_z,\omega_{k_s},t) &= \sum_{k_1,k_2} \hbar\frac{\sqrt{\omega k_1 \omega k_2}}{2\epsilon_0 c^2 V}\langle c_{k_1}^{\dagger}c_{k_2}\rangle e^{-i(k_1-k_2)z} \\ &\times\ e^{-(\frac{k_1-k_s)c\Delta t}{\sqrt{2}})^2}e^{-(\frac{k_2-\omega_s)\Delta}{\sqrt{2}})^2}. \end{aligned} \tag{7}$$

Im Falle einer stationären Anregung (also vergleichsweise langen optischen Pulsen), kann die Zeitauflösung des Detektors als sehr lang gewählt werden ($\Delta \to \infty$). Als Folge gilt $S(\omega_{k_s},t) = \frac{\hbar\omega_{k_s}}{2\epsilon_0 c^2}n_{k_s} \approx t$[Kira99]. Die Gleichung ist nur für stationäre Anregungspulse gültig. Im quasi-stationären Grenzfall, können die Emissiondynamiken als langsam gegenüber dem Detektor angenommen werden und Gleichung (5) kann für die Berechnung der Spektren verwendet werden.

Bewegungsgleichungen

Das Emissionsspektrum wird für gepulste Anregung berechnet. Damit ist das äußere Lichtfeld gegeben durch:

$$E_l(\mathbf{r},t) = E_l(t)e^{i\mathbf{k}_l\cdot\mathbf{r}-i\omega_l t} + E_l^*(t)e^{-i\mathbf{k}_l\cdot\mathbf{r}+i\omega_l t}, \tag{8}$$

mit der zeitlichen Einhüllenden $E_l(t)$. Unter Verwendung der Heisenbergschen Bewegungsgleichung, einer Faktorisierung der Erwartungswerte mit einer Bornnäherung höherer Ordnung und der Annahme eines Phononenfeldbades erhält man schließlich einen Satz von Differentialgleichungen. Für eine ausführliche Motivation dieses Ansatzes und einer Diskussion einiger dafür relevanter Gleichungen siehe Referenz [Kabuss10]. An dieser Stelle soll lediglich eine grobe Übersicht erfolgen.

Um zeitaufgelöste Emssionsspektren zu berechnen, muss die Photonkohärenz $\langle c_{k1}^{\dagger}c_{k2}\rangle$ bekannt sein, die durch eine photonenassistierte Polarisation $\langle a_i^{\dagger}a_j c_{kn}^{(\dagger)}\rangle$ bestimmt wird, welche wiederum an Vielteilchenkorrelationen gekoppelt sind. Dieses Hierarchieproblem wird

mittels Faktorisierung der Elektronen-, Photonen- und Phononenoperatoren unter Verwendung einer Bornnäherung zweiter Ordnung aufgelöst. Um andere Vielteilchenwechselwirkungen zu berücksichtigen, wird die Konstante γ (Pure Dephasing) phänomenologisch in die Gleichung für die Polarisation hinzugefügt. Neben dem anregenden externen Laserfeld sowie phononen-assistierten Größen, muß die Dichte f_c im Leitungsband in die Rechnung miteinbezogen werden, da während des Lumineszenzprozesses eine Besetzung des höheren QP-Zustandes aufgebaut wird. Zusätzlich können die Vielteilchenoperatorkombinationen klären, ob ein Operator einem (phononen-assistiertem) Streuprozess beziehungsweise einem Lumineszenzprozess zuzuordnen ist. Also kann mithilfe des entwickelten Bewegungsgleichungssatzes der Urpsrung einer Emission ermittelt werden (resonante Lumineszenz, phononen-assistierte Lumineszenz, Rayleigh- sowie Raman-Streuung). Zusätzlich können diese Bewegungsgleichungen auch auf andere Halbleiternanostrkturen ausgeweitet werden.

Numerische Ergebnisse

Die Lumineszenz ist verbunden mit einer tatsächlichen Besetzung des Leitungsbandes, welche über spontane Emission zurückfällt. Dabei wird die Dynamik durch die Lebenszeit des höheren Energieniveaus bestimmt. Rayleigh- und Raman-Streuung sollten eng mit der Dynamik und den spektralen Eigenschaften des anregenden Laserfelden verknüpft sein.

Um die Emissionsdynamik der verschiedenen Streubeiträge zu untersuchen, werden für die numerischen Berechnungen Gauss-förmige Anregungspulse mit einer Halbwertsbreite von 2 ps angenommen, und die Zeitauflösung der Gauss'schen Filterfunktion $F_{k_s}(t)$ wird klein im Verhältnis zur Anregung gewählt (Δt =400 fs). Auf diese Weise können selbst die vergleichsweise schnellen Rayleigh- und Raman-Emissionen aufgelöst werden. Eine genügend gute Frequenzauflösung ist gewährleistet, weil die Zeitauflösung des Detektors auf 4 ps gesetzt wird.

Abb.12 zeigt mit Gleichung (5) berechnete Emissionsspektren im Frequenzraum für verschiedene Zeitpunkte nach der gepulsten Laseranregung (zwischen 5,5 und 15 ps). Die hauptsächliche Lumineszenzemission wurde auf 0 meV gesetzt. Die kohärenten Streuanteile von Rayleigh (1,51 eV) und Raman (in einem Abstand von 36,4 meV zum Anregungslaser) sind im Vergleich zu den Lumineszenzanteilen spektral viel schärfer (aufgrund der großen Breite des stationären Anregungspulses) und besitzen ein erheblich schnelleres An- und Abklingen. Dies verdeutlicht Abb.13, in der die zeitliche Entwicklung der verschiedenen Emissionen mithilfe von Gleichung (7) berechnet wurde. Die kohärenten Streuanteile weisen als Folge der schnellen Dynamik der Anregung und der mikroskopischen Polarisation ein Gauss-förmiges An- und Abklingverhalten (sowohl im Zeit- als auch im Frequenzbereich) auf. Zum Zeitpunkt von 9 ps wird das Spektrum von den kohärenten Raman- und Rayleight-Streuanteilen dominiert. Nach 12 ps, wenn neben des Anregungspulses auch die kohärenten Streuprozesse abgeklungen sind, wird das Spektrum vollständig von der Lumineszenz sowie der phononen-assistierten Lumineszenz bestimmt. Da quantisierte Emissionen berechnet wurden, gehen die Größen, die die Emissionsdynamik bestimmen, in die Gleichungen über eine Kopplung an die quantenoptische Mode ein. Damit kann also das zeitliche Verhalten über die Auswertung der Bewegungsgleichungen abgeschätzt werden. Dies kann zu bestimmten Emissionsprozessen zugeordnet werden, wenn der Einfluß der

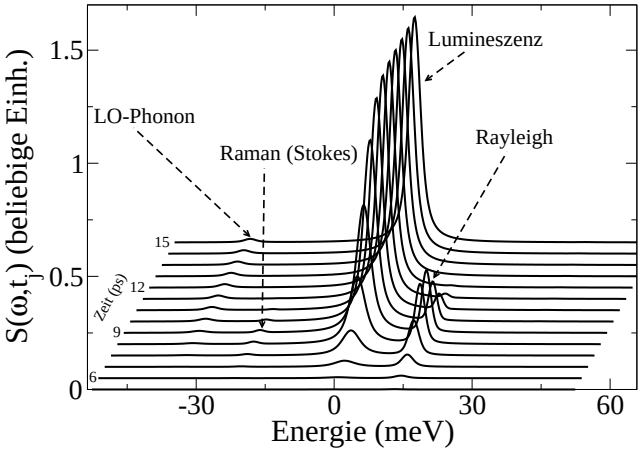

Abbildung 12: Emissionspektren eines Quantenpunktes (Lumineszenzemission wurde auf 0 meV gesetzt) zwischen 5,5 und 15 ps. Die Spektren wurden für kohärenter Anregung mit einem 2 ps Puls bei eine Temperatur von 77 K und einer Zeitauflösung von 400 fs berechnet.

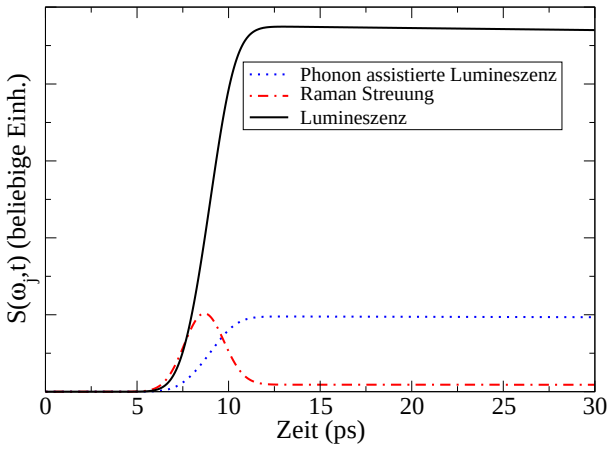

Abbildung 13: Zeitentwicklung von Lumineszenz (schwarze Linie), phononen-assistierte Lumineszenz (blaue Transiente) und Raman-Streubeitrag (rote Linie) unter Anregung mit einem 2 ps Laserpuls.

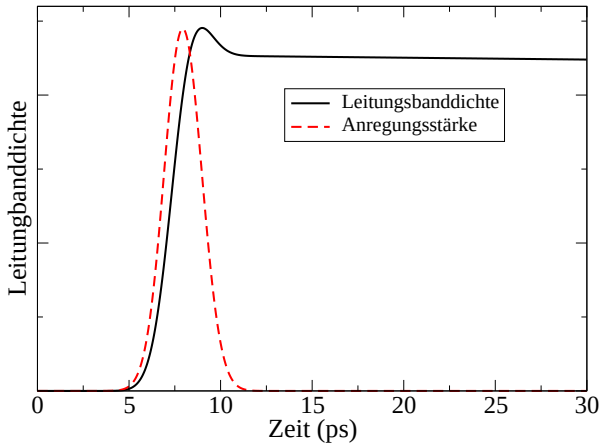

Abbildung 14: Zeitliche Entwicklung der Leitungsbanddichte (durchgezogene Linie) und des Anregungspulses (gestrichelte Linie).

entsprechenden Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren gedeutet wird.

Die Terme, die für die Lumineszenzemission relevant sind, hängen von der Besetzung der Leitungsbandniveaus ab. Die Leitungsbanddichte klingt mit einer strahlenden Dephasierungsrate von $\tilde{\gamma} = \frac{1}{500\,ps}$ aufgrund von spontaner Emission ab. Dies bestimmt das zeitliche Verhalten der Emissionen. Also besitzen die Lumineszenzprozesse ein Abklingverhalten, das vergleichbar mit der Dynamik der Leitungsbanddichte ist (vergleiche dazu Abb.14). Die kohärenten Anteile werden nicht von der Zeitentwicklung der Besetzungsdichte bestimmt. Hier geschieht dies natürlich jeweils über das zeitliche Verhalten des Anregungspulses und der mikroskopischen Polarisation. Ihre Linienform ist allerdings sowohl mit der Leitungsbanddichte als auch der Anregungspulsbreite verknüpft.

Zusammenfassend zu den theoretischen Berechnungen kann gesagt werden, dass der Korrelationsexpansionsansatz zur Dichtematrix genutzt werden kann, um die Dynamik von Lumineszenzprozessen und Raman-Streuprozessen eines Zweiniveau-Halbleiterquantenpunktes (der an LO-Phononen gekoppelt ist) zu beschreiben. Die Emissionsdynamik ermöglicht eine Diskriminierung der verschiedenen Lumineszenz- und Streuanteile über das zeitliche An- und Abklingverhalten.

3.2 Die InAs/GaAs-Quantenpunktprobe

Um den Einfluss der Elektron-Phonon-Kopplung auf Rekombinationsprozesse optisch angeregter, elektronischer Zustände experimentell zu untersuchen, wurde eine InAs/GaAs-Quantenpunktprobe ausgewählt, bei der der erste angeregte Zustand energetisch um etwa drei LO-Phononenenergien von der Grundzustandsenergie entfernt ist (vergleiche dazu Abb.16). Von Marcinkevicius et.al. konnte gezeigt werden, dass für Proben, bei denen die elektronischen Energienieveaus um LO-Phononenenergien separiert sind, eine effizientere Elektronenrelaxation über LO-Phononen beobachtbar ist[Marcinkevicius01]. Die hier untersuchte Probe wurde mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) auf einem GaAs(100)-Substrat gewachsen. Die Wachstumssequenz war dabei wie folgt:

	GaAs-Substrat
300 nm	**GaAs**
100 nm	$\mathbf{Al_{0.3}Ga_{0.7}As}$
0,7 nm	**InAs**-Quantenpunkte (2,3 Monolagen)
0,6 nm	**AlAs**-Cap-Schicht (2,0 Monolagen)
4 nm	$\mathbf{In_{0.25}Al_{0.75}As}$
970 nm	**GaAs**
100 nm	$\mathbf{Al_{0.3}Ga_{0.7}As}$
10 nm	**GaAs**

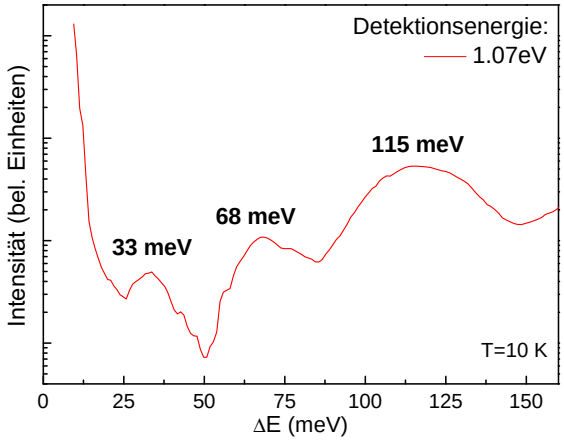

Abbildung 15: Photolumineszenzanregungsspektrum (PLE) bei 10 K von InAs-Quantenpunkten.

In Abb.15 ist ein typisches Photolumineszenzanregungsspektrum (PLE) der InAs-Quantenpunkte bei einer Temperatur von 10 K dargestellt. Dabei entspricht die x-Achse der Anregungsenergie als Differenz ΔE zur festen Detektionsenergie (in diesem Fall bei 1,07 eV, während als y-Achse die Intensität der Grundzustandslumineszenz als Funktion von ΔE

aufgetragen ist. Die Lumineszenz des Grundzustandes dieser InAs-Quantenpunkte ist offenbar besonders gut über Phononen anregbar, was sich in den Anregungsmaxima bei etwa 33 meV bzw. 68 meV im PLE-Spektrum widerspiegelt. Die Interpretation des Anregungsmaximums in einem Abstand von 115 meV zur Detektionsenergie ist zunächst schwierig. Es könnte sich um den ersten angeregten Zustand der Quantenpunkte handeln, jedoch ist der energetische Abstand dafür verhältnismäßig groß. Auch die Interpretation als Dreiphononenanregungskanal ist aus demselben Grund schwierig. Das Anregbarkeitsverhalten dieser Probe ist vergleichbar mit der Beobachtung von Heitz *et.al.*[Heitz00]. Es ist zu erwarten, dass sowohl die optischen als auch ganz besonders die dynamischen Eigenschaften der InAs-Quantenpunkte dadurch maßgeblich beeinflusst werden sollten.

3.3 Zeitintegrierte PL unter nicht-resonanter und resonanter Anregung

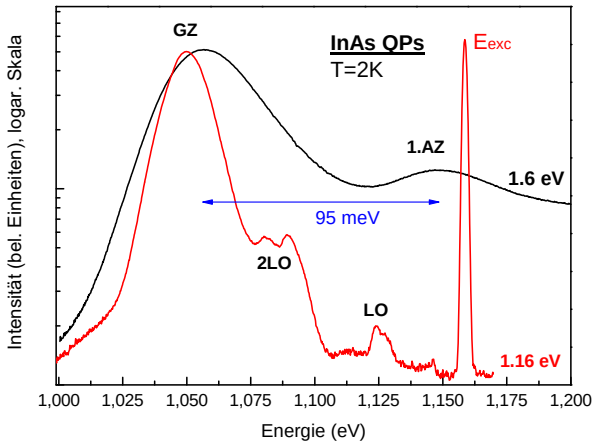

Abbildung 16: Vergleich nicht-reonant (schwarz) bzw. resonant angeregter (rot) Photolumineszenzspektren von InAs-Quantenpunkten bei 2 K. Der Pfeil deutet den Energieabstand zwischen Grundzustand und erstem angeregten Zustand der Quantenpunkte an.

Typische Photolumineszenzspektren für nicht-resonante (1,6 eV) und resonante Anregung (1,158 eV) des InAs-Quantenpunktensembles bei einer Temperatur von 2 K sind in Abb.16 gezeigt. Das schwarze Spektrum entspricht dabei dem nicht-resonanten Fall (1,6 eV). Hier erfolgt die Anregung mit einer höheren Energie als der der GaAs-Bandlücke ($E_{GaAs} \approx$1,52 eV). Auf diese Weise erhält man ein Übersichtspektrum der Probe. Es zeigt sich, dass das Maximum der Grundzustandsemission (GZ) um etwa 1,055 eV zentriert ist, während der dazugehörige, erste angeregte Zustand (1.AZ) bei einer Energie von 1,15 eV zu beobachten ist. Außerdem kann eine Halbwertsbreite von etwa 50 meV für den Grundzustand beobachtet werden, was die breite Größenverteilung des Quantenpunktensembles

widerspiegelt. Das rote Spektrum in Abb.16 ist ein repräsentatives PL-Spektrum unter resonanter Anregung (an diesem Falle mit einer Anregungsenergie von 1,158 eV). Unter diesen Umständen verändert sich das Lumineszenzspektrum im Vergleich zum nicht-resonanten Fall enorm. Die scharfe Linie auf der höherenergetischen Seite des Spektrums entspricht der Laserlinie (Rayleigh-Komponente). Man erkennt, dass in diesem Falle die Anregung resonant zum ersten angeregten Zustand der InAs-Quantenpunkte ist. Es sei noch erwähnt, dass die Anregung resonant zu einer geringeren Anzahl von vergleichsweise kleineren Quantenpunkten erfolgt, deren Grundzustand nicht notwendigerweise bei 1,055 eV, sondern bei leicht verschobenen Energien liegt. Die Emission bei 1,05 eV unter resonanter Anregung weist eine Halbwertsbreite von 25 meV auf, was nur noch etwa der Hälfte im Vergleich zum nicht-resonanten Fall entspricht. Eine Abnahme der Grundzustandslumineszenzhalbwertsbreite ist mit dem Flourescence-Line-Narrowing-Effekt zu erklären[Bissiri01]. Dadurch, dass unter resonanter Anregung jetzt nur noch ein gewisses Subensemble an Quantenpunkten angeregt wird, ist die spektrale Verbreiterung der Lumineszenz durch die geringere Größenverteilung folglich auch weniger stark ausgeprägt. Die Halbwertsbreite sollte dann zwangsläufig abnehmen. Trotzdem ist die Zuordnung der Lumineszenz um 1,05 eV als reine Grundzustandsemission mittels lediglich eines PL-Spektrums nicht so eindeutig, wie sie vielleicht zunächst erscheinen mag. Mehrere andere Möglichkeiten sollte zusätzlich auch in Betracht gezogen werden:

(i) Ein 3LO-phononenassistierter Rekombinationsprozess des ersten angeregten Zustandes eines gewissen Subensembles von Quantenpunkten. Dieser angeregte Zustand ist wie erwähnt resonant zur Laseranregung.

(ii) Ein 3LO-phononenassistierter Prozess des Grundzustandes von vergleichsweise sehr kleinen Quantenpunkten, dessen energetische Position mit der Laseranregung zusammenfällt.

(iii) Ein 3LO-Prozess unter Outgoing-Resonance-Bedingungen, bei welchem die aktiven elektronischen Zustände zu jedem Zeitpunkt der Grundzustand eines gewissen Subensembles von Quantenpunkten sind.

Die Zuordnung des Prozesses zu einem der denkbaren Kandidaten ist zum Teil deshalb so schwierig, weil die energetische Separation zwischen Grundzustand und erstem angeregtem Zustand eben genau der Energie eines 3LO-Phonons entspricht. Auf diese Problematik wird im Verlauf des nächsten Unterkapitels noch genauer eingegangen. Doch zunächst muß noch auf einen wichtigen Unterschied zwischen den nicht-resonanten und den resonanten Spektren eingegangen werden.

Zusätzlich zur Halbwertsbreitenverringerung der Grundzustandslumineszenz tritt ein zusätzlicher Effekt auf. Mehrere zusätzliche Emissionslinie sind im resonanten Fall beobachtbar (siehe wieder Abb.16). Es gibt eine Doppelstruktur bei 1,129 eV bzw. 1,125 eV (entsprechend um 31,1 meV bzw. 34,6 meV unterhalb der Anregungsenergie). Die 31,1 nm-Linie wird üblicherweise der InAs-Quantenpunkt-LO-Phononenmode zugeordnet, während die 34,6 meV-Linie möglicherweise von einer vibronischen Interface-Mode der Quantenpunkte stammt[Heitz96]. Neben dieser ersten Doppelstruktur ist noch eine weitere bei 1,091 eV bzw. 1,082 eV beobachtbar, also in einem energetischen Abstand von 68,9 meV bzw.

77,8 meV zum anregenden Laser. Diese Emissionsenergien entsprechen den 2LO-Prozessen der bereits diskutierten Übergänge. Die Interpretation all dieser Linien als Prozesse, bei denen Phononen involviert sind, ist naheliegend, da aus PLE-Spektren eine starke Wechselwirkung mit Phononen in dieser QP-Probe aufgezeigt werden konnte (siehe dazu Abb.15). Zusätzlich treten noch sehr schwache Linien bei etwa 40 meV unterhalb der Anregungsenergie auf, die mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit als 1LO-Moden aus der AlAs-Schicht (Deckschicht oberhalb der InAs-Quantenpunkte) identifiziert werden können. Da aber lediglich Phononen, die von den InAs-Quantenpunkten stammen, mit den elektronischen Zuständen dieser Quantenpunkte in Verbindung stehen, soll der weitere Fokus auf den 1LO-Moden bei 31,1 meV und 34,6 meV sowie deren 2LO-Mode um 68,9 meV liegen. Da auch bei diesen phononenassistierten Prozessen die involvierten, elektronischen Zustände nicht eindeutig aus den PL-Spektren abgeleitet werden können, sind folglich auch die bereits zuvor diskutierten verschiedenen möglichen Ursprünge (i), (ii) und (iii) zunächst ebenfalls denkbar. Um dieses Problem näher zu beleuchten, wurden weitere PL-Spektren mit variierenden Anregungsenergien aufgenommen. Dies soll das Thema des folgenden Unterkapitels sein.

3.3.1 Einfluß der Anregungswellenlänge auf die Lumineszenz

In Abb.17 sind Photolumineszenzspektren bei 2 K mit unterschiedlichen Anregungsenergien - das heißt dementsprechend unter variierenden Resonanzbedingungen - dargestellt, wobei das Spektrum in Abb.17(a) dem Spektrum mit der Anregungsenergie von 1,158 eV aus Abb.16 entspricht. Eindeutig erkennbar ist, dass sich mit abnehmender Anregungsenergie, die 1LO- bzw. 2LO-Emissionen nahezu parallel mit dem anregenden Laser zu kleineren Energie hin verschieben. Dies ist in Abb.18 unzweifelhaft ersichtlich, in welcher die energetischen Positionen der maximalen Emissionsintensiät der verschiedenen Linien als Funktion der Anregungsenergie aufgetragen sind. Lediglich die Grundzustandsemission verhält sich davon abweichend. Sie weist zwar ebenfalls eine Verschiebung zu kleineren Energie auf, jedoch ist diese Verschiebung weniger stark und insbesondere eindeutig nicht parallel zur Anregung. Dieses Ergebnis ist ein direkter Beleg für die Tatsache, dass es sich bei den 1LO- bzw. 2LO-Emissionen tatsächlich um Phononenmoden handeln, während es zusätzlich einen Hinweis darauf liefert, dass die als Grundzustand bezeichnete Linie hauptsächlich von den InAs-Quantenpunktgrundzuständen hervorgerufen wird und höchstens lediglich ein kleinerer Beitrag von einem möglichen 3LO-Prozess herrührt. Von einer reinen Grundzustandsemission müßte man eigentlich erwarten, dass die Linie energetisch unabhängig von der Anregung bleibt. In Abb.18 müßte dann also die GZ-Linie parallel zur x-Achse verlaufen. Da jedoch die Laserenergie resonant zum elektronischen System der Quantenpunkte ist, werden sicherlich bestimmte Subensembles von Quantenpunkten besonders stark angeregt. Bei Veränderung der Anregungsenergie variienden dann auch diese Subensembles in Hinblick auf Größe, Form oder chemischer Komposition. Als Folge verschiebt sich dann auch die Grundzustandslumineszenz. Dies wäre dann eine denkbare Erklärung für das in Abb.18 beobachtbare GZ-Verhalten.
Es ist jedoch nicht nur von Interesse, die energetische Position der unterschiedlichen Emissionen zu betrachten. Genauso wichtig ist es ebenso, das Resonanzverhalten der phono-

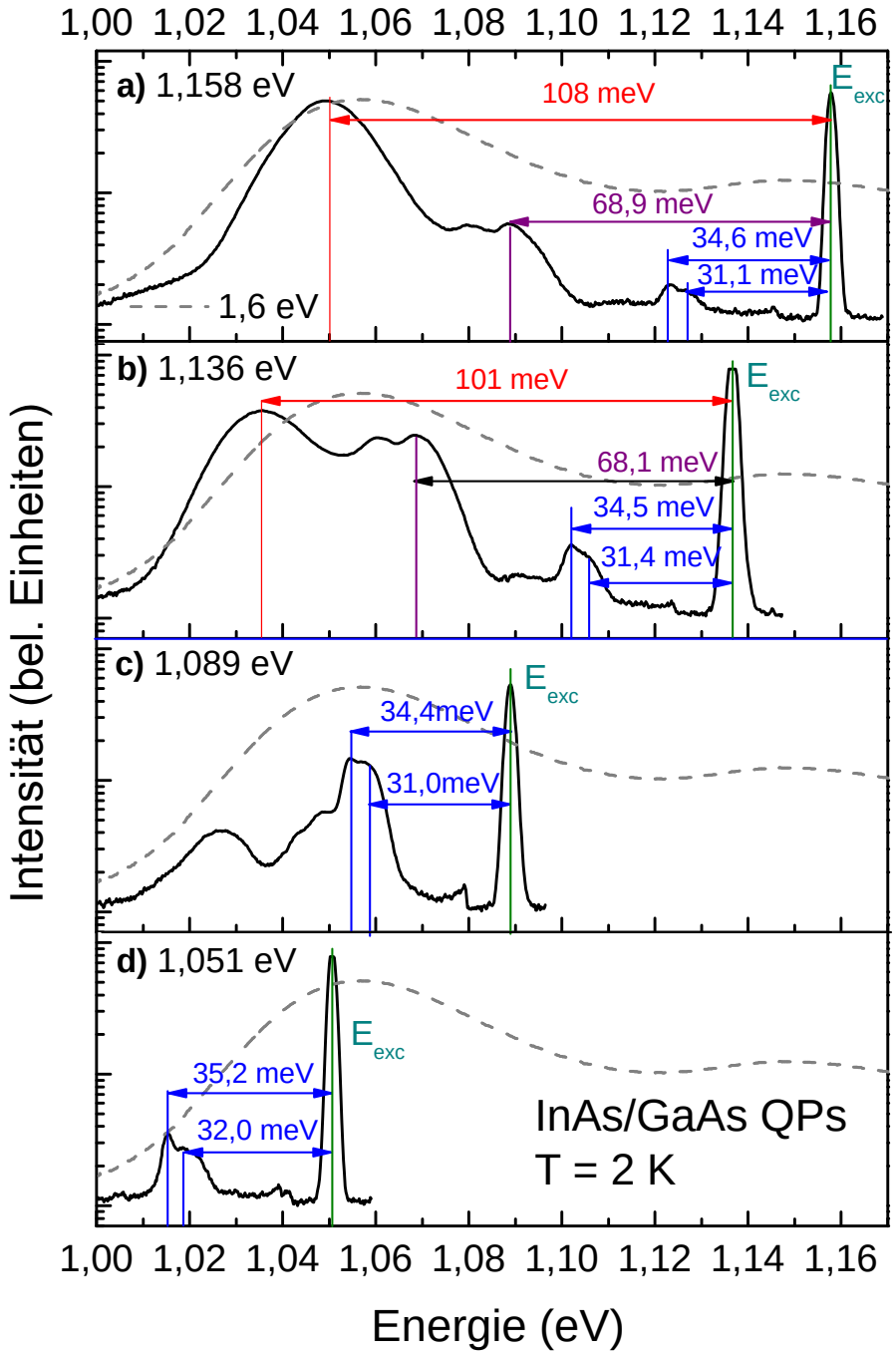

Abbildung 17: Photolumineszenzspektren bei 2 K von InAs-Quantenpunkten für unterschiedliche, resonante Anregungsenergien von (a)1,158 eV, (b)1,136 eV, (c)1,089 eV sowie (d)1,051 eV. Die Pfeile veranschaulichen den energetischen Abstand optischer Phononen ersten (1LO, blau) und zweiter (2LO, lila) Ordnung bzw. des QP-Grundzustandes (rot). Das PL-Spektrum mit gestrichelter Linie entspricht dem nicht-resonanten Fall (E_{exc}=1,6 eV).

nischen Linien genauer zu untersuchen. In Abb.19 sind die Resonanzprofile der 1LO- bzw. 2LO-Intensitäten als Funktion der Anregungsenergie aufgetragen. Mit steigender Energie, mit der die Quantenpunkte angeregt werden, nimmt die Intensität der 1LO-Mode (schwarze Rechtecke) zu. Dies geschieht bis das Maximum bei einer Anregung von 1,089 eV erreicht wird. Dieser Wert entspricht etwa der Energie von einem LO-Phononen zusätzlich zum Quantenpunktgrundzustand. Es ist inbesondere hervorzuheben, dass dieses starke Resonanzverhalten ausschließlich im Fall der „Outgoing"-Resonanz beobachtbar ist ($E_{Anr} = E_{GZ} + E_{1LO}$), während keine Resonanz im „Incoming"-Fall ($E_{Anr} = E_{GZ}$) feststellbar ist. Dieses Verhalten wurde zuvor auch schon bei den phononen-assistierten Lumineszenzprozessen an In(Ga)As-Quantenpunkten beobachtet und trifft auch für die 2LO-Mode zu. Das entsprechende Resonanzmaximum tritt im 2LO-Fall auf, wenn die Anregunsenergie um 2LO-Phononenenergien zum Grundzustand entfernt ist. Die im Vergleich zur 1LO-Mode höhere Maximalintensität der 2LO-Mode kommt aufgrund der Phononenwellenvektorabhängigkeit ($\vec{\mathbf{q}}$) der Elektron-Phonon-Fröhlich-Wechselwirkung[Cardona82] zustande. Im Resonanzfall wird diese Wechselwirkung erheblich verstärkt, was zu einem maximalen Streuquerschnitt für Phononen führt, die folgende Bedingung erfüllen:
$|\vec{\mathbf{q}}|a_B \approx 2$,
wobei a_B der Bohrradius des Exzitons ist. Folglich wird die Elektron-Phonon-Fröhlich-Wechselwirkung für den 2LO-Prozess stärker sein im Vergleich zum 1LO.

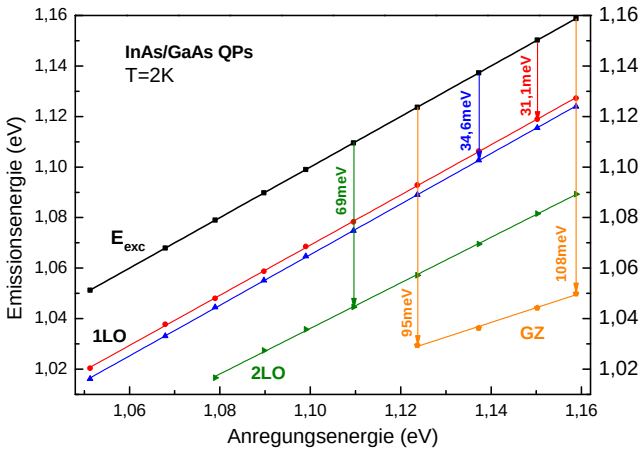

Abbildung 18: Energetische Position der maximalen Emissionsintensität der verschiedenen Linien als Funktion der Anregungsenergie.

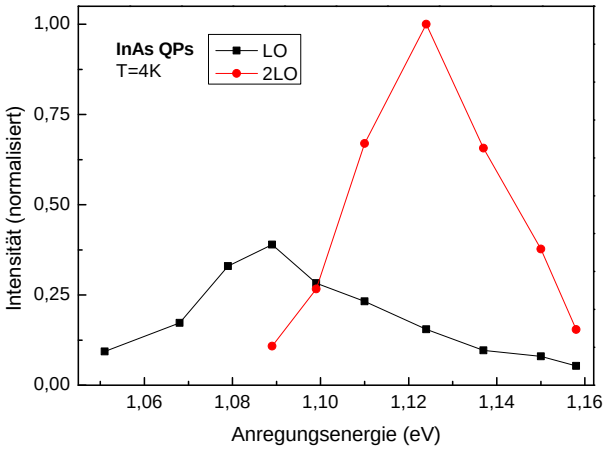

Abbildung 19: Anregungsabhängigkeit der 1LO- (schwarze Rechtecke) bzw. 2LO-Mode (rote Punkte); normalisiert auf die maximale Intensität der 2LO-Mode.

3.3.2 Temperaturabhängigkeit

Die Temperaturabhängigkeit der zuvor beobachteten Übergänge wurde für unterschiedliche Anregungsenergien untersucht. In Abb. 20 ist eine Temperaturserie zwischen 5 und 300 K[1] für eine Laseranregung mit 1,136 eV zu sehen. Dies entspricht dem Spektrum (b) aus Abb.17. In diesem repräsentativen Beispiel kann sowohl die Lumineszenz des Quantenpunktgrundzustandes als auch die Emission der 1LO- bzw. 2LO-Linien als Funktion der Temperatur besonders gut untersucht werden, da in diesem Falle diese Linien optimal beobachtbar sind in Hinsicht auf Emissionsintensität und spaktraler Separiertheit.

Betrachtet man nun die Veränderung der Spektren mit steigender Temperatur, so sind fundamentale Unterschiede zwischen der Grundzustandlumineszenz und der 1LO- bzw. 2LO-Emissionen offensichtlicht. Der erste Unterschied betrifft die Emissionsintensität. Die Intensität des Grundzustandes steigt an bis ein Maximum bei einer Temperatur von etwa 130 K erreicht ist. Für höhere Temperaturen sinkt die Intensität dann wieder. Die 1LO- bzw. 2LO-Linien zeigen ein anderes Verhalten. Während die Intensität der phononischen Linien bis ca. 50 K in etwa konstant bleibt (eine Temperatur bei der der Grundzustand bereits einen erheblichen Anstieg aufweist), nimmt sie für steigende Temperaturen oberhalb von 50 K monoton ab. Auf dieses Verhalten wird in Abb.21 veranschaulicht. Die Intensitätszunahme des Grundzustandes kann erklärt werden, wenn man das Auftreten eines sogenannten Phononen-Bottleneck-Effektes für niedrige Temperaturen in die Überlegungen mit einbezieht. Wenn resonant in den ersten angeregten Zustand eingestrahlt wird, kann hierbei die Ladungsträgerrelaxation zum Grundzustand bei tiefen Temperatu-

[1] Angegeben ist an dieser Stelle lediglich die Temperatur, die vom Temperaturcontroller abgelesen werden kann. Die tatsächliche Probentemperatur ist sicherlich etwas höher, da die Laseranregung die Probe lokal erwärmt.

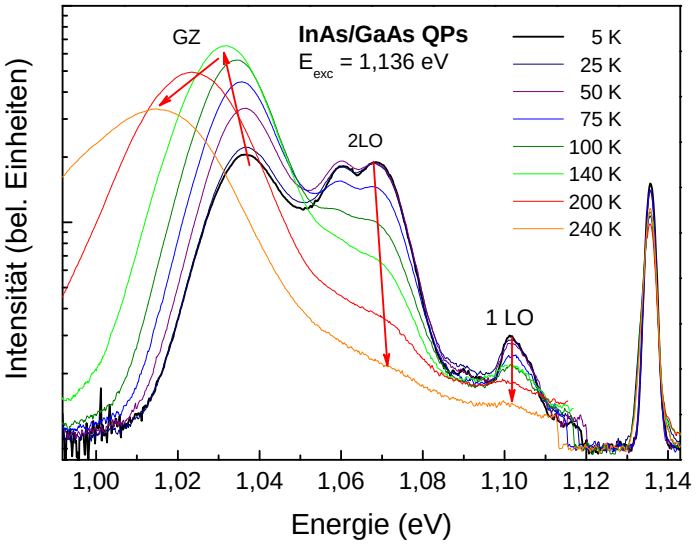

Abbildung 20: Photolumineszenzspektren unter resonanter Angeregung (E_{exc}=1,136 eV) bei unterschiedlichen Temperaturen.

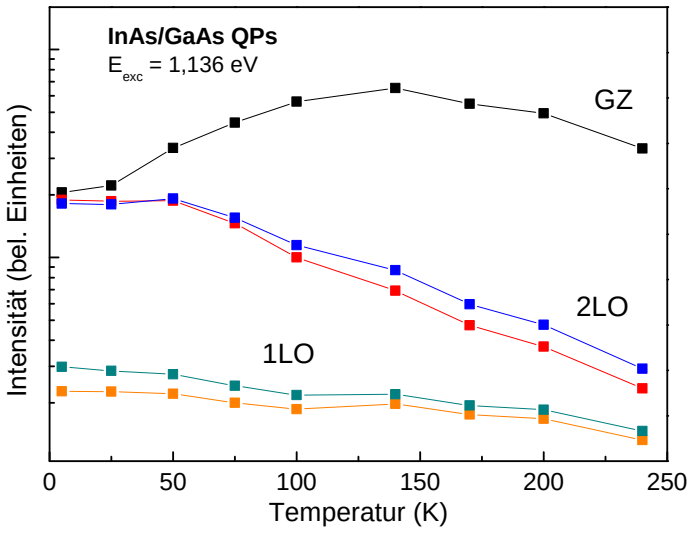

Abbildung 21: Die maximalen Intensiäten von LO, 2LO und Grundzustand als Funktion der Temperatur unter resonanter Anregung (E_{exc}=1,136 eV).

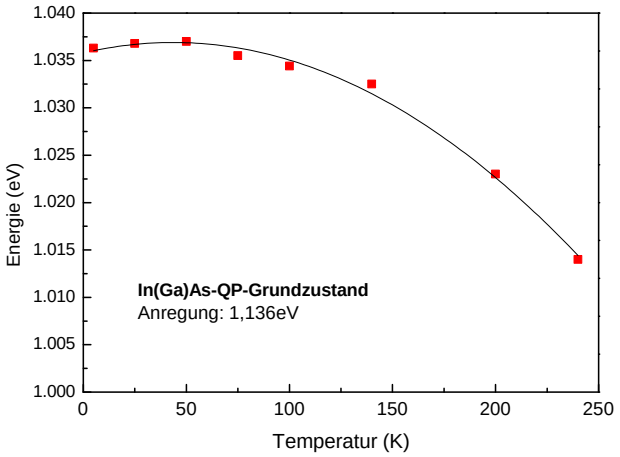

Abbildung 22: Emissionsenergie des QP-Grundzustandes als Funktion der Temperatur. Die Verschiebung folgt einem Varshni-Verhalten.

ren durch eine bevorzugte Emission von Phononen teilweise (oder in manchen Fällen sogar stark) unterdrückt werden. Wird nun die Temperatur erhöht, so wird dieses Unterdrücken aufgehoben und die angeregten Elektronen können erfolgreich in den Quantenpunktgrundzustand gelangen, was in der Folge zu einer Zunahme der Lumineszenzintensität führt. Es ist noch wichtig zu erwähnen, dass die hier untersuchten Quantenpunkte selbst bei hohen Temperaturen noch eine ungewöhnlich starke Grundzustandslumineszenz ausweisen: Selbst bei Zimmertemperatur entspricht die absolute Intensität aufgrund des aufgehobenen Phonon-Bottleneck-Effektes noch dem Wert, der bei 5 K gemessen wurde.

Der zweite fundamentale Unterschied zwischen Quantenpunktgrundzustands- und 1LO-/2LO-Moden findet sich im temperaturabhängigen Verschieben der Grundzustandslumineszenz zu kleineren Energien hin. Diese Verschiebung ist in Abb.22 als Funktion der Temperatur aufgetragen und folgt einem Varshni-Verhalten[Varshni67]. Die phononischen Emssionen weisen dieses Verhalten nicht auf und die energetische Position der 1LO- bzw. 2LO-Linien bleibt nahezu unverändert.

In Abb.23 ist noch ein weiteres Beispiel für das temperaturabhängige Verhalten der für diese Arbeit untersuchten InAs-Quantenpunkte dargstellt. In diesem Falle beträgt die Anregungsenergie 1,052 eV, was in etwa dem Spektrum (d) aus Abb.17 entspricht. Es ist deshalb von besonderem Interesse, da hier resonant in das Intensitätsmaximum des Grundzustandes eingestrahlt wird und bei tiefen Temperaturen lediglich die 1LO-Emission beobachtbar ist. Für steigende Temperaturen tritt jedoch eine Emission bei etwa 1,022 eV auf, die mit erhöhter Zunahme der Temperatur zu kleineren Energien verschiebt. Dieses Verhalten deutet auf eine exzitonische Lumineszenz hin. Diese Lumineszenz dürfte dem Grundzustand eines Subensembles von besonders großen Quantenpunkten zu zuordnen sein, die bei der hier gewählten Anregungsenergie offenbar durchaus noch anregbar sind.

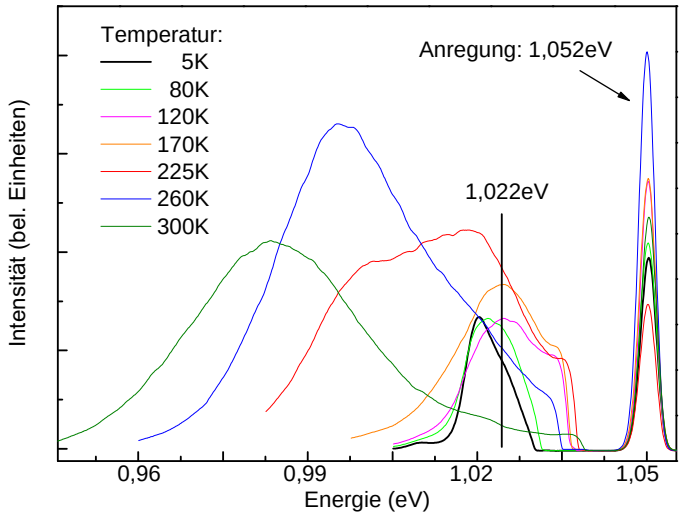

Abbildung 23: Photolumineszenzspektren unter resonanter Anregung (E_{exc}=1,052 eV) bei unterschiedlichen Temperaturen.

Die Grundzustandslumineszenz dieses Subensembles wird offensichtlich bei tiefen Temperaturen nahezu vollständig zugunsten einer 1LO-Emission unterdrückt und wird erst dann vorherrschend, sobald eine gewisse Temperatur überschritten wird. In dem magentafarbenen Spektrum (aufgenommen bei einer Temperatur von 120 K) ist die 1LO-Linie um 1,02 eV nur noch schwach erkennbar, während die Lumineszenz um 1,022 eV vergleichswiese stark ausgeprägt ist. Für diese Temperatur ist die temperaturbedingte Verschiebung der exzitonischen Lumineszenz noch relativ gering; eine Tatsache, die diese Aussage überhaupt erst ermöglicht.

3.4 Dynamische Eigenschaften der InAs-Quantenpunkte

In diesem Unterkapitel soll das dynamische Verhalten der im vorhergehenden Abschnitt dieser Arbeit beobachteten Übergänge und Emissionen untersucht werden. Wie sich herausstellen wird, tragen die Erkenntnisse über die Dynamik der Übergänge wesentlich zum Verständnis des Ursprunges der Exziton-Phonon-Wechselwirkung in dem hier untersuchten InAs-Quantenpunktsystem bei. Der Fokus liegt auch in diesem Kapitel auf der resonanten Anregung, da die Resonanzbedingung für die Vielzahl an optischen Emissionen (siehe dazu noch einmal Abb.17) verantwortlich ist. Wenn Quantenpunkte nicht resonant angeregt werden, so laufen Rekombinations- und Relaxationsprozesse generell schneller ab, weil in virtuelle Niveaus angeregt wird. Unter resonanter Anregung laufen Relaxationmechanismen jedoch in der Kohärenzzeit des resonanten Zustandes ab.

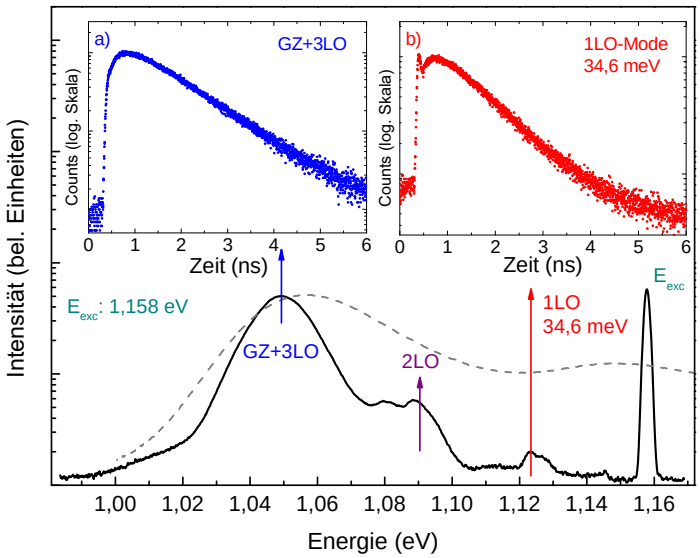

Abbildung 24: Zeitintegriertes PL-Spektrum unter resonanter Anregung (E_{exc}=1,158 eV) und die gemessene Dynamik von (a) dem Grundzustand und/oder der 3LO-Energie sowie (b) der 1LO-Mode (34,6 meV).

In Abb.24 ist das zeitintegrierte PL-Spektrum bei 2 K unter Resonanz (E_{exc}=1,158 eV) zum Maximum der Größenverteilung des ersten angeregten Zustandes, welche ungefähr proportional zur Intensität aus dem PL-Spektrum unter nicht-resonanter Anregung ist (siehe dazu das gestrichelte Spektrum in Abb.24). Wie schon bereits zuvor diskutiert wurde, ist dies eine ausgesprochen besondere Anregungsbedingung. Die Energiedifferenz zwischen erstem angeregten Zustand und dem Grundzustand entspricht in diesem Fall in etwa der Energie eines 3LO-Prozesses. Deshalb können die zunächst angeregten Ladungsträger auf des Energieniveau des Grundzustandes gestreut werden - über die Emission von drei LO-Phononen. Das reonante PL-Spektrum in Abb.24 wird hauptsächlich von drei Übergängen bestimmt, die sich bei 1,25 eV (1LO), 1,09 eV (2LO) und 1,05 eV (GS+3LO) befinden.

Abb.24(a) zeigt die Dynamik der Grundzustandslumineszenz (gemessen bei 1,05 eV), während in Abb.24(b) eine Transiente der 1LO-Emission zu sehen ist (gemessen bei 1,25 eV). Dabei ist es zunächst ersichtlich, dass sich die 1LO-Transiente aus zwei verschiedenen Prozessen zusammen setzt: einer vergleichsweisen schnellen und einer langsamen Komponente. Eine vergleichbare Beobachtung konnte bereits (wie zuvor in Kapitel 3.1.2 erläutert) für In(Ga)As/GaAs-Quantenpunkten gemacht werden[Werner08].

Alle gemessenen Transienten wurde mit einem multiexponentiellen Dekonvolutionverfahren mittels der ebenfalls gemessenen Systemantwortcharakteristik gefittet. Für die Grundzustandstransiente wurden zwei exponentielle Fitparameter gewählt, die jeweils für die beobachteten Ankling- (rise τ_r) bzw. Abklingzeiten (decay τ_{d1}) stehen. Das Fitverfahren resultierte für die Grundzustandslumineszenz in einer Anklingzeit τ_r=270 ps bzw. einer Abklingkonstante τ_{d1}=1 ns. Im Falle der 1LO-Emission wurde ein zusätzlicher exponentieller Parameter in das Fitmodell einbezogen, der die beobachtete kurze Abklingkonstante (τ_{d2}) berücksichtigt. Das Ergebnis sind folgende Konstanten: τ_r=300 ps, τ_{d1}=1 ns und τ_{d2} $\leq$30 ps. Was die relativ kurze Abklingkonstante betrifft, kann lediglich eine Obergrenze angegeben werden, da sich der tatsächliche Wert unterhalb der Zeitauflösung des experimentellen Aufbaus (ungefähr 30 ps) befinden dürfte. Da τ_{d1} gleich groß ist wie das Abklingen der Grundzustandslumineszenz liegt die Vermutung nahe, dass dieser Prozess über die Rekombination des Grundzustandes verknüpft ist. Dies wird durch das Resonanzverhalten der Intensität der 1LO-Phononen-Mode ebenfalls unterstützt, die unter ausgehender Resonanz zum Grundzustand am intensivsten ist (siehe dazu erneut Abb.19).

Der augenscheinliche Hauptunterschied zwischen den beiden Transienten in Abb.24 ist natürlich das Auftreten einer zusätzlichen, schnellen Abklingkonstante τ_{d2}, die ausschließlich bei der 1LO-Linie beobachtet wird. Tatsächlich kann diese kurze Komponente jedoch nur in einem spektral sehr scharfen Bereich um etwa 34,4 meV von der anregenden Laserenergie entfernt gemessen werden. Misst man eine Transiente bei einer leicht verschobenen Detektionsenergie, so ist lediglich die langsame Abklingkonstante τ_{d1} beobachtbar.

Eine Zuordnung dieser vergleichsweise kurzlebigen Komponente zu einem kohärenten Raman-Streuprozess ist naheliegend. Dieser Streuprozess rührt von der gesamten Quantenpunktverteilung her, wobei es allerdings sehr wahrscheinlich ist, dass er von Quantenpunkten dominiert wird, die die Outgoing-Resonanzbedingung erfüllen, da unter diesen Umständen der Raman-Wirkungsquerschnitt erheblich erhöht wird.

Um die Zuordnung des Raman-Streuprozesses noch weiter zu unterstützen wurden theoretische Berechnungen gemacht, bei denen eine mikroskopische Bewegungsgleichung als Ansatz gewählt wurde, wobei der Dichte-Matrix-Formalismus gewählt wurde innerhalb einer Born-Näherung höherer Ordnung für Quantenemissionen, die durch Phononenprozesse assistiert werden. Ergebnisse dieser Rechnungen sind in Kapitel 3.1.3 dieser Arbeit zu finden.

In Abb.26 wird eine um 34,6 meV vom Laser entfernt gemessene PL-Transiente (rote Punkte) der 1LO-Emission bei einer Temperatur von 75 K für eine Anregungsenergie von E_{exc}=1,136 eV mit den theoretischen Berechnungen (blaue Linie) verglichen. Die Übereinstimmung zwischen dem theoretischen und dem experimentellen Verhalten ist durchaus zufriedenstellend. Der kohärente Raman-Streuprozess (τ_{d2}) und der inkohärente Phononen-

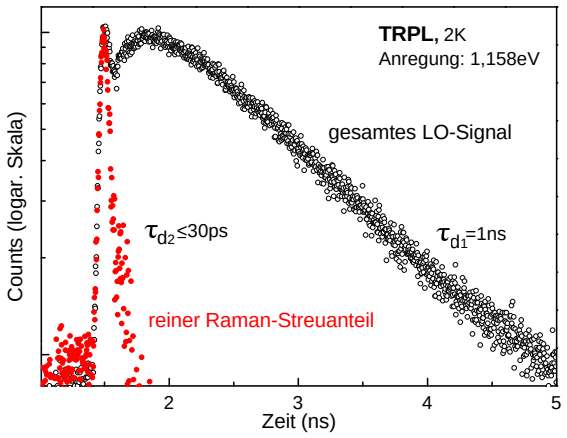

Abbildung 25: Transiente der LO-Mode (2 K, E_{exc}=1,158 eV): gesamt (schwarz) bzw. nur der Raman-Streuanteil (rot).

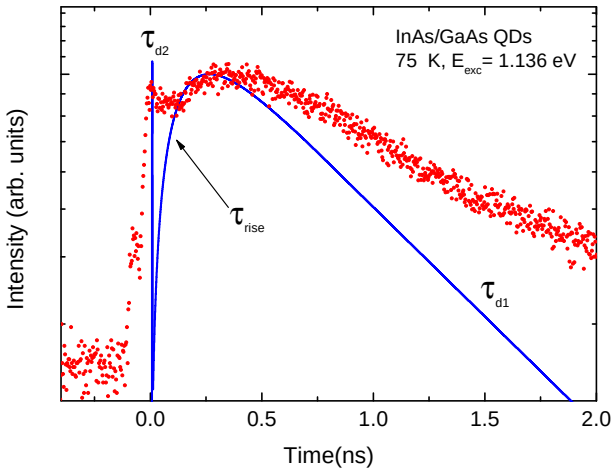

Abbildung 26: Vergleich der gemessenen Transiente der LO-Mode (rote Punkte mit theoretischen Berechnungen aus Kapitel 3.1.3 (blaue Linie) unter Laseranregung mit 1,136 eV und bei einer Temperatur von 75 K.

assistierte Lumineszenzprozess (τ_{d1}) können aufgrund ihres dynamischen Verhaltens gut voneinander unterschieden werden.

3.4.1 Anregungsabhängigkeit der LO-Moden-Dynamik

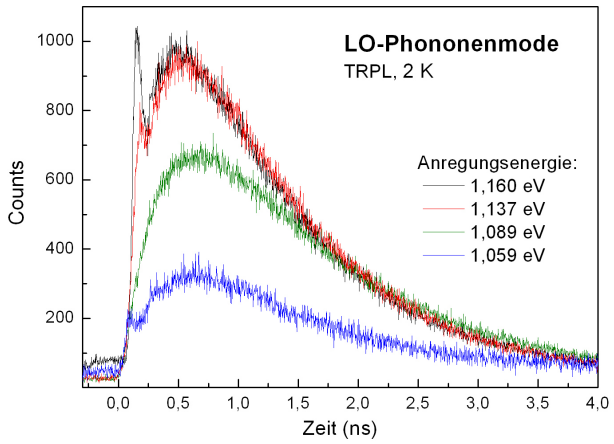

Abbildung 27: Transienten der LO-Phononenmode für verschiedene Anregungsenergien bei 2 K.

Der Ursprung der langen Abklingkomponente τ_{d1} kann aufgeklärt werden, wenn die Anregungsabhängigkeit der Lebenszeiten des 1LO-Signals untersucht wird. Abb.27 zeigt exemplarisch vier Transienten der 1LO-Phononenmode. In Tabelle 1 sind die daraus ermittelten Werte für τ_{d1} und τ_{d2} für verschiedene Anregungsenergien als Ergebnis eines Fitverfahrens aufgelistet. Zusätzlich ist in der Tabelle auch das Intensitätsverhältnis zwischen τ_{d1} und τ_{d2} zu finden, was sich mittels der jeweiligen Fitamplituden abschätzen lässt. Betrachtet man nun die Anregungsabhängigkeit der langsameren Abklingkonstante τ_{d1}, so stellt man fest, dass die Anregungsenergie lediglich einen vergleichsweise kleinen Einfluss auf τ_{d1} hat. Also muss man annehmen, dass dieser Prozess, der mit der Rekombination des Quantenpunktgrundzustandes verknüpft ist, zunächst weniger vom Anregungsmechanismus abhängt. Erst wenn die Laserenergie auf den niedrigsten Wert von 1,059 eV eingestellt wird, so wird eine längere Lebensdauer von τ_{d1}=1,3 ns gemessen. Bei dieser Laserenergie kann ausschließlich über den Grundzustand der Quantenpunkte angeregt werden. Die Verlängerung der Lebensdauer kann verstanden werden, wenn man beachtet, dass für kleinere Anregungsenergien Subensembles von größeren Quantenpunkten selektiert werden. In größeren Quantenpunkten besitzen Elektron- und Lochwellenfunktion einen kleineren Überlapp, was zu einer kleineren Oszillatorstärke und damit zu längeren Lebenszeiten für Elektron-Loch-Rekombinationen führt. Zusätzlich kommt hinzu, dass der Einfluss des ersten angeregten Zustandes (der typischerweise kürzere Abklingkonstanten als der Grundzustand aufweist) für kleinere Anregungsenergien abnimmt. Unabhängig von der jeweiligen

Laseranregung hat die lange Komponente $\tau_{d1} \approx 1$ ns ihren Ursprung im Grundzustand des elektronischen Systems der InAs-Quantenpunkte, die die Outgoing-Resonanzbedingung zur Laseranregungsenergie erfüllen.

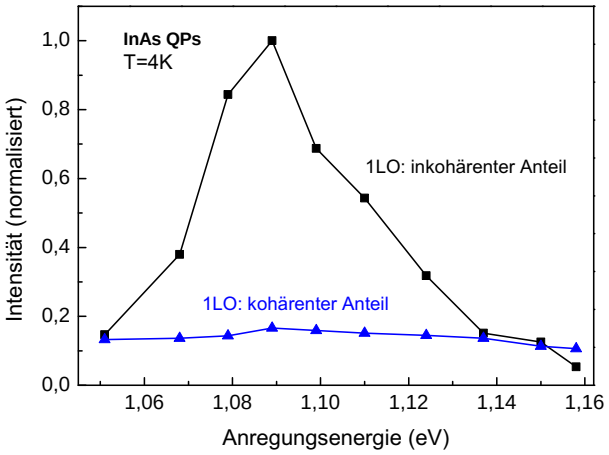

Abbildung 28: Anregungsabhängigkeit des inkohärenten Anteils der 1LO-Mode (schwarze Rechtecke) sowie des Anteils des 1LO-Signals, der der Raman-Streuung zugeordnet wird (blaue Dreiecke); normalisiert auf die maximale Intensität.

In Abb.28 sind die Intensitätsresonanzprofile der verschiedenen Abklingkomponenten der 1LO- bzw. 2LO-Moden als Funktion der Anregungsenergie aufgetragen. Es sei hier nochmals erwähnt, dass die Entfaltung der Intensitätsbeiträge von τ_{d1} und τ_{d2} nur durch die Zeitselektivität der zwei Beiträge innerhalb der zeitaufgelösten Transienten erreichbar ist. Dies wäre absolut unmöglich, wenn man lediglich auf energiedispersive Spektroskopieverfahren zurückgreifen könnte, da die zwei Prozesse energetisch entartet sind. Nimmt die Anregungsenergie zu, so nimmt die 1LO-Intensität zu bis das Maximum bei einer Anregung von 1,089 eV erreicht wird, was der Energie des um ein LO-Phonon erhöhten Grundzustandes entspricht. Es sei nochmals betont, dass das starke Resonanzverhalten sowohl der 1LO- als auch der 2LO-Mode (Resonanzmaximum bei einer Anregungsener-

Tabelle 1: Lebenszeiten und Intensitäten der Abklingkomponenten der 1LO-Mode bei 34,4 meV als Funktion der Anregungsenergie.

Anr. (eV)	τ_{d1} **(ns)** $\rightarrow$	**Intensität**$_1$	τ_{d2} **(ps)**$\rightarrow$	**Intensität**$_2$
1.160	1	30%	$\leq$30	70%
1.136	1	55%	$\leq$30	45%
1.110	1.1	70%	$\leq$30	30%
1.089	1.1	85%	$\leq$30	15%
1.059	1.3	55%	$\leq$30	45%

gie von 2LO-Phononen oberhalb der Grundzustandsemission) ausschließlich im Fall der Outgoing-Resonanz (E_{exc}=E_{GZ}+E_{1LO}) auftritt, während keine Resonanz im eingehenden Fall (E_{exc}=E_{GZ}) beobachtet wird. Interessanterweise weist die Energieabhängigkeit der relativen Intensität des kohärenten Raman-Streuprozesses keinerlei Resonanzüberhöhung über den gesamten untersuchten Bereich auf, solange die Anregung resonant zum Quantenpunktsystem erfolgt. Es kann kein Raman-Beitrag gemessen werden, wenn die Resonanzbedingung komplett aufgehoben ist. Diese Beobachtung unterstützt die bereits zuvor aufgestellte Annahme, dass die 1LO-Raman-Komponente hauptsächlich von Quantenpunkten hervorgerufen wird, die die Outgoing-Resonanzbedingung erfüllen.

Die Resonanzüberhöhung der 1LO-Linie stammt also nicht vom Raman-Streuprozess, sondern wird in erster Linie von dem mit dem Grundzustand über Phononen verknüpfen inkohärenten Abklingprozess τ_{d1} hervorgerufen. Es ist anzunehmen, dass dies auch für die 2LO-Mode zutrifft. Für diese konnte jedoch kein Raman-Beitrag gemessen werden; wahrscheinlich weil die inkohärente Komponente der 2LO-Emission noch dominanter ist.

3.4.2 Temperaturabhängigkeit der LO-Moden-Dynamik

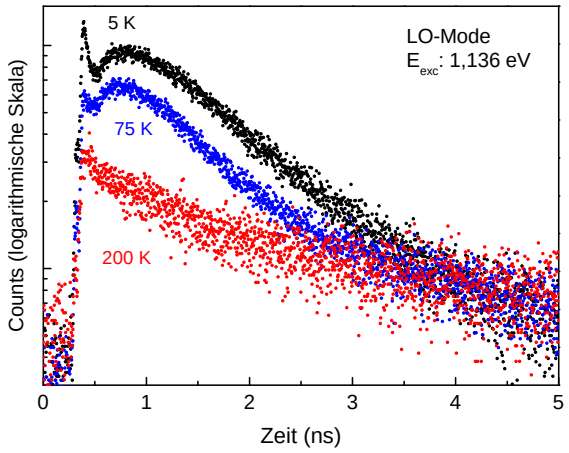

Abbildung 29: Temperaturabhängigkeit der LO-Moden-Dynamik unter einer Anregung von E_{exc}=1,136 eV.

Die Temperaturabhängigkeit der phononen-assistierten Relaxationsmechanismen wurde für die 1LO-Emission unter einer Anregung von 1,136 eV (also resonant zum ersten angeregten Quantenpunktzustand) durchgeführt. In Abb.29 sind drei repräsentative, normierte Transienten für 5, 75 bzw. 200 K verglichen. Zusätzlich sind in Tabelle 2 sowohl die resultierenden Zeitkonstanten als auch die Intensitätsverhältnisse zwischen der inkohärente (τ_{d1}) und der kohärenten Komponente (τ_{d2}) aufgelistet. Das Intensitätsverhältnis $I(\tau_{d2})/I(\tau_{d1})$ nimmt mit zunehmender Temperatur zuungunsten des kohärenten Prozesses ab: Der inkohärente Anteil am LO-Signal nimmt stark zu und dominiert die Abklingdynamik bei 130 K

vollständig. Für noch höhere Temperaturen kann der schnellere Raman-Anteil nicht mehr aufgelöst werden und die Transiente wird durch die langsame inkohärente Rekombination bestimmt. Ob die kohärente Komponente für hohe Temperaturen verschwindet, kann allerdings nicht beantwortet werden, da die Anklingkonstante τ_r des inkohärenten Prozesses für höhere Temperaturen abnimmt. Bei 200 K gilt τ_r=100 ps. Damit sind die beiden Komponenten nicht mehr zeitlich separierbar. Die Temperaturabhängigkeit der Anklingzeit liefert einen direkten Beweis für den angenommenen Phononen-Bottleneck-Effekt. τ_r bleibt bis zu einer Temperatur von ungefähr 130 K nahezu konstant (≈300 ps), während für höhere Temperaturen deutlich kürze Zeiten (≈100 ps) gemessen werden. Dieses Temperaturverhalten ähnelt dem der Grundzustandsintensität aus den Abb.20 bzw. 21, die bis zu einem Maximum bei etwa 130 K zunimmt. Folglich könnte die vergleichsweise lange Anklingzeit, die für niedrige Temperaturen beobachtet wird, im Phononen-Bottleneck-Effekt begründet sein, das dann für steigende Temperaturen an Einfluss verliert und die Anklingzeit verkürzt. Außerdem ist damit das schwache Phononen-Bottleneck dafür verantwortlich, dass die kohärente τ_{d2}-Komponente beobachtet werden kann. Für Temperaturen unterhalb von 130 K kann diese Komponente eindeutig beobachtet werden. Wie an MOCVD-gewachsenen In(Ga)As/GaAs-Quantenpunkten gezeigt wurde, verlieren die Raman-Moden ab 130 K erheblich an Intensität (siehe dazu Abb.4 in Kapitel 3.1.2). Für höhere Temperaturen können sie allerdings sowieso nicht mehr aufgelöst werden, da durch das kürzer werdende Anklingen des inkohärenten Beitrages der Raman-Streuprozess in den Transienten überdeckt wird. Die teilweise Unterdrückung der Rekombination über den Grundzustand unter Outgoing-Resonanz erlaubt es den 1LO-Phononen kohärent zu streuen. Dies bedeutet möglicherweise, dass das Phononen-Bottleneck die die kohärente Raman-Streuung erst aktiviert oder möglich macht.

Betrachtet man den Einfluss der Temperatur auf die Lebenszeiten selbst, so fällt auf, dass τ_{d2} innerhalb der experimentellen zeitlichen Auflösung unabhängig von der Temperatur bleibt (≤30 ps), während τ_{d1} mit einem Faktor von 2 zunimmt. Die Lebenszeit erhöht sich von 1 ns bei 5 K auf über 2 ns ab einer Temperatur von etwa 130 K, ein Effekt, der direkt mit einer vergleichbaren Lebenszeitveränderung der Grundzustandslumineszenz einhergeht. Dies ist damit wiederum ein Beleg dafür, dass der Inkohärenzprozess direkt über die Wechselwirkung mittels Phononen mit dem Quantenpunktgrundzustand verknüpft ist.

Tabelle 2: Temperaturabhängige zeitaufgelöste Photolumineszenz der 1LO-Mode bei 34,6 meV für 1,136 eV-Laseranregung. τ_{d1}: Lange Komponente (inkohärent). τ_{d2} Kurze Komponente (kohärent). Intensitätsverhältnis zwischen τ_{d1} and τ_{d2}. τ_r: Anklingen.

T (K)	τ_{d1} **(ns)**	τ_{d2} **(ps)**	**Intensität 1:2**	τ_r **(ps)**
5	1	≤30	50:50	300
25	1	≤30	50:50	300
75	1,3	≤30	67:33	330
130	2,2	≤30	85:15	290
200	2	–	–	100

Die Zunahme von τ_{d1} wird verständlich, wenn man mit in Betracht zieht, dass bei einer Temperaturerhöhung die Anteile nichtstrahlender Mechanismen wie zum Beispiel die Auger-Streuung oder eine Wechselwirkung mit Defekten oder Störstellen ebenfalls verstärkt auftreten können. Gemessene Lebenszeiten sind immer eine Kombination strahlender und nichtstrahlender Mechanismen: $1/\tau_i = 1/\tau_{rad} + 1/\tau_{nrad}$. Ein größerer Einfluss nichtstrahlender Prozesse kann also die gemessenen, effektiven Lebenszeiten erheblich erhöhen. Eine Verlängerung der Abklingkonstanten kann nicht nur für die Grundzustandslumineszenz sowie die 1LO-Emission beobachtet werden, sondern ebenfalls für die 2LO-Mode. Dies spiegelt die Tatsache wider, dass bei den beiden Phononenmoden derselbe elektronische Zustand, also in diesem Fall der Quantenpunktgrundzustand, involviert ist.

3.5 Zusammenfassung des Kapitels

Im Kapitel "Dynamische Eigenschaften kohärenter und inkohärenter vibronischer Prozesse in InAs/GaAs-Quantenpunkten" wurden zeitaufgelöste Untersuchungen zur Exziton-Phonon-Wechselwirkung in InGa/GaAs-Quantenpunktensembles präsentiert. Dabei wurden zwei verschiedene Streu- beziehungsweise Lumineszenzprozesse, die zu solchen Wechselwirkungen zu zählen sind, sowohl zeitintegriert als auch zeitaufgelöst spektroskopiert. Eine zentrale Rolle spielte dabei die resonante Anregung in das elektronische System der InAs-Quantenpunkte. Aufgrund der charakteristischen Abklingzeiten der verschiedenen Transfer-, Streu- oder Rekombinationsprozesse ist es möglich, einen resonanten Raman-Streuprozess von phononen-assistierter Lumineszenz zu unterscheiden, obwohl sie in Photolumineszenzspektren nicht zu trennen sind, da sie bei derselben Energie auftreten. Es konnten diese Übergänge bei Emissionsenergien beobachtet werden, die um ein, beziehungsweise zwei LO-Phononen von der Laseranregungsenergie entfernt sind. Diese zwei Prozesse können gleichzeitig auftreten und miteinander konkurrieren. Während für die kohärente Ramanstreuung Lebenszeiten von weniger als 30 ps beobachtet wurden, läuft die phononen-unterstützte Rekombination inkohärent ab. Sie weist Lebenszeiten auf, die über den involvierten Übergang innerhalb des elektronischen Systems der Quantenpunkte verknüpft sind. Typischerweise beträgt diese Dauer bei den hier untersuchten InAs-Quantenpunkten nahezu unabhängig von der Anregungsenergie bei tiefen Temperaturen etwa 1 ns. Diese Unterscheidbarkeit wird durch theoretische Berechnungen unterstützt, bei denen der Dichtematrixformalismus verwendet wurde. Die phononen-assistierte Lumineszenz zeigt ein stark ausgeprägtes Resonanzverhalten unter ausgehenden Resonanzbedingungen. Dieser Prozess ist besonders intensiv, wenn die Anregung um ein Vielfaches eines LO-Phonons (insbesondere gilt dies für den 2LO-Prozess) oberhalb der Quantenpunktgrundzustandenergie beträgt, und verschwindet vollkommen sobald eben diese Energie in der Anregung unterschritten wird. Selbst für die eingehende Resonanz - also die resonante Anregung in den Übergang selbst - ist keine Resonanzüberhöhung feststellbar.

Durch die Kombination von temperaturabhängiger sowie zeitaufgelöster Photolumineszenz konnte gezeigt werden, dass ein schwacher Phononen-Bottleneck-Effekt für tiefe Temperaturen unterhalb von 130 K auftritt, der die angeregten Ladungsträger bevorzugt über den phononen-assistierten Lumineszenzprozess abbaut. Oberhalb dieser Temperatur, verschwindet dieser Effekt und die herkömmliche Grundzustandslumineszenz wird wieder dominanter. Da die Energieseparation zwischen Grundzustand und erstem angeregten Zustand in etwa drei LO-Phononenenergien entspricht, können die erzeugten Ladungsträger jedoch auch bei tiefen Temperaturen genügend erfolgreich in den Quantenpunktgrundzustand transferiert werden, um in den PL-Spektren beobachtet werden zu können. Die Annahme eines Phononen-Bottleneck-Effektes wird noch durch die Beobachtung unterstützt, dass die Lumineszenz für Temperturen oberhalb von 130 K erheblich schneller anklingt - also effizienter angeregt werden kann. Die teilweise Unterdrückung der Rekombination über den Grundzustand unter ausgehender Resonanz erlaubt es den 1LO-Phononen kohärent zu streuen. Dies bedeutet möglicherweise, dass das Phononen-Bottleneck die kohärente Raman-Streuung erst aktiviert oder möglich macht.

4 InAs-Submonolagen-Quantenpunkte

Neben der Verwendung von Quantenfilmen oder Stranski-Krastanov-Quantenpunkte als aktives Material in verschiedenen Bauelementen bieten auch monolagige Filme[Goni98, Reich99, Goni00] und Submonolagen von InAs in einer Bulk-artigen GaAs-Matrix Vorteile und Anwendungspotentiale. Quantenpunkte, die mittels Submonolagenmethode gewachsen werden, können aufgrund günstiger Eigenschaften als Gewinnmedium genutzt werden. Beispiele können unter anderem kanten- und oberflächenemittierende Laser oder optische Verstärker sein. Die optimalen Wachstumsparameter müssen jedoch zunächst bestimmt werden, um SML-Quantenpunkte mit geeigneten Eigenschaften gezielt für spezielle Anwendungen nutzen zu können. Dafür bedarf es einer ausführlichen Charakterisierung von Proben aus verschiedenen Wachstumsserien. Ziel des folgenden Kapitels soll es sein, Transferprozesse in SML-Quantenpunktproben zu bestimmen und den Einfluss von Änderungen im Wachstumsprozess auf diese Transferprozesse zu untersuchen. Im Zentrum der hier präsentierten Untersuchungen soll insbesondere die Koppung der Submonolagen an einer Schicht von Stranski-Krastanov-Quantepunkte stehen. Diese Quantenpunkte haben natürlich einen nicht zu vernachlässigen Einfluss auf die Polarisationseigenschaften oder das dynamische Verhalten der SML-Quantenpunkte. Eine unpolarisierte QP-Emission der SML-Quantenpunkte wäre zum Beispiel in optischen Verstärkern wünschenswert. Entsprechend werden optimale Wachstumsparameter gesucht, um dieses Ziel zu erreichen. Die Dynamik sowie potentielle limitierende Faktoren werden untersucht, um das Potential für ultraschnelle SML-Quantenpunkt-Emittern mit entsprechend hohen Modulationsfrequenzen bewerten zu können.

Submonolagen-Quantenpunkte

Eine Submonolagenabscheidung von gitterfehlangepassten Materialien auf einer Kristalloberfläche führt zur spontanen Ausbildung von zweidimensionalen Inseln. Diese Inseln besitzen Ausdehnungen im Nanometerbereich und können eine dichte laterale Verteilung haben. Die Bildung einer dichten Anordnung von SML-Inseln wurde sowohl theoretisch als auch experimentell ausführlich untersucht (siehe dazu einen Überblick in [Shchukin99]). Geordnete "Parquet"-Strukturen werden gebildet, wenn auf der Kristalloberfläche zwei Phasen verschiedener intrinsischer Oberflächenverspannungen τ_{ij} auftreten. Gründe für verschiedene Oberflächenverspannungen können heteroepitaktische Abscheidung, Ausbildung von Oberflächenrekonstruktionen oder Adsorbatzustände sein. Treten also zwei verschiedene Phasen auf, so wird die Ausbildung von Grenzflächen schließlich in einer elastischen Energierelaxation der Grenzflächen zwischen den Domänen enden. Dies verhindert dann eine Reifung (*ripening*, also einer Umverteilung zu größeren Akkumulationen) der Domänen, weil es energetisch unvorteilhafter wäre. Also exzistiert auch eine optimale Größe solcher Inseln.

Während die Lokalisierungsenergie von Submonolagen-Quantenpunkten verhältnismäßig klein ist, spielt eine Stapelung (*stacking*) über mehrere SML-Schichten eine große Rolle. Über vertikal korreliertes Wachstum können beispielsweise die Polarisationseigenschaften

der Quantenpunktemissionen beeinflusst werden.

4.1 Die verschiedenen Proben

Sämtliche Proben wurden auf einem GaAs(001)-Substrat mittels MOCVD (*Metalorganic Chemical Vapor Deposition*) in einem Aixtron-200/4-Reaktor gewachsen. Die Submonolagenabscheidung fand bei einer Temperatur von 500°C statt. Als Precurser für die InAs-Abscheidung wurden Trimethylindium, Trimethylgallium sowie Tertiarybutylarsin verwendet. Vor und nach jedem InAs-Durchlauf folgte zunächst eine Wachstumsunterbrechung von 1 s, um sich das Arsen stabilisieren zu lassen. Somit kann eine Oberflächenglättung erzielt werden und das InAs kann in lateraler Richtung ausbreiten. Für weiterführende Wachstumsvariationen wurden verschiedene Dauern solcher Wachstumsunterbrechungen getestet. Das Verhältnis während des InAs-Wachstums betrug 1:9 bei einer Wachstumsrate von 0,25 ML/s. Bei einer Serie von SML-Proben wurde die GaAs-Zwischenschichtdicke variiert. Insgesamt wurde ein Zehnfachstapel der InAs-SML-Schichten (0,5 ML) innerhalb einer 300 nm dicken GaAs-Matrix gewachsen. Zusätzlich wurden AlGaAs-Barrieren hinzugefügt, um einen Ladungsträgerverlust während der PL-Experimenten zu verhindern.

Das Submonolagen-Quantenpunktwachstum ist noch nicht vollständig verstanden. Da beim Abscheidungsprozess nominell weniger als eine Monolage Atome auf eine Oberfläche aufgebracht werden, könnte man InAs-Inseln erwarten, die lediglich eine Monolage hoch sind und anschließend mit GaAs bedeckt werden. Allerdings wurde von einem Segregationsprozess berichtet[Lenz10], der während des Bedeckens der InAs-Submonolagen mit GaAs stattfindet. Dies führt zu einer in Wachstumsrichtung verlängerten Ausdehnung der InAs-Ansammlungen.

Die atomare Struktur von den für diese Arbeit untersuchten Submonolagenabscheidungen von InAs wurde bereits detailliert mittels XSTM (*Cross-sectional Scanning Tunnelig Microscopy*) an für diese Zwecke speziell leicht modifizierten Proben untersucht[Lenz11]. Die mikroskopischen Aufnahmen wiesen InAs-reiche Ansammlungen mit Durchmessern von ungefähr 5 nm und Höhen von bis zu 8 Monolagen auf. Die laterale Dichte der InAs-Inseln liegt in der Größenordnung von $10^{12}\,\mathrm{cm}^{-2}$. Im Falle von sehr dünnen GaAs-Zwischenschichten wurden sogar vertikal über mehrere Schichten zusammenhängende InAs-Agglomerationen beobachtet.

Für bestimmte Anwendungen ist es von Vorteil, wenn die Submonolagen-Quantenpunkte in korrelierter Konfiguration innerhalb von Mehrfachstapeln auftreten. Eine Möglichkeit der positionierten Nukleation innerhalb der untersten SML-Schicht könnte zum Beispiel die Verwendung einer Schicht von Stranski-Krastanov-Quantenpunken darstellen. SK-Quantenpunkte sollten aufgrund einer positionierten tensilen Verspannung des Matrixmaterials (GaAs) Nukleationskeime in den SML-Schichten hervorrufen. Nachteil dieser Methode ist allerdings die Reduktion der Quantenpunktdichte und eine potentielle Überlagerung der Emission aus den SML-Quantenpunkten mit einer SK-Abstrahlung sowie eine starke Beeinflussung der Polarisations- sowie der dynamischen Eigenschaften aufgrund einer Kopplung der Quantenpunktsysteme.

4.1.1 Einfluss der Spacerdicke

In einer Wachstumsserie von SML-Quantenpunktproben wurde die Zwischenschichtdicke (*spacer*) variiert. Auf diese Weise ist es möglich, die SML-Quantenpunkte zu einer korrelierten (bei dünnen Spacern) beziehungsweise antikorrelierten (bei dickeren Spacern) Wachstumskonfiguration zu bringen. Der Einfluss auf die Polarisationseigenschaften sowie auf die Anregbarkeit mittels Photolumineszenzanregungsspektroskopie wird untersucht werden.

4.1.2 Einfluss unterschiedlicher Wachstumsunterbrechungen

In Abb.30 sind Photolumineszenzspektren von fünf SML-Proben mit unterschiedlichen Wachstumsunterbrechungen während des Probenwachstums dargestellt. Der Einfluss der verschiedenen Wachstumsunterbrechungen auf die Emissionswellenlänge soll anhand dieser Spektren illustriert werden. Das blaue Spektrum entspricht der Lumineszenz einer SML-Quantenpunktprobe mit einer Stranski-Krastanov-Quantenpunktschicht als Nukleationskeime. Hier wurde keine Wachstumsunterbrechung vorgenommen. Die Submonolagenquantenpunkte lumineszieren bei 1017 nm. Dominiert wird das Spektrum jedoch von der SK-Quantenpunktlumineszenz, die um 1160 nm zentriert ist und eine Halbwertsbreite von nahezu 100 nm besitzt. Wird eine Wachstumsunterbrechung von 120 s bei den Stranksi-Krastanov-Quantenpunkten vorgenommen (bevor die GaAs-Abdeckschicht augewachsen wird), so schieben beide Lumineszenzen; jedoch in unterschiedliche Richtungen. Die SK-Lumineszenz ist nun rotverschoben (um 1222 nm zentriert) und die SML-Quantenpunkte leuchten bei leicht blauverschobenen Wellenlängen (999 nm). Die Rotverschiebung der Stranski-Krastanov-Lumineszenz erklärt sich über Ostwald-artige Reifung der Quantenpunkte. Mit zunehmender Dauer der Wachstumsunterbrechung, schiebt diese Lumineszenz zu höheren Wellenlängen, weil sich das durchschnittliche Quantenpunktvolumen mit zunehmender Zeit erhöht und als Folge dessen die Quantisierungsenergie abnimmt[Heinrichsdorff97]. Zusätzlich ist eine Intensitätserhöhung der SK-Lumineszenz für die Probe mit SK-Wachstumsunterbrechung beobachtbar.

Eine Wachstumsunterbrechung direkt nach Abscheidung der einzelnen Submonolagenschichten führt zu zwei Effekten. Zum einen verschiebt sich die SK-Quantenpunktlumineszenz zu kleineren Wellenlängen. Während bei der Probe ohne Wachstumsunterbrechung (blaues Spektrum) der Abstand zwischen SML- und SK-Lumineszenz 150 nm, verringert sich dieser mit zunehmender Dauer der Wachstumsunterbrechung, die direkt nach der Abscheidung der jeweiligen Submonolagenschichten erfolgt. Bei einer Unterbrechung von 10 s (magentafarbenes Spektrum) beträgt der Abstand nur noch 83 nm. Eine Unterbrechung von 50 s (grünes Spektrum) verringert diesen Abstand sogar auf nur noch 53 nm. Bei der Kombination beider Wachstumsunterbrechungstypen (in diesem Falle: 120 s SK-WU und 50 s SML-WU, orangenes Spektrum) beträgt der Abstand zwischen den zwei verschiedenen Lumineszenzen 58 nm. Während die SK-Wachstumsunterbrechung zu einer Rotverschiebung der SK-Lumineszenz führt, hat die SML-Wachstumsunterbrechung eine Blauverschiebung zur Folge. Die Emissionswellenlänge der Submonolagen-Lumineszenz bleibt von den Wachstumsunterbrechungen nahezu unbeeinflusst. Diese beträgt in fast

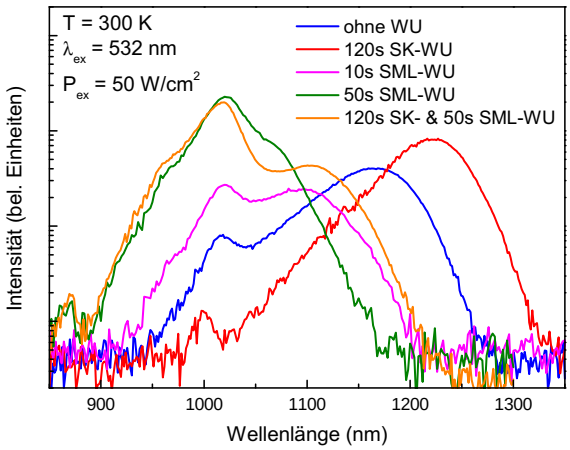

Abbildung 30: PL-Spektren bei 300 K der verschiedenen SML-Proben mit unterschiedlichen Wachstumsunterbrechungen während des Probenwachstums. Die hier präsentierten PL-Spektren wurden von Jan-Hindrik Schulze mit einem 532 nm-Laser gemessen.

sämtlichen Proben 1017 nm. Lediglich die Probe mit der 120 s-Unterbrechung nach dem SK-Quantenpunktwachstum weist eine leichte Verschiebung der SML-Lumineszenz auf: Sie emittiert hier bei ungefähr 999 nm.

Der zweite Effekt, den eine Submonolagen-Wachstumsunterbrechung bewirkt, betrifft die Emissionsintensität der Submonolagen-Lumineszenz. Bei einer SK-Wachstumsunterbrechung bleibt die tatsächliche SML-Intensität unverändert, auch wenn im blauen Spektrum diese erhöht erscheint, weil die SK-Lumineszenz auf der höherenergetischen Flanke eine starke Asymmetrie aufweist. Bei einer SML-Unterbrechung nimmt jedoch die Intensität der Submonolagen-Quantenpunkte etwa zu. Bei der Probe mit 10 s-Unterbrechung sind beide Lumineszenzen ungefähr gleich stark, während bei den zwei Proben mit 50 s-Unterbrechung die SML-Lumineszenz deutlich stärker die Spektren bestimmt. Allerdings bleibt natürlich zu beachten, dass sich die SK-Lumineszenz unter die SML-Emission schiebt. Die höherenegetische Flanke bei etwa 950 nm in den Spektren mit SML-Wachstumsunterbrechung läßt sich ebenfalls mit der SK-Lumineszenzverschiebung erklären, wenn man die Halbwertsbreite dieser Emission betrachtet. Diese bleibt für sämtliche Spektren etwa konstant.

4.2 Anregungsphotolumineszenzspektroskopie

Der erste Schritt bei der Untersuchung der verschiedenen Submonolagen-Quantenpunkt-Proben ist die Anregbarkeitsstudie. Zu diesem Zwecke ist die Methode der Anregungsphotolumineszenzspektroskopie (PLE) gewählt worden. Dabei soll insbesondere auch die Temperaturabhängigkeit näher betrachtet werden.

Für den Zweck der Anregungsphotolumineszenzspektroskopie wurde die Probe mit einer

Lampe angeregt, die mittels eines Vormonochromator wellenlängenselektiv auf die Probe eingestrahlt wird. Diese Art der Probenanregung ist natürlich erheblich leistungsschwächer im Vergleich zu einem Laser.

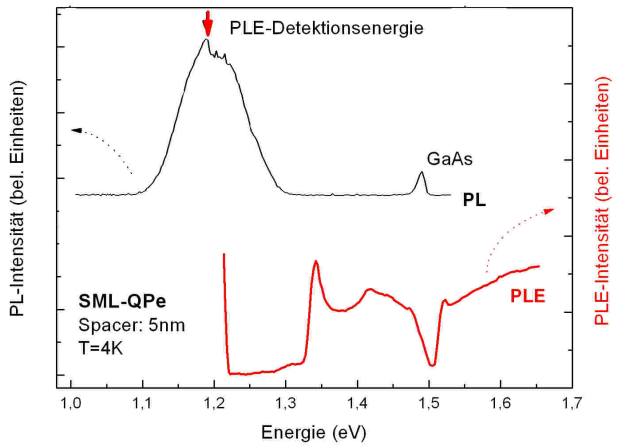

Abbildung 31: Vergleich von PL mit PLE am Beispiel einer Probe ohne Wachstumsunterbrechungen mit einem 5 nm dicken Spacer. Beide Spektren wurden bei einer Temperatur von 4 K aufgenommen. Als PLE-Detektionswellenlänge wurde hier das Maximum der Lumineszenz gewählt.

Abb.31 zeigt exemplarisch am Beispiel einer Probe ohne Wachstumsunterbrechungen mit einem Spacerschicht, die 5 nm dick ist, ein PL-Spektrum und das dazugehörige PLE-Spektrum, wo bei als PLE-Detektionswellenlänge das Maximum der SK-Quantenpunktlumineszenz gewählt wurde. Beide Spektren wurden bei einer Temperatur von 4 K aufgenommen. Bei diesen tiefen Temperaturen sind bei sämtlichen Proben egal welcher Spacerdicke oder mit welchen Wachstumsunterbrechungen - im Gegensatz zu den Messungen bei Zimmertemperatur - lediglich die SK-Quantenpunktlumineszenz (hier bei 1,2 eV bzw. 1034 nm) sowie die des GaAs-Matrixmaterials (um 1,5 eV bzw. 825 nm) detektierbar. Die Tatsache, dass SML-Lumineszenz bei tiefen Temperaturen lediglich unter Laseranregung detektiert werden konnte, zeigt, dass bei niedrigen Anregungsleistungen zunächst die nur die Stranski-Krastanov-Quantenpunkte effektiv mit Ladungsträgern versorgt werden. Erst wenn die SK-Quantenpunktzustände unter einer erhöhten Laseranregungsleistung gesättigt werden, lassen sich auch SML-Emissionen beobachten.

In den PLE-Spektren unter geringer Anregungsleistung sind jedoch für alle Proben mehrere bevorzugte Anregungskanäle beobachtbar. Zunächst gibt es eine vergleichsweise scharfe Struktur. Im Falle der Probe aus Abb.31 liegt diese bei 1,34 eV bzw. 926 nm. Daneben befindet sich noch eine etwa breitere Struktur (1,42 eV bzw. 874,nm). Ebenfalls für alle Proben beobachtbar ist, dass die PLE-Spektren bei der GaAs-Energie ein stark ausgeprägtes Minimum aufweisen. Die Probenlumineszenz ist dementsprechend nur sehr schlecht

anregbar, wenn direkt resonant in das GaAs-Matrixmaterial eingestrahlt wird. Für leicht höhere Energien sind die Proben hingegen wieder gut anregbar.

Da die 300 K-Messungen eine SML-Lumineszenz energetisch zwischen der SK- und der GaAs-Lumineszenz zeigten, ist es naheliegend zu vermuten, dass einer der beiden Anregbarkeitskanäle mit den Submonolagen-Quantenpunkten erklärbar sein sollte. Eine andere Möglichkeit könnten angeregte Zustände sein, die allerdings bisher nicht an diesen Proben beobachtet werden konnten. Eine eingehendere Diskussion dieser Problematik folgt bald, doch zunächst soll auf die Abhängigkeit von der Detektionsenergie eingegangen werden. Zu diesem Zwecke wurden PLE-Spektren der gleichen Probe bei einer Temperatur von 4 K für verschiedene Detektionsenergien aufgenommen und in Abb.32 zusammen aufgetragen.

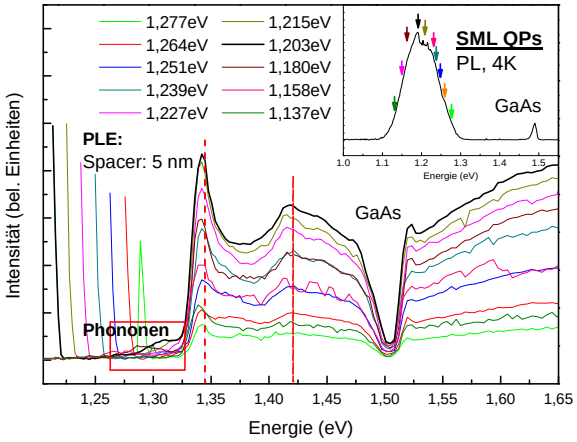

Abbildung 32: PLE-Spektren der 5-nm-Spacer-Probe für verschiedene Detektionsenergien bei 4 K. Im Inset-Bild ist das dazugehörige PL-Spektrum zu sehen. Die Pfeile entsprechen dabei den verschiedenen Detektionsenergien.

In dem eingefügten PL-Bild in Abb.32 sind farblich kodiert die verschiedenen Detektionsenergien mit Pfeilen markiert. Die entsprechenden PLE-Spektren zeigen keine nennenswerten Verschiebungen der Anregungskanäle bzw. des GaAs-Minimums. Das bedeutet, dass die Lumineszenz für jede Energie über die selben Kanäle anregt wird. Einzig eine schwächere Struktur unterhalb des schärferen Anregungskanal bei 1,34 eV zeigt eine eindeutige Abhängigkeit von der Detektionswellenlänge. Da die Anregungsmaxima dieser Kanäle mit der Detektionsenergie mitschieben, liegt die Vermutung eines phononischen Ursprungs dieser Struktur nahe. Um diese Vermutung weiter zu unterstützen wurde diese Messung für eine weitere Probe durchgeführt.

Auch bei der Probe mit einer 120 s langen Wachstumsunterbrechung nach der Stranski-Kranstanov-Quantenpunkt-Abscheidung zeigt sich eine von der Detektionsenergie abhängige Struktur, wie in Abb.33 innerhalb der roten Umrahmung zu sehen ist. Für Abb.34 wurde die energetische Position des Anregbarkeitsmaximums dieser Struktur als Funktion der Detektionsenergie aufgetragen. Wie deutlich erkennbar ist, schiebt dieses Maximum parallel

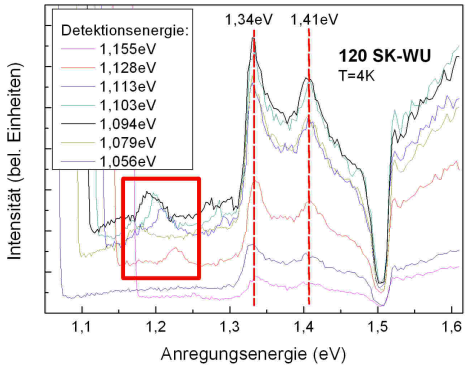

Abbildung 33: PLE-Spektren der Probe mit einer 120 s langen SK-Wachstumsunterbrechung für verschiedene Detektionsenergien bei 4 K.

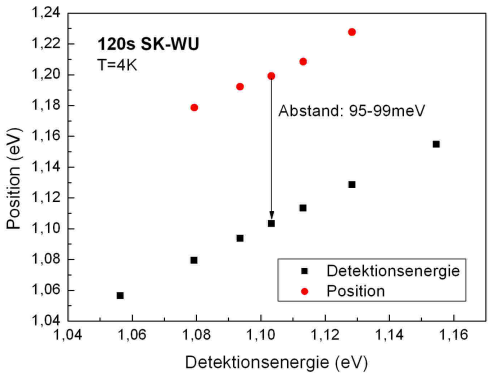

Abbildung 34: Verschiebung der phononischen Linie in den PLE-Spektren der SML-Probe mit der 120 s-SK-Wachstumsunterbrechung als Funktion der Detektionsenergie.

in einem nahezu konstanten Abstand von 95 bis 99 meV mit der Detektionsenergie mit, also mit der SK-Quantenpunktlumineszenz. Dies wurde innerhalb dieser Arbeits bereits an den InAs-SK-Quantenpunkten aus Kapitel 3 beobachtet. Bei entsprechenden PLE-Messungen (siehe Abb.15) wurden allerdings phononische Resonanzen bei Energien von 33 bzw. 68 meV oberhalb der Detektionsenergie festgestellt, was dem 1LO bzw. 2LO zugeordnet werden konnte. Bei der nun untersuchten Probe beträgt dieser Abstand jedoch ziemlich genau dem Dreifachen der 1LO-Phononenergie. Möglicherweise lassen sich in manchen PLE-Spektren auch schwache 1LO- bzw. 2LO-Resonanzen erahnen (wie zum Beispiel in Abb.31), jedoch wirklich starkt ausgeprägt läßt sich hier nur die 3LO-Linie in den PLE-Spektren beobachten. Allerdings sind diese phononischen Anregungskanäle nur bei Proben nachweisbar, die einen größeren energetischen Abstand zwischen der SK- und der SML-Energie besitzen. In den PLE-Spektren der Proben, bei denen die SML-Wachstumsunterbrechung dazu führte, dass sich die beiden Emissionsenergien nah beieinander befinden (siehe Kapitel 4.1.2), kann eine Anregbarkeit über Phononen nicht festgestellt werden. In den Photolumineszenzmessungen konnte bisher jedoch bei keiner der für diese Arbeit untersuchten SML-Proben ein weiterer Hinweis auf eine Phononenwechselwirkung festgestellt werden.

4.2.1 Temperaturabhängigkeit

Der nächste Schritt in der Untersuchung der Transferprozesse in den Submonolagen-Quantenpunktproben ist eine Studie zum Einfluss der Temperatur auf die Photolumineszenz- bzw. Anregbarkeitseigenschaften. Da sich in den Tieftemperatur-PL-Messungen keine direkten Submonolagenemissionen detektieren lassen, wie es allerdings für Zimmertemperatur der Fall ist, liegt es nahe, dass die Temperatur die optischen Eigenschaftlich erheblichen beeinflusst. Es gibt also zwei Faktoren, die die SML-Lumineszenz limitieren: Die Bevorzu-

gung der Ladungsträger in die SK-Quantenpunkte bei geringen Anregungsleistungen sowie die Temperatur.

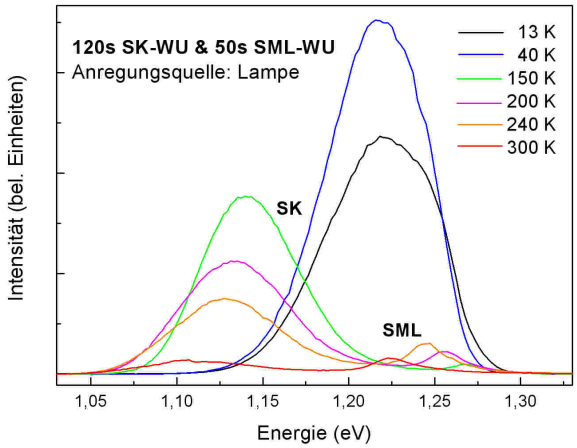

Abbildung 35: PL-Spektren der Probe mit 120 s SK-Wachstumsunterbrechung und 50 s SML-Wachstumsunterbrechung in Abhängigkeit von der Temperatur.

In Abb.35 ist beispielhaft das Temperaturverhalten der Probe mit 120 s SK- und 50 s SML-Wachstumsunterbrechung dargestellt. Die Temperatur wurde für diese Messung zwischen 13 und 300 K variiert und die Probe wurde mittels der Lampe angeregt, die für die PLE-Spektroskopie benötigt wird. Die Stranski-Krastanov-Quantenpunktlumineszenz zeigt die typischen Rotverschiebung mit zunehmender Temperatur. Dabei gewinnt sie zunächst an Intensität, was sich aber für weiter steigende Temperaturen wieder umkehrt. Ab dem grünen PL-Spektrum, das bei einer Temperatur von 150 K aufgenommen wurde, ist eine Zunahme der SML-PL-Intensität feststellbar. Bei weiterer Erhöhung der Temperatur weist auch die SML-Lumineszenz eine Rotverschiebung auf. Diese ist jedoch stärker ausgerägt im Verhältnis zur SK-Emission. Während sich die SK-Lumineszenz zwischen 150 und 300 K um etwa 34,5 meV verschiebt, sinkt die Emissionsenergie der SML-Lumineszenz für den selben Temperaturbereich um 45 meV. Das Maximum der SML-Intensität konnte bei 240 K beobachtet werden. Für noch höhere Temperaturen sinkt die Intensität dann wieder. Die Beobachtung, dass unter niedriger Anregungsleistung eine SML-Lumineszenz erst ab einer gewissen Temperatur detektierbar ist, spricht dafür, dass erzeugte Ladungsträger bei erhöhter Temperatur effizienter in die Submonolagenquantenpunkte gelangen, wo sie dann rekombinieren können.

Nun stellt sich die Frage, inwiefern sich die PLE-Spektren bei höheren Temperaturen detektiert bei den jeweilige Energien der SK- bzw. SML-Lumineszenzen unterscheiden. Dazu werden in Abb.36 die PLE-Spektren der beiden Emissionen bei einer Temperatur von 300 K miteinander verglichen. Zusätzlich ist als gestrichelte, graue Linie das PL-Spektrum der Probe aufgetragen. Es wurde mit einer Wellenlänge von 750 nm (1,66 eV) angeregt. Das

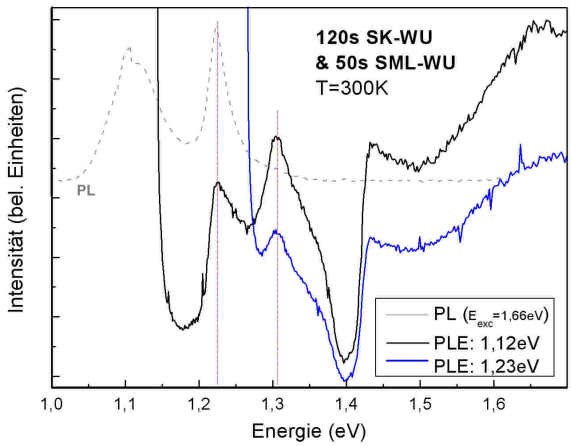

Abbildung 36: PLE-Spektren der SK- und der SML-Lumineszenz bei 300 K. Das dazugehörige PL-Spektrum ist als gestrichelte Linie dargestellt.

PLE-Spektrum der SK-Quantenpunkte wurde bei 1,12 eV detektiert (schwarzes Spektrum). Darin lassen sich die zwei typischen Anregungskanäle beobachten (hier bei 1,225 bzw. 1,305 eV). Es ist dabei offensichtlich, dass der niederenergetische Kanal mit der Emissionenergie der Submonolagen-Quantenpunkte zusammenfällt. Damit ist der Ursprung dieses Anregungsmaximums geklärt. Demzufolge werden die SK-Quantenpunkte bei hochenergetischer Einstrahlung unter anderem verstärkt über die SML-Strukturen angeregt. Da dieser Anregungskanal nun den Submonolagen-Quantenpunkten zugeordnet werden konnte, ist mithilfe der PLE-Spektren auf für tiefe Temperaturen die Submonolagen-Energie zugänglich, obwohl die SML-Quantenpunkte in den Tieftemperatur-PL-Spektren nicht beobachtbar sind.

Betrachtet man nun in Abb.36 das PLE-Spektrum, das bei der Emissionsenergie der SML-Quantenpunkte aufgenommen wurde, so fällt auf, dass unterhalb des GaAs-Minimums nur noch einen Anregungskanal exzistiert. Dieser Kanal befindet sich allerdings bei der gleichen Energie wie der höherenergetische Anregungskanal der SK-Quantenpunkte; in diesem Fall bei einer Energie von 1,305 eV, was einer Wellenlänge von 950 nm entspricht. Da dieser Kanal sowohl die SK- als auch die SML-Quantenpunkte effizient anregt, sollte es sich bei dieser Struktur nicht um einen angeregten Zustand der Stranski-Krastanov-Quantenpunkte handeln. In einem solchen Fall ist eine Anregbarkeit der oberhalb der SK-Quantenpunkt befindlichen Submonolagenschichten nicht zu erwarten. Damit ist jedoch noch nicht der Ursprung dieser Struktur geklärt und auch wenn die SK-Quantenpunkte als mögliche Kandidaten unwahrscheinlicher erscheinen, können sie nicht ausgeschlossen werden.

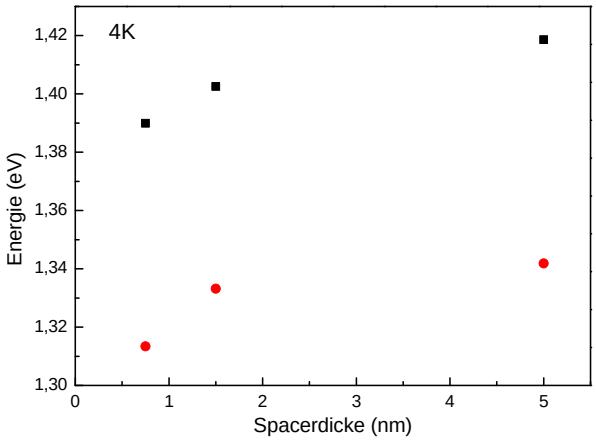

Abbildung 37: Energetische Position der Anregungskanäle als Funktion der Spacerdicke.

4.2.2 Wachstumseinfluss auf die Anregungskanäle

In Abb.37 sind die energetischen Positionen der zwei verschiedenen Anregungskanäle als Funktion der Spacerdicke bei tiefen Temperaturen aufgetragen. Dabei standen drei verschiedene Proben ohne jegliche Wachstumsunterbrechung zur Verfügung, deren Zwischenschichten zwischen 5 und 0,75 nm variierten. Es ist deutlich erkennbar, dass beide Kanäle ein identisches Verhalten bezüglich der Reaktion auf eine Spacervariation besitzen. Zwischen der Probe mit einer Spacerschicht von 5 nm und der Probe mit 1,5 nm gibt es kaum Veränderung. Lediglich eine leichte Verringerung ist hier feststellbar. Erst die Probe mit der 0,75 nm dicken Zwischenschicht weist eine erhebliche Absenkung der Energie auf. Offensichtlich ist für solch dünne Zwischenschichten der Einfluß der anderen SML- Schichten in vertikaler Wachstumsrichtung stärker. Eine solche vertikale Korrelation führt zu einer kleineren Submonolagen-Emissionsenergie. Dies spricht für eine Segregation von Indium über mehrere Stapelschichten hinweg, da eine Absenkung der Emissionsenergie auf größere Quantenpunkte hindeutet.

Abb.38 fasst die Ergebnisse der PLE-Messungen bei tiefen Temperaturen an den verschiedenen Proben bezüglich der zwei Anregungskanäle zusammen, die in diesem Fall in Wellenlängeneinheiten aufgetragen sind. Zusätzlich zu den drei Proben ohne Wachstumsunterbrechung (aus Abb.37) sind die Werte für drei Proben mit verschiedenen Wachstumsunterbrechungen aufgetragen. Die Spacerdicke dieser drei Proben beträgt 0,75 nm, was der ersten Probe ohne Wachstumsunterbrechung entspricht. Eine Unterbrechung von 120 s nach dem Stranksi-Krastanov-Quantenpunktwachstum führt zu keiner nennenswerten Veränderung der SML-Wellenlänge (die roten Punkte): Diese beträgt für beide Proben etwa 925 nm. Der höherenergetische Anregungskanal (schwarze Punkte) verschiebt sich jedoch zu kleineren Energien (Erhöhung der Wellenlänge von 875 auf 883 nm). Dass dieser Kanal sensitiver auf eine SK-Wachstumsunterbrechung reagiert (welche zu einer Vergrößerung

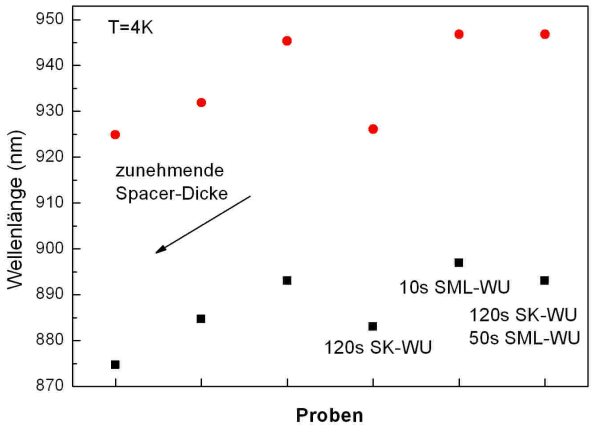

Abbildung 38: Vergleich der Anregungskanäle der sechs verschiedenen SML-Proben.

der SK-Quantenpunkte führt) als es die SML-Quantenpunkte tun, spricht widerum für einen Ursprung dieses Kanales, der zumindest indirekt über die SK-Quantenpunktgröße gekoppelt ist.

Eine Wachstumsunterbrechung nach der Abscheidung der Submonolagen-Quantenpunktschichten hat, ebenfalls wie die Verringerung der Spacerdicke, eine Erhöhung der Emissionswellenlänge der SML-Quantenpunkte zur Folge. Dabei wird bereits bei einer Unterbrechung von 10 s ein Wert erreicht, der mit der 5 nm-dicken Spacerschichtprobe ohne Wachstumsunterbrechung vergleichbar ist (947 nm). Auch die letzte Probe, bei der beide Wachstumsunterbrechungsvarianten durchgeführt wurden, weist für die SML-Emission eine ähnliche Wellenlänge auf (ebenfalls 947 nm). Da sich der höherenergetische Anregegungskanal bei der Probe mit 10 s SML-Wachstumsunterbrechung ebenfalls wie der SML-Kanal stark verschiebt und erheblich stärker darauf reagiert im Vergleich zur SK-Unterbrechung, zeigt, dass dieser Kanal eher mit den Submonolagen-Quantenpunkten verknüpft ist. Möglicherweise handelt es sich hierbei tatsächlich um einen angeregten Zustand der SML-Quantenpunkte.

4.3 Dynamik der Submonolagen-Quantenpunkte

Ein großer Vorteil der Submonolagen-Quantenpunkte liegt in dem Anwendungspotential für ultraschnelle SML-Quantenpunkt-Emittern mit entsprechend hohen Modulationsfrequenzen. Dies begründet sich mit der Tatsache, dass SML-Quantenpunkte keine Benetzungsschicht besitzen, wie es typischerweise bei Stranski-Krastanov-Quantenpunkten der Fall ist. Eine solche Benetzungsschicht führt bei einer Überbandanregung zu einer Verlängerung der Transferdynamik, da die Ladungsträger zunächst über diese Schicht in die Quantenpunkte gelangen müssen. Da jedoch SML-Quantenpunkte keine solche Benetzungsschicht besitzen, können die Ladungsträger direkt in die Quantenpunkte relaxieren, zum

Beispiel über Phononen.

Für SK-Quantenpunkte gilt, dass kleinere Quantenpunkte eine kleinere Emissionswellenlänge besitzen und die Lebenszeit sich verlängert. Im Falle der SML-Quantenpunkte formieren sich die kleinsten Quantenpunkte als zweidimensionale InAs-Inseln[Shchukin99]. Perfekt vertikal korrelierte SML-Inseln können dabei die geringsten Größen erreichen und besitzen den höchsten Indium-Anteil, wohingegen kleine Abweichungen von der vertikalen Korrelation zu größeren Quantenpunkten mit niederigeren Indium-Gehalt führen[Zhukov99]. Da die Höhe der SML-Quantenpunkte in etwa gleich bleibt, schlägt sich die QP-Vergrößerung in einer Ausdehnung in lateraler Richtung nieder. Größere Quantenpunkte besitzen eine kleinere Emissionswellenlänge. Es wurde experimentell an InGaAs-SML-Quantenpunkten beobachtet, dass größere SML-Quantenpunkte ein kürzeres Abklingverhalten besitzen[Xu06], möglicherweise aufgrund eines erhöhten Überlapps der Elektron-Loch-Wellenfunktionen. Eine andere Erklärung könnte in der Fortsetzung der Exzitonwellenfunktion liegen, und damit ist eine Kopplung an Quantenfilmzustände mögliche, was zu einer Verringerung der Quantenpunktemissionswellenlänge führt und damit zu kürzeren Lebensdauern.

Inwiefern sich nun die für diese Arbeit zur Verfügung stehenden SML-Quantenpunktproben für eine Anwendung als hochfrequente Emitter eignen, soll im Folgenden mit Hilfe von zeitaufgelösten Photolumineszenzmessungen untersucht werden.

4.3.1 Die SK-Quantenpunktdynamik

Da sich bei den hier untersuchten Proben Stranski-Krastanov-Quantenpunkte unterhalb der SML-Schichten befinden, soll zunächst auch auf diese bezüglich ihrer Dynamik näher eingegangen werden. Dabei wird inbesondere die Temperaturabhängigkeit betrachtet werden. Für diese Zwecke wurde eine Probe ohne Wachstumsunterbrechungen ausgesucht. In dem eingefügten, kleinen Bild in Abb.39 sind PL-Spektren dieser Probe mit den entsprechenden Temperaturen, bei denen sie aufgenommen worden sind, dargestellt. Sämtliche Spektren wurde mit einer Wellenlänge von 800 nm angeregt, also energetisch oberhalb des GaAs-Matrixmaterials. Dabei hatte der gepulste Ti:Sa-Laser eine Quasi-Leistung von 500 mW. Bei einer Temperatur von 4 K emittieren die Quantenpunkte bei einer Wellenlänge von 960 nm (1,35 eV). Die für Quantenpunkte typische Rotverschiebung wurde schon zuvor an anderer Stelle beschrieben und kann selbstverständlich auch hier beobachtet werden. Zusätzlich ist mit steigender Temperatur eine Abnahme der Lumineszenzintensität zu verzeichnen und eine Verstärkung der Asymmetrie auf der höherenergetischen Flanke der Lumineszenz feststellbar.

Für steigende Temperaturen wurde im Maximum der Lumineszenz eine entsprechende zeitaufgelöste PL-Messung durchgeführt. Dabei kann zunächst festgestellt werden, dass für jede Temperatur in den aufgenommenen Transienten ein monoexponentiell anfitbares Abklingverhalten beobachtet werden kann. Mit steigender Temperatur wird dann eine erhebliche Zunahme der Lebensdauer verzeichnet. Während sie bei den hier gewählten Anregungsbedingungen bei 4 K noch 800 ps beträgt, steigt die Abklingkonstante auf das nahezu Zehnfache bei 230 K an (6,5 ns). Doch nicht nur das Abklingen kann von Interesse sein, auch die Anklingkonstante zeigt ein erwähnenswertes Verhalten. Für tiefe Temperatu-

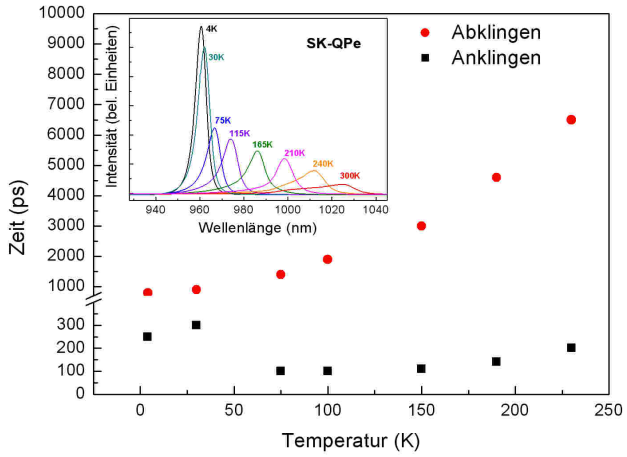

Abbildung 39: Temperaturabhängigkeit der An- (schwarz) und Abklingkonstanten (rot) der SK-Quantenpunktlumineszenz bei einer Anregung von 800 nm (500 mW). Im eingefügten Bild oben sind die entsprechenden PL-Spektren mit den dazugehörigen Temperaturen dargestellt.

ren unterhalb eines gewissen Wertes (ungefähr 40 K) besitzen die Transienten ein längeres Anklingen. Bei 30 K zum Beispiel beträgt die Anklingdauer 300 ps. Oberhalb der Grenztemperatur verringert sich diese Dauer auf 100 ps. Sämtliche Transiensten zwischen 75 und 150 K besitzen eine solche Anklingkonstante. Selbst bei 230 K beträgt das Anklingen weniger als 200 ps. Für sehr tiefe Temperaturen existiert also ein Prozess, der die Besetzung der Quantenpunkte verlangsamt. Erst oberhalb von 40 K kann dieser Prozess umgangen werden und die Ladungsträger gelangen schneller in die Quantenpunkte.

4.3.2 InAs-Submonolagen-Quantenpunkte

Für die Anwendung in hochfrequenten Emittern sind SK-Quantenpunkte aufgrund ihrer Benetzungsschicht jedoch zu langsam. Vielmehr sollten die Submonolagen-Quantenpunkte als geeignete Kandidaten in Frage kommen. Zeitaufgelöse PL-Untersuchungen an den zur Verfügung stehenden SML-Proben sollen dies nun verifizieren. Dafür wurde sowohl eine Probe ausgesucht als auch entsprechende Anregungsbedingungen gewählt, die es ermöglichen, bei tiefen Temperaturen zeitaufgelöste Messungen sowohl an den Stranski-Krastanov- als auch Submonolagen-Quantenpunktlumineszenz durchzuführen. Es zeigte sich, dass die Probe mit der 120 s andauernden Wachstumsunterbrechung nach dem SK-Quantenpunktwachstum diesbezüglich am geeignesten ist.

Bei dieser Probe ist selbst auch bei tiefstmöglichen Temperaturen eine SML-Quantenpunktlumineszenz messbar. Diese Probe besitzt die größte, energetische Separation zwischen den SK- und den SML-Lumineszenzemissionen auf. Ein entsprechendes PL-Spektrum ist in Abb.40 dargestellt (rotes Spektrum). Es wurde bei 5 K mit einer Laserwellenlänge von

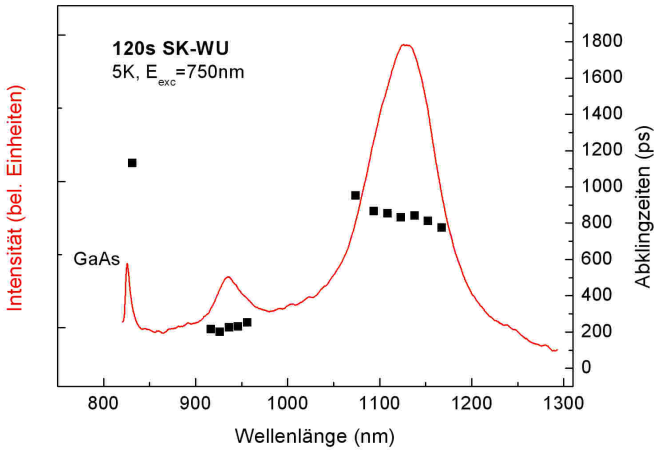

Abbildung 40: PL-Spektrum (rot) mit Lebensdauern der jeweiligen Emissionen (schwarze Punkte) an der SML-Probe mit 120 s-Wachstumsunterbrechung der Stranski-Krastanov-Quantenpunktschicht.

750 nm angeregt. Die SK-Quantenpunkte lumineszieren bei einer Wellenlänge um 1128 nm, während die SML-Emission bei 936 nm detektierbar ist. Es besteht also 192 nm Differenz zwischen beiden Emissionen bei einer Temperatur von 5 K. Vergleicht man die bei tiefen Temperaturen aufgenommenen Werte mit denen aus den Zimmertemperaturmessungen (siehe Abb.30), so läßt sich auch bei dieser Probe eine stärkere Rotverschiebung der SK-Quantenpunkte beobachten, die um 94 nm schieben (von 1128 nm auf 1222 nm), wenn die Temperatur auf 300 K erhöht wird. Die SML-Quantenpunkte schieben jedoch nur um 63 nm (von 936 nm auf 999 nm). Dieses unterschiedliche Temperaturverhalten konnte bereits an der Probe mit beiden Wachstumsunterbrechungen (120 s SK-WU und 50 s SML-WU, vergleiche dazu mit Abb.35) beobachtet werden.

Zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen an der Probe mit 120 s SK-Wachstumsunterbrechung sind in Abb.41 dargestellt. Sie wurden bei 5 K unter einer 750 nm-Anregung aufgenommen. Abgebildet sind jeweils eine Transiente der Stranski-Krastanov-Quantenpunktlumineszenz (detektiert bei 1120 nm, blau), der Submonolagen-QP-Emission (936 nm, rot) sowie der Lumineszenz des GaAs-Materials (826 nm, schwarz). Alle drei Transienten zeigen ein monoexponentielles Abklingen. Die GaAs-Lumineszenz besitzt eine vergleichsweise lange Abklingkonstante von etwa 1,2 ns und die SK-Quantenpunkte klingen mit ungefähr 830 ps ab. Deutlich schneller hingegen sind die Submonolagen-Quantenpunkte. Deren Emission besitzt eine Zeitkonstante von 225 ps. Dies ist vergleichsweise niedrig, aber sicherlich nicht das Optimum. In der Literatur finden sich bei InGaAs-Submonolagen-Quantenpunkten strahlende Lebensdauern von um die 90 ps[Xu08].

Auch im Anklingverhalten unterscheiden sich SML- und SK-Quantenpunklumineszenz. Während die Anklingkonstante der SK-Quantenpunkte relativ hoch ist (fast 400 ps), zeigt die SML-Emission ein Anklingen von unter 100 ps. Die gemessenen Anklingzeiten entspre-

chen häußtsächlich dem Einfangprozess in die Quantenpunkte.

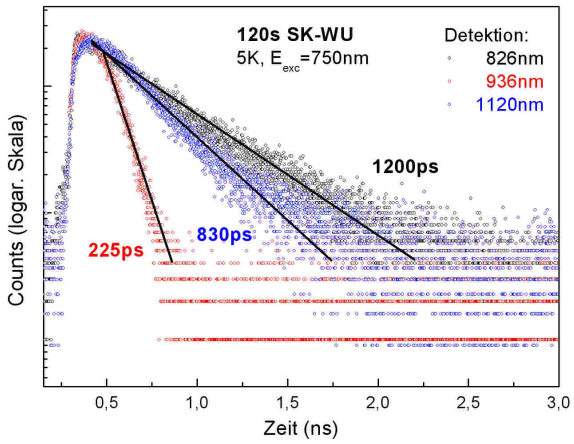

Abbildung 41: Zeitaufgelöste PL an der SML-Probe mit 120 s-Wachstumsunterbrechung der Stranski-Krastanov-Quantenpunktschicht.

Zusätzlich zu den Transienten, die in Abb.41 zu sehen sind und jeweils im Intensitätsmaximum der entsprechenden Lumineszenz gemessen wurden, sind noch Transienten an verschiedenen Punkten der jeweiligen Emissionen aufgenommen worden. Die entsprechenden ermittelten Lebensdauern sind in Abb.40 als schwarze Punkte in Abhängigkeit von ihrer Detektionswellenlänge aufgetragen. Auch bezüglich der Wellenlängenabhängigkeiten unterscheiden sich SK- und SML-Quantenpunktlumineszenz. Für die SK-Quantenpunkte läßt sich eine starke Wellenlängenabhängigkeit beobachtet. Die höherwellenlängige Flanke der Lumineszenz besitzt erheblich kürze Lebensdauern als bei kürzeren Wellenlängen. Die gemessenen Abklingkonstanten variieren zwischen 775 ps (bei 1165 nm) und 950 ps (bis (1070 nm). Dies passt zu der Aussage, dass ein niedrigere Emissionswellenlänge für kleinere Quantenpunkte sprechen, deren Lebenszeit sich verlängert. Im Gegensatz dazu zeigen die SML-Quantenpunkte kaum eine Wellenlängenabhängigkeit. Im Rahmen der gegebenen Genauigkeit läßt nur lediglich eine minimale Verkürzung der Lebensdauer bei kleineren Emissionswellenlängen erahnen. Der kleinste gemesse Wert beträgt 200 ps bei einer Detektionswellenlänge von 920 nm.

Für steigende Temperaturen nimmt auch die Lebensdauer der SML-Lumineszenz zu. Dies verhält sich analog zum Temperaturverhalten der Zeitkonstanten der unterliegenden Stranski-Krastanov-Quantenpunkte.

4.3.3 Einfluss der Anregungsbedingungen auf die Dynamik

Wenn mit einer Wellenlänge angeregt wird, die größer als das GaAs-Material (825 nm) ist, also mit niedrigerer Energie, so läßt sich das Anklingen selbst bei tiefsten Temperaturen (4 K) erheblich verringern. In Abb.42 sind zwei SML-Transienten miteinerander verglichen,

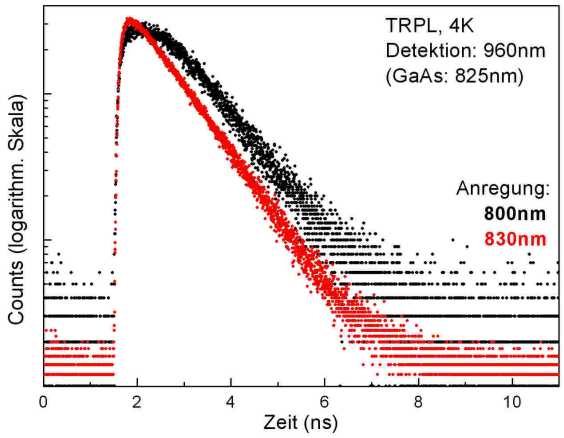

Abbildung 42: Transienten der SML-Quantenpunktlumineszenz bei 4 K, deren Anregungswellenlängen verschieden sind. Eine offensichtliche Verringerung der Anklingkonstante kann erreicht werden, wenn mit größerer Wellenlänge im Vergleich zum GaAs-Matrixmaterial angeregt wird.

deren Anregungswellenlänge entweder kleiner (800 nm, schwarze Transiente) bzw. größer (830 nm, rote Transiente) als das GaAs ist. Bei einer Anregung mit 830 nm (rote Transiente) ist das Anklingen mit 66 ps offensichtlich wesentlich kürzer. Die Abklingdynamik bleibt von der Anregungswellenlänge allerdings vergleichsweise unbeeinflußt. Das Abklingen ist unter beiden Anregungsbedingungen im Rahmen der gegebenen Genauigkeit in etwa identisch. Auch lassen sich beide Transienten mit einer monoexponentiellen Funktion anfitten. Die Verlängerung der Anklingkonstanten bei Anregungsenergien oberhalb des GaAs-Matrixmaterials belegt die Limitierung der Anregbarkeit über das GaAs, wie es auch schon die PLE-Spektren belegen (vergleiche dazu zum Beispiel Abb.31).

Die Lebensdauern der SML-Quantenpunktlumineszenzen zeigten sich als stark abhängig von den Anregungsbedingungen. Insbesondere die Laserleistung (bzw. Pulsleistung, Pulslänge oder Repetitionrate) sowie die Temperatur sind maßgebende Faktoren, aber auch die Anregungswellenlänge kann einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss haben, da ein Auffüllen der SML-Zustände über das GaAs sehr eingeschränkt abläuft. Im Folgenden soll auf die Lebensdauerabhängigkeit von der Pulsleistung näher eingegangen werden.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben wurden mit drei verschiedenen Lasersystemen und unter unterschiedlichen Anregungsbedingungen zeitaufgelöst untersucht. Die in den vorangegangenen Kapiteln beschriebenen Messungen wurden dabei unter Verwendung eines ps-Ti:Sa-Lasers (1,4 ps Pulslänge bei einer Repetitionsrate von 82 MHz) mit einer Durchschnittsleistung (Quasi-CW-Leistung) von 500 mW im Wellenlängenbereich zwischen 750 und 840 nm durchgeführt. Damit haben die Anregungspulse eine Peakpower (Leistungsspitze, also die maximale optische Leistung eines Pulses) von ungefähr 4,1 kW

und eine Pulsenergie (gesamte optische Energie eines Pulses) von etwa 6,1 nJ[2].

Parallel dazu wurden von Jan-Hindrik Schulze (Arbeitsgruppe von Professor Bimberg, TU Berlin) und Thomas Switaiski (Arbeitsgruppe von Professor Woggon, TU Berlin) mithilfe zweier dazu verschiedener Anregungslasersysteme zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen an den Submonolagen-Quantenpunktproben durchgeführt. Jan-Hindrik Schulze verwendete dabei ein 532 nm-System, das eine größere Pulsbreite von 90 ps (bei einer Wiederholrate von 76 MHz) und eine geringe durchschnittliche Leistung von 20 mW besitzt. Die Peakpower beträgt hier lediglich 2,75 W - also nahezu um das 1500-stel schwächer im Vergleich zum ps-Ti:Sa-Laser. Die Pulsenergie ist hier 0,26 nJ.

Der von Thomas Switaiski benützte Ti:Sa-Laser wurde im fs-Modus betrieben, dass heißt die Pulslänge ist mit 150 fs erheblich kürzer. Die Repetitionrate beträgt hier ebenfalls 76 MHz. Bei einer Quasi-CW-Leistung von 100 mW ist die Peakpower 8,2 kW groß, während die Pulsenergie 1,32 nJ beträgt. Verringert man die Durchschnittsleistung um eine Größenordnung, so nehmen auch Peakpower und Pulsenergie um eine Größenordnung ab.

Die gesamten, hier erwähnten Daten sind zusammen mit den entsprechenden, gemessenen Lebenszeiten (bei ungefähr vergleichbaren Temperaturen) in Tabelle 3 aufgelistet. Es ist allerdings schwierig, die Ergebnisse direkt miteinander zu vergleichen, auch wenn man sich die Peakpower-Werte als Basis zu Rate zieht, da beispielsweise die Anregungswellenlänge einen nicht zu vernachlässigbaren Einfluss besitzt. Trotzdem sind Tendenzen erkennbar. So kann zum Beispiel gesagt werden, dass bei einer 1,4 ps-Anregung mit einer Wellenlänge von 750 nm bei einer Temperatur von 4 K die kürzesten Abklingzeiten beobachtet werden konnten.

Tabelle 3: Abklingzeiten der Submonolagen-Quantenpunktlumineszenz bei unterschiedlichen Anregungsbedingungen. Die entsprechenden Anregungsbedingungen sind ebenfalls aufgelistet.

	532 nm	**750 nm**	**770 nm**
Pulslänge	90 ps	1,4 ps	150 fs
Repetitionsrate	76 MHz	82 MHz	76 MHz
Durchschnittsleistung	20 mW	500 mW	1 - 10 - 100 mW
Peakpower	2,75 W	4,1 kW	0,082 - 0,82 - 8,2 kW
Pulsenergie	0,26 nJ	6,1 nJ	0,013 - 0,13 - 1,32 nJ
Lebensdauer	**400 ps**	**225 ps**	**400 - 600 - 1000 ps**
	(10 K)	(4 K)	(5 K)

Eine entscheidende Frage ist allerdings noch, welchen Einfluss die Anregungsleistung auf die Lumineszenzabklingdauer der Submonolagen-Quantenpunkte hat. Um dies näher zu untersuchen, wurde die Anregungsleistung varriiert. Abb.43 zeigt das dynamische Verhalten der SML-Quantenpunkte für verschiedene Anregungsleistungen bei tiefen Tempe-

[2]Für die Berechnung der Peakpower und der Pulsenergie wurde die Wellenlänge miteinbezogen und eine Gauss-Pulsform angenommen.

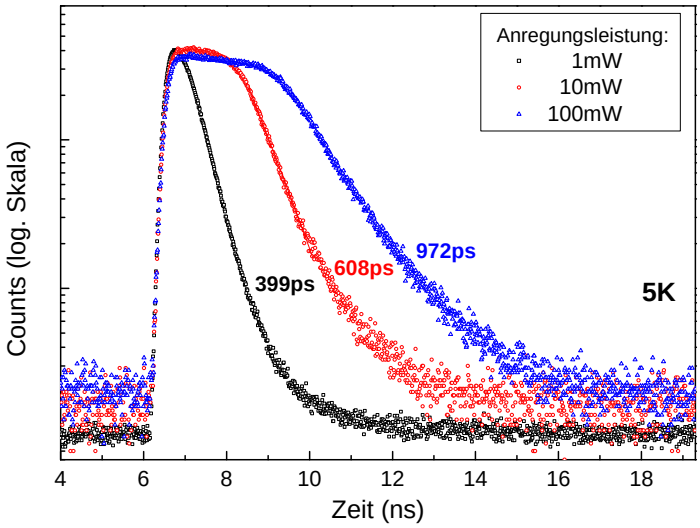

Abbildung 43: Einfluss der Anregungsleistung: Sättigung der SML-Lumineszenz für hohe Leistungen. Die hier präsentierten Transienten wurden von Thomas Switaiski mit einem 150 fs-Laser und einer Anregungswellenlänge von 770 nm gemessen.

raturen von 5 K. Bei verhältnismäßig geringen Anregungsleistungen von 1 mW (schwarze Transiente) besitzen die hier untersuchten SML-Quantenpunkte eine Abklingkonstante von etwa 400 ps. Erhöht man nun jedoch die Anregungsleistung, so kommt es zu Veränderungen. In den Transienten sind zwei Effekte zu beobachten. Zum einen kommt es zur Ausbildung eines Plateaus, zum anderen verlängern sich die Abklingzeiten. Diese Plateaubildung spricht für eine Sättigung des entsprechenden Lumineszenzprozesses, dass heißt die Submonolagen-Quantenpunkte können nur bis zu einem gewissen Wert angeregt werden bei dem sämtliche SML-Zustände der entsprechenden Übergangsenergie besetzt sind. Dass heißt: Darüber hinaus sättigt dieser Übergang. Aufgrund von Nachfütterungsprozessen aus höherenergetischen Zuständen beziehungsweise Übergängen oder über Transferprozesse von anderen Strukturen in der Probe kann sich je nach Anregungsleistung diesen Plateau über mehrere Nanosekunden hinstrecken, bis alle Nachfütterungsprozesse abgeklungen sind. Erst dann können sich auch die Submonolagen-Zustände vollständig abbauen. In den Transienten ist jedoch zusätzlich beobachtbar, dass sich je höher die Anregungsleistung ist auch die Abklingkonstante verlängert. In der schwarzen Transiente ohne Plateau konnte eine Lebenszeit von circa 400 ps festgestellt werden. Bei einer Anregungsleistung von 10 mW (rote Transiente) beträgt die Lebensdauer ungefähr 600 ps, während die 100 mW-Transiente (blau) ein Abklingen von beinahe 1 ns aufweist. Die Erhöhung der Abklingdauer könnte zum einen auf die entsprechende Zeitkonstante des Nachfüllprozesses hinweisen. Ein denkbarer Transferprozess aus den entsprechenden Ladungsträgerreservoirs in die nun nach und nach rekombinierenden SML-Quantenpunktzustände scheint eine längere Zeitkonstante besitzen als die SML-Rekombination. Die beobachtete Lebensdauerverlängerung könnte allerdings auch (oder zumindest teilweise) auf einen Wärmeeffekt zurückgeführt werden.

Der fs-Laser besitzt hohe Pulsenergien und erwärmt die Probe kurzfristig lokal. Wie bereits zuvor erwähnt wurde, verlängert sich die Lebensdauer der Submonolagen-Lumineszenz mit steigender Temperatur. Egal, welchen Ursprung die beobachtbare Lebensdauersteigerung mit höheren Anregunsleistungen nun tatsächlich besitzt, so ist es doch eine Tatsache, dass bei zu hohen Laserleistungsspitzen die SML-Lumineszenz zu einem erheblich späteren Zeitpunkt vollständig abgeklungen ist, da es zu dem zuvor beschriebenen Sättigungs- und Nachfüllprozess kommt. Für die 150 fs-Anregung (770 nm) liegt der Grenzwert der durchschnittlichen Anregungsleistung scheinbar im einstelligen mW-Bereich, bei der eine Peakpower von lediglich wenigen hundert Watt zu verzeichnet ist. Allerdings konnte bei einer ps-Anregung (750 nm) mit Leistungspitzen von mehr als 4 kW kein entsprechendes Sättigungsverhalten beobachtet werden.

4.4 Polarisationseigenschaften

4.4.1 Motivation: CdSe-Submonolagen-Quantenpunkte

Für eine Verwendung von Submonolagenquantenpunkten in kantenemittierenden Lasern ist auch eine Kontrolle der Polarisationseigenschaften nötig. Und für eine Integration als Gewinnmedium in optischen Verstärkern wäre beispielsweise eine unpolarisierte Emission vorteilhaft. Bei Einzelquantenpunkten kann zum Beispiel durch die wachstumsgesteuerte Beeinflussung des Aspektverhältnisses der SML-Quantenpunkte die gewünschen Polarisationeigenschaften eingestellt werden. Bei Mehrfachstapeln von Quantenpunktschichten gibt es allerdings noch eine weitere Möglichkeit. Einen starken Einfluss auf die Polarisation kann zum Beispiel die Kopplung von Quantenpunkten in vertikaler Richtung bei solchen Mehrfachstapeln haben. Unpolarisierte Emission kann über eine gezielte Formung der Elektronen- und Lochwellenfunktion in vertikal gekoppelten SML-Quantenpunkten erreicht werden. Eine solche vertikale Kopplung kann über den Abstand der einzelnen SML-Schichten eingestellt werden. Werden die SML-Quantenpunkte in Mehrfachstapeln mit genügend kleiner Spacer-Dicke gewachsen, so sind sie überwiegend in ihrer Position korreliert. Eine korrelierte bzw. antikorrelierte Abhängigkeit könnte es ermöglichen, die Polarisation der Emission über die Zwischenschichtdicke gezielt einzustellen, da es möglich sein sollte, bei vertikaler Korrelation und einer bestimmten Dicke der Zwischenschichten einen Übergang von TE- zu TM-Polarisation zu erreichen.

Die Bedingungen, unter denen kleine Inseln vertikal koppeln, sind von Shchukin und Bimberg zusammengefasst worden[Shchukin99]. Dabei konnte vorhergesagt werden, dass es mit kleiner werdendem Abstand der 2D-Inseln zu einem Übergang von Antikorrelation zu vertikaler Korrelation kommen sollte. Die Spacerschicht in Bezug auf die laterale Periode der SML-Struktur spielt dabei eine entscheidende Rolle. Der Übergang von Antikorrelation zu gekoppeltem Wachstum kann erzielt werden, wenn die Spacerdicke auf ungefähr ein Drittel der lateralen Periode reduziert wird. Im Falle von CdSe-SML-Schichten beträgt die kritische Schichtdicke dabei etwa 3 nm. Dies konnte im Folgenden dann auch zum Beispiel an CdSe/ZnSe-Quantenpunkte experimentell gezeigt werden[Krestnikov99, Litvinov01].

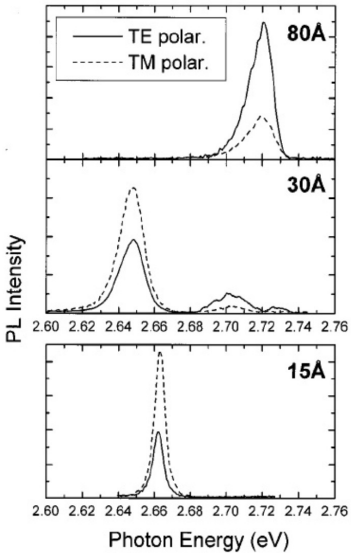

Abbildung 44: Polarisationeigenschaften der Kantenemission von CdSe-Submonolagen in Abhängigkeit von der Spacerdicke. Die Abbildung wurde der Referenz [Krestnikov99] entnommen.

Bei CdSe-Submonolagen-Strukturen[Krestnikov99] konnte dann auch bezüglich der Polarisationseigenschaften beobachtet werden, dass bei starker vertikaler Kopplung die Emissionen hauptsächlich TM-polarisiert (transversal-magnetisch) sind, während bei ungekoppelte SML-Quantenpunkten vorwiegend eine TE-Polarisation (transversal-elektrisch) beobachtbar ist (siehe dazu Abb.44, welche aus [Krestnikov99] entnommen wurde). Bei Antikorrelation entspricht die Emssionsenergie dem Schwerlochexziton. Für kleiner werdende Abstände entwickelt sich eine niederenergetische Lumineszenz, die dem korrelierten Zustand zugeordnet werden kann und andere Polarisationseigenschaften aufweist. Die Kantenemission von un- bzw. antikorrelierten Quantenpunkten ist bevorzugt TE-polarisiert, weil aufgrund der 2D-Form der Inseln eine erheblich verstärkte Schwerloch-k-Quantisierung in Wachstumsrichtung auftritt (verglichen mit der lateralen Richtung). Auf diese Weise ist die Schwerloch-Exzitonemission überwiegend TE-polarisiert (zwischen 50 und 60 Prozent). Eine laterale Quantisierung kann jedoch auch TM-artige Emission hervorrufen. Während in Quantenfilmen eine Schwerloch-Exzitonemission ausschließlich TE-polarisiert ist (siehe dazu Abb.45), kann also bei SML-Quantenpunkten eine solche Depolarisation ermöglicht werden. Für sphärische oder kubische Quantenpunkte ist allerdings keine bevorzugte Polarisation der Exzitonlumineszenz zu erwarten. Da eine vertikale Kopplung eine Ausdehnung der Schwerlochwellenfunktion in Wachstumsrichtung zur Folge hat, wird die k-Quantisierung reduziert. Damit haben korrelierten bzw. antikorrelierten Zustände unterschiedliche Polarisationseigenschaften.

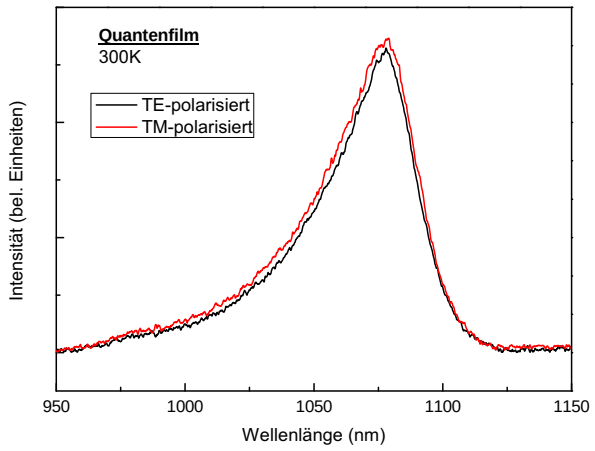

Abbildung 45: Zum Vergleich: Polarisationsabhängigkeit einer reinen Quantenfilmlumineszenz.

4.4.2 InAs-Submonolagen-Quantenpunkte

Über die Spacerdicke kann also die Polarisation der Emission beinflusst werden. Außerdem haben Untersuchungen an InAs-Monolagenschichten gezeigt, dass für die jeweilige Emissionspolarisation entsprechend die strahlende Rekombination von entweder Schwer- bezeihungsweise Leichtloch-Exziton zugrunde liegen, welches an die Monolage gebunden ist[Goni00].

Im Folgenden sollen InAs-Submonolagen-Quantenpunktenproben aus der Wachstumsunterbrechungsserie bezüglich ihrer Polarisationseigenschaften untersucht werden. Zur Polarisationsuntersuchung dieser Proben muss die Lumineszenz in Kantengeometrie aufgenommen werden. Die hier präsentierten polarisationsabhängigen PL-Spektren wurden mit einem Argon-Ionen-Laser der Wellenlänge von 488 nm angeregt. Sämtliche Messungen wurden bei Zimmertemperatur und mit einer cw-Anregungsleistung von etwa 400 mW durchgeführt. Die Proben dieser Serie haben alle eine Spacerdicke von 5 nm. Sie sollten damit eher antikorreliert sein und überwiegend TE-polarisiert sein. Im Falle von etwas dünneren GaAs-Zwischenschichten wurden allerdings mittels XSTM auch an diesen SML-Quantenpunktproben vertikal über mehrere Schichten zusammenhängende InAs-Agglomerationen beobachtet[Lenz11].

Zunächst stellt sich dann erst einmal die Frage, ob die Lumineszenz unter Kantengeometrie unverändern im Vergleich zu den Messungen in Reflexion unter 532-nm-Anregung aus Abb.30 bleibt. Die gleichen fünf Proben wurden nun in Kantengeometrie untersucht und die resultierenden Spektren sind in Abb.46 zusammengefasst. Im Großen und Ganzen weisen alle Proben vergleichbare Spektren auf. Sämtliche Lumineszenzen sind (wenn auch teilweise mit leichten Abweichungen bei der energetischen Position) vorhanden.

Zwei Proben fallen jedoch etwas auf. Zum einen veränderte sich bei dem magentafarbe-

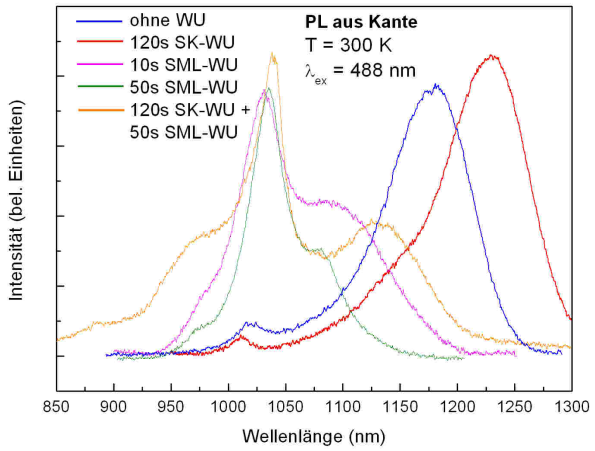

Abbildung 46: PL-Spektren bei 300 K der verschiedenen SML-Proben mit unterschiedlichen Wachstumsunterbrechungen (detektiert aus der Kante der Proben). Vergleiche dazu die Spektren gemessen in Reflexion unter 532 nm-Anregung aus Abb.30.

nen Spektrum (Probe mit der 10 s-SML-Wachstumsunterbrechung) das Intensitätsverhältnis der zwei dominaten Lumineszenzen. Während im Spektren in Abb.30 beide Emissionen etwa gleich stark sind, so ist in Kantengeometrie die Lumineszenz um 1025 nm fast doppelt so stark im Vergleich zur 1100 nm-Emission. Zum anderen hat sich die Lumineszenz bei höheren Wellenlänge etwas rotverschoben. Unter Reflexion separierten sich beide Linien um etwa 95 nm. In Kantengeometrie beträgt der Abstand allerdings nur noch ungefähr 60 nm. Warum es zu diesen Unterschieden bei genau dieser Probe kommt, muss hier ungeklärt bleiben.

Was die Lumineszenz der Probe mit beiden Unterbrechungsvariaten betrifft (orangenes PL-Spektrum), so zeigt die Kantenemission deutlicher, dass die Schulter der kurzwelligeren Flanke der SML-Quantenpunktlumineszenz nicht ausschließlich mit der Asymmetrie der SK-Lumineszenz erklärt werden kann. Vielmehr wird eine andere Erklärung dieser Schulter immer wahrscheinlicher. Wenn man sich die energetische Position (971 nm entspricht 1,278 eV) dieser Emission genauer betrachtet, so fällt auf, dass sie um etwa 79 meV zur SML-Lumineszenz verschoben ist (1035 nm entspricht 1,199 eV). Dieser Abstand deckt sich mit dem energetischen Abstand zwischen den zwei Anregungskanälen der entsprechenden Probe, die mithilfe der PLE-Spektroskopie in Kapitel 4.2 ermittelt wurden. In Abb.36 kann ein Abstand von 80 meV abgelesen werden. Analog lässt sich die Emissionsenergie der SML-Schulter der zwei Proben mit SML-Wachstumsunterbrechung (magenta und grün) ebenfalls mit dem höherenergetischen Anregungskanal aus den entsprechenden PLE-Messungen übereinstimmend feststellen. Da bereits zuvor geklärt wurde, dass dieser Anregungskanal höchstwahrscheinlich den SML-Quantenpunkten entspringt, liegt es nahe, eine Zuordnung als angeregter Zustand der Submonolagen-Quantenpunkte vorzu-

nehmen. Für die Probe mit beiden Unterbrechungen (orange) ist möglichweise sogar ein zweiter angeregter Zustand beobachtbar, der bei 888 nm lumineszierт - was einem energetischen Abstand von fast 200 meV zur SML-Lumineszenz entspricht. In den entsprechenden PLE-Spektren konnte in einem solchen Abstand zum SML-Anregungskanal allerdings keine Resonanz beobachtet werden.

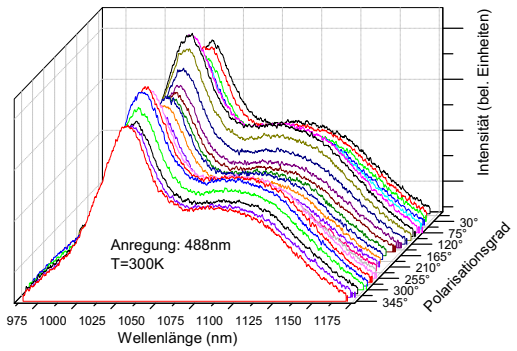

Abbildung 47: PL-Spektren der Probe mit der 10 s-SML-Wachstumsunterbrechung in Abhängigkeit vom Polarisationswinkel.

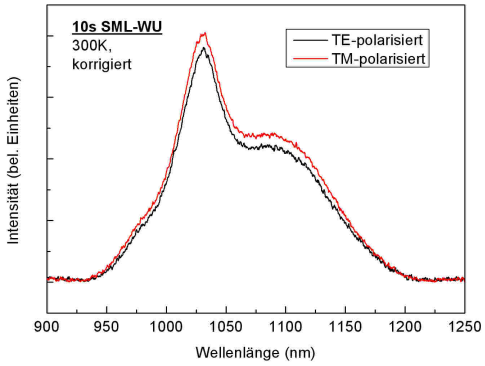

Abbildung 48: Polarisationsgrad von TE- bzw. TM-Polarisation der Probe mit der 10 s-SML-Wachstumsunterbrechung.

In Abb.47 sind Photolumineszenzspektren der Probe mit der 10 s-SML-Wachstumsunterbrechung bei einer Temperatur von 300 K in Abhängigkeit vom Polarisationswinkel des detektionsseitigen Polarisators aufgetragen (in 15°-Schritten). Es ist deutlich erkennbar, dass die Intensität zwar von dem Winkel des Polarisators vorm Detektor abhängt, dies jedoch nicht besonders stark ausgeprägt ist. Insbesondere bei der (für ein Spektrum dieser Probe typischen) intensivsten SML-Quantenpunktlumineszenz ist eine deutliche lineare Polarisations beobachtbar. Vergleicht man jedoch einmal direkt die Spektren unter den jeweiligen Winkeleinstellungen des Polarisators, die entweder TE- (schwarzes Spektrum) beziehungsweise TM-polarisiertes Licht (rotes Spektrum) passieren lassen, so ist deutlich erkennbar, dass sich die Spektrum kaum unterscheiden (siehe dazu Abb.48). Im Rahmen der Genauigkeit ist jedoch ausschließlich eine etwas stärkere Intensität für TM-polarisiertes Licht feststellbar. Dies trifft sowohl für die SML- als auch auf die Stranski-Krastanov-Quantenpunktlumineszenz zu, was auf eine Kopplung zwischen beiden Lumineszenzen hinweist.

Das beobachtete Verhalten spricht bei dieser Probe mit der 10 s-SML-Wachstumsunterbrechung für eine wachstumsbedingten Situation, die zu einer nahezu unpolarisierten Emission führte. Die leicht stärkere TM-Polarisation (Zunahme um 6,5 Prozent im Vergleich zur TE-Polarisation) deutet auf eine eher korrelierte Quantenpunktkonfiguration hin - wie sie in XSTM-Untersuchungen für Proben mit etwas dünneren Spacerschichten stark ausgeprägt beobachtet werden konnten[Lenz11].

Die Spektren sind natürlich bezüglich des Einflusses vom detektorseitigen Monochro-

mator auf die Polarisationseigenschaften korrigiert worden. Dazu wurde eine Lampe vor den Monochromatoreintrittsspalt gestellt und die entsprechende Veränderung der tatsächlich konstanten und unpolarisierten Abstrahlinstensität in Abhängigkeit von dem Polarisatorwinkel aufgenommen. Die auf diese Weise feststellbare Intensitätsveränderung ist offensichtlich lediglich von den verwendeten Messplatzelementen wie dem Monochromator hervorgerufen worden und musste für sämtliche Messungen berücksichtigt werden. Im Folgenden werden für die restlichen SML-Quantenpunkt-Proben lediglich die TE- bzw. TM-polarisierten Spektren miteinander vergleichen.

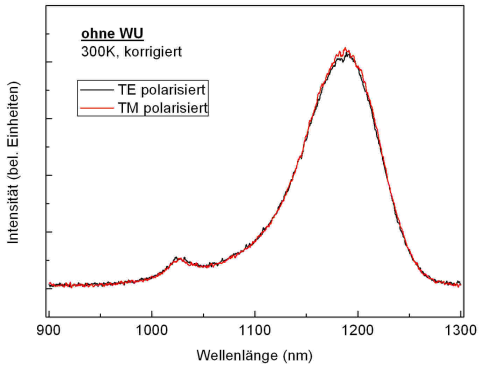

Abbildung 49: Zum Vergleich: Polarisationsabhängigkeit der Probe ohne Wachstumsunterbrechung.

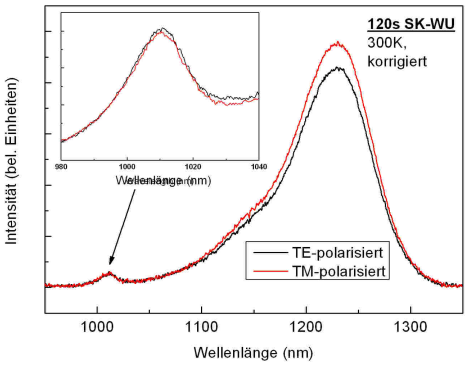

Abbildung 50: Polarisationsabhängigkeit der Probe mit der 120 s-SK-Wachstumsunterbrechung.

Eine wichtige Frage bezüglich der Polarisationseigenschaften stellt sich hinsichtlich der verschiedenen Wachstumsunterbrechungen. Zunächst soll die Wachstumsunterbrechung nach der Abscheidung der Stranski-Krastanov-Quantenpunkte betrachtet werden. Die SML-Probe ohne jegliche Wachstumsunterbrechung zeigt absolut keine Abhängigkeit vom Polarisatorwinkel. Sowohl SML- als auch SK-Lumineszenz sind für beide Winkeleinstellungen gleich stark (vergleiche Abb.49). Betrachtet man nun jedoch die Probe mit der 120 s andauernden SK-Wachstumsunterbrechung (siehe Abb.50), so wird deutlich sichtbar, dass die SML-Polarisation von dieser Wachstumsunterbrechung gänzlich unberührt bleibt. Beide Spektren sind diesbezüglich nahezu identisch. Das kleine Bild innerhalb Abb.50 zeigt eine Wiederholung der Messung speziell optimiert für den Wellenlängenbereich der SML-Lumineszenz. Dies bestätigt die soeben getroffene Aussage, dass die SML-Emissionpolarisation auch mit einer SK-Wachstumsunterbrechung unpolarisiert verbleibt. Die Lumineszenz der SK-Quantenpunkte ist im Gegensatz dazu jedoch stärker TM-polarisiert. Die Intensität des TM-polarisierten Lichtes ist fast 12 Prozent stärker im Vergleich zur TE-polarisierten Emission. Für diese Probe sind also SML- und SK-Lumineszenz im Polarisationsverhalten unterschiedlich - anders als es die Proben mit der 10 s-SML-Unterbrechung (Abb.48) beziehungsweise ohne Wachstumsunterbrechung (Abb.49) zeigten. Eine Begründung für die Andersartigkeit speziell der Probe mit der 120 s-SK-Unterbrechung könnte in

stärkeren Separation der SML- und SK-Quantenpunktzustände liegen. Die Verschiebung der SK-Lumineszenz hin zu größeren Wellenlängen könnte zusätzlich die Aufhebung einer möglichen Kopplung der beiden Emissionen zur Folge haben.

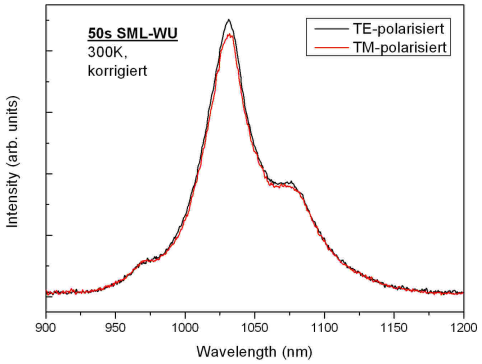

Abbildung 51: Polarisationsabhängigkeit der Probe mit der 50 s SML-Wachstumsunterbrechung.

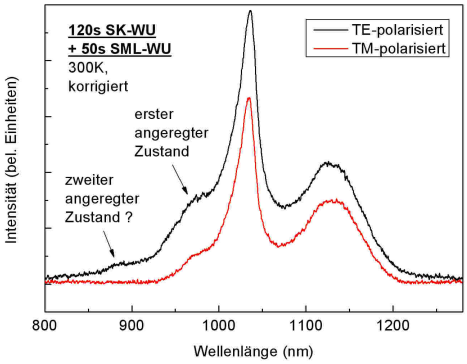

Abbildung 52: Polarisationsabhängigkeit der Probe mit der 120 s SK- und 50 s SML-Wachstumsunterbrechung.

Auch der Einfluss einer Wachstumsunterbrechung nach der SML-Quantenpunkt-Deposition wurde untersucht. Vergleicht man dazu die Probe ohne Wachstumsunterbrechung (Abb.49) mit der Probe mit 50 s SML-Unterbrechung (Abb.51), so deutet sich im Gegensatz zur 10-sekündigen Unterbrechung eher ein schwacher Trend zur TE-Polarisation hin an. Die TE-polarisierte SML-Emission ist dabei etwa 5 Prozent stärker als dessen TM-polarisiertes Licht. Die SK-Quantenpunktlumineszenz weist ebenfalls dieses Verhalten auf - wenn auch etwas schwächer ausgeprägt (lediglich 3,5 Prozent Unterschied). Trotzdem kann behauptet werden, dass eine SML-Quantenpunkt-Wachstumsunterbrechung kaum Einfluss auf die Polarisationseigenschaften hat.

Verglichen mit allen anderen Proben zeigt allerdings die Probe mit sowohl einer SK- (120 s) also auch einer SML-Wachstumsunterbrechung (50 s) ein erheblichen Unterschied zwischen der TE- und der TM-polarisatierten Emission. Warum allerdings gerade diese Probe einen solch starke Polarisationsabhängigkeit aufweist, muss hier ungeklärt bleiben. Die entsprechenden Messungen wurde mehrmals wiederholt, nur um zum identischen Ergebnis zu führen. Wie Abb.52 allerdings eindrucksvoll aufzeigt, ist für diese Probe eine TE-Polarisation deutlich bevorzugt. Die SK-Quantenpunkte emittieren um fast das 1,5-fache stärker, wenn der Polarisator auf TE-Polarisation eingestellt ist. Auch die SML-Quantenpunkte sind für TE-Polarisation um ebenfalls nahezu 150 Prozent stärker. In den Spektren in Abb.52 sind einmal zusätzlich die angeregten Kanäle markiert und eingehender betrachtet worden. Der erste angeregte Kanal bei 971 nm zeigt eine Intensitätszunahme auf das Dreifache, wenn ausschließlich TE-polarisiertes Licht detektiert wird. Für den vermuteten zweiten angeregten Zustand bei 888 nm ist es sogar noch deutlicher. Er kann unter TM-Polarisation überhaupt nicht beobachtet werden. Dieser Zustand emittiert also

ausschließlich TE-polarisiert. Die an dieser Stelle als angeregten Submonolagen-Zustände interpretierten Emissionen weisen also je nach Ordnung eine stärkere Polarisationsabhängigkeit auf.

4.5 Zusammenfassung des Kapitels

Im Kapitel "InAs-Submonolagen-Quatenpunkte" wurden verschiedene Proben mittels Anregungsphotolumineszenzspektroskopie (PLE) sowie zeitintegrierter als auch zeitaufgelöster Photolumineszenzspektroskopie (PL) chrakterisiert. Ziel dieses Kapitels war es, den Einfluss von unterschiedlichen wachstumsbedingten Änderungen sowie einer Schicht von Stranski-Krastanov-Quantenpunkte auf zu beobachtende Transferprozesse sowie deren Dynamik zu untersuchen. Die in dieser Arbeit betrachteten Wachstumsbedingungen betrafen die Zwischenschichtdicke sowie diverse Wachstumsunterbrechungen. Auf diesem Wege sollen die optischen und dyanamischen Eigenschaften optimiert werden. Da unterhalb der InAs-Submonolagen, die in Zehnfachstapeln gewachsen worden sind, Stranski-Krastanov-Quantenpunkte als Keimquellen für ein vertikal korreliertes SML-Wachstum eingebracht worden sind, sind auch von diesen Quantenpunkten Emissionen beobachtbar. Auch deren Eigenschaften sowie deren Einfluss auf die Emissionscharakteristika der SML-Quantenpunkte wurden näher untersucht, um die Vor- und Nachteile einer solchen Kopplung zu erforschen.

PLE-Messungen führten zu mehreren Erkenntnissen bezüglich der Transferprozesse. Die SK-Lumineszenz ist für sämtliche Proben über zwei bevorzugte Kanäle anregbar, die sich als die Submonolagen-Quantenpunkte sowie deren erster angeregter Zustand erklären lassen. Die SK-Quantenpunkte können also über Transferprozesse, die die SML-Quantenpunkte miteinschliesst, ideal mit Ladungsträgern angeregt werden. Ein weiterer Anregungskanal können Phononen sein - insbesondere bei Proben mit starker SML-SK-Separation. Jedoch sind weder die SK-, noch die SML-Quantenpunkte anregbar, wenn mit einer Energie, die dem GaAs-Matrixmaterial entspricht, eingestrahlt wird. Die PLE-Spektren weisen für diese Anregungsenergie ein stark ausgeprägtes Minimum auf. Die SML-Quantenpunkte sind jedoch nur unter idealen Bedingungen effizient anregbar. Bei geringen Anregungsleistungen, zu hohen Anregungsenergien oder niedrigen Temperaturen werden bevorzugt zunächst die SK-Quantenpunktzustände besetzt. Erst bei höheren Leistungen oder Temperaturen rekombinieren Ladungsträger auch über SML-Quantenpunktzustände. Licht, dass vom SML-Grundzustand kommt, kann bei manchen Proben nur unter bestimmten Anregungsbedingungen wie insbesondere der Temperatur detektiert werden. Erst ab einer gewissen Temperatur sind SML-Emissionen beobachtbar.

Die Polarisationseigenschaften der untersuchten Proben zeigen, dass trotz der vergleichsweisen dicken Zwischenschicht eine vertikal korrelierte SML-Quantenpunktanordnung vorliegt. Dass wird aus dem verhältnismäßig geringen Polarisationsgrad der SML-Lumineszenz geschlossen, die bei den meisten Proben kaum einen Unterschied zwischen TE- und TM-polarisiertem Licht aufweist. Der Grund dafür dürfte in der Präsenz der Stranksi-Krastanov-Quantenpunkte liegen, die sich unterhalb der SML-Schichten befinden.

Proben, deren SK- und SML-Energien nah beieinander liegen, zeigen eine stärkere Kopplung zwischen deren Eigenschaften sowie eine ausgeprägtere Submonolagen-Lumineszenz. Es konnten auch nur an einigen Proben direkte SML-Emissionen des angeregten Zustandes gefunden werden. Bei einer Probe ist möglicherweise sogar ein zweiter angeregter Zustand der Submonolagen-Quantenpunkte beobachtet worden. Die angeregte Zuständen

zeigen allerdings einen stärkeren Polarisationsgrad als es die Grundzustandslumineszenz tut.

Die Dynamik der Submonolagen-Quantenpunkte zeigte sich als sehr sensitiv auf Anregungsbedingungen. So haben zum Beispiel die Laserwellenlänge, die Pulsbreite und die Intensität des anregenden Laserpulses sowie die Temperatur einen erheblichen Einfluss auf die dynamischen Eigenschaften. Bei tiefen Temperaturen besitzen die SML-Quantenpunkte unter günstigen Anregungsbedingungen eine Abklingkonstante von etwa 200 ps; für höhere Temperaturen nimmt (analog zur SK-QP-Lumineszenz) die Lebenszeit zu. Auch in dieser Hinsicht zeigten sich die Proben mit größerem Energieabstand zwischen SML- und SK-Emission als vorteilhaft, auch wenn die Lumineszenzintensität der SML-Strukturen bei diesen schwächer ist. Bei hohen Anregungsintensitäten erfährt die SML-Lumineszenz ein Sättigungsverhalten, das auf Nachfüllprozesse zurückzuführen ist. Wenn die Laserleistung zu hoch gewählt wird, so ist die SML-Emission zu einem erst erheblich späteren Zeitpunkt vollständig abgeklungen. Dieses Sättigungsverhalten ist allerdings nur bei fs-Anregung (also unter Hochanregungsbedingungen) beziehungsweise tiefen Temperaturen beobachtbar. Besonders die SK-Lumineszenz besitzt für Temperaturen unterhalb von 40 K eine erhöhte Anklingzeit. Es existiert also bei tiefen Temperaturen ein limitierender Prozess, der das Nachfüllen der SML- und SK-Zustände verlangsamt. Auch das GaAs scheint einen limitierenden Faktor darzustellen. Transienten belegen, dass das Lumineszenzanklingen stark verlängert wird, wenn mit höheren Energien als des GaAs angeregt wird.

5 Einzelne Quantenpunkte - Mikrophotolumineszenzmessungen an InGaN-Quantenpunkten

Von ersten experimentellen Untersuchungen spektral schmaler Emissionslinien einzelner Quantenpunkte wurde 1994 berichtet. Einige Gruppen demonstrierten schmale Emissionen von Quantenpunkten in GaAs/AlAs-Quantenwellstrukturen mittels konfokaler Spektroskopie[Zrenner94, Brunner94] beziehungsweise mit Hilfe von Rasternahfeldspektroskopie (*Scanning Near-field Optical Microscopy*, SNOM[Hess94]). Zur selben Zeit wurden auch spektral schmale Emissionen von selbstorganisiert gewachsenen InAs/GaAs-Quantenpunkten in geätzten Mesastrukturen beobachtet[Marzin94].

Zunächst wurde versucht, Beweise für den Ursprung dieser mit einzelnen Quantenpunkten in Verbindung gebrachten Emissionslinien zu finden. Es wurde angenommen, dass die optische Linienbreite dieser Linien bei einer null-dimensionalen Zustandsdichte von der Temperatur unabhängig sein müßte[Grundmann95]. Allerdings wurde eine schwache Verbreiterung beobachtet, was sich jedoch durch die Wechselwirkung mit akustischen Phononen erklären liess[Gammon96]. Es wurden Linienbreiten bei Raumtemperatur von bis zu 20 meV[Splithoven99] gemessen.

Bereits 1994 wurden auch schon erste Belege für Mehrteilchenprozesse in einzelnen Quantenpunkten gefunden. Mittels anregungsleistungsabhängiger Photolumineszenzspektroskopie sowie resonanter Zweiphotonenabsorptionsexperimenten konnten eindeutige Eigenschaften von biexzitonischen Zuständen nachgewiesen werden[Brunner94]. Auch die Besetzung eines Quantenpunktes mit mehreren Exzitonen wurde experimentell bewiesen. Es konnten bis zu sechs Exzitonen in einem einzigen Quantenpunkt beobachtet werden[Bayer00].

Von zentralem Interesse für diese Arbeit soll die Untersuchung der optischen Eigenschaften und der zeitaufgelösten Dynamik individueller Quantenpunkte sein. Das Verständnis grundlegender optischer Eigenschaften zum Beispiel zum Verhalten der verschiedenen exzitonischen Komplexe oder zur Rekombinationsdynamik sind notwendig für unterschiedlichste optoelektronische Anwendungen.

5.1 Die Probe

Da für diese Arbeit keine geeignete Arsenid-basierte Quantenpunktprobe zur Verfügung stand (bezüglich einer geringen Quantenpunktdichte) und der Mikrophotolumineszenz zunächst für das Nitrid-Materialsystem optimiert war, wurde eine InGaN-Quantenpunktprobe ausgewählt.

Die hier untersuchte InGaN-Quantenpunkt-Probe wurde in einem MOCVD-Niedrigdruck-Reaktor an der TU Berlin auf einem Si(111)-Substrat gewachsen. Zunächst wurde eine 40 nm dicke AlN-Bufferschicht aufgewachsen. Darauf folgen 400 nm $Al_{0,05}Ga_{0,95}N$. Darüber befindet sich eine GaN/InGaN/GaN-Heterostruktur. Die erste GaN-Schicht ist dabei 600 nm dick. Die InGaN-Schicht hat lediglich eine Dicke von 2 nm. Für das Wachstum des InGaN wurden TMIn, TMGa und Ammoniak als Precurser bei einer Wachstumstem-

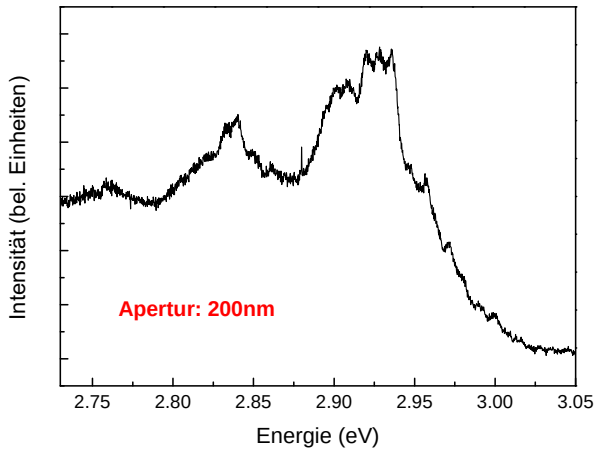

Abbildung 53: μPL-Spektrum, gemessen an einer ungeeigneten Position auf der Probenoberfläche. Die Quantenpunktdichte ist hier viel zu hoch und das Spektrum ähnelt eher der Ensemble-Photolumineszenz.

peratur von 1100 K und einem Reaktordruck von 400 mbar verwendet. Die abschließende GaN-Schicht beträgt 30 nm. Für die Zwecke der Mikrophotolumineszenz wurde später eine 70 nm-Metallmaskierung aufgedampft.

Eine mittels DALI-Verfahren (*Digital Analysis of Lattice Images*[Hawes99]) analysierte HRTEM-Aufnahme (hochaufgelöste Transmissions-Elektronen-Mikroskopie) gemessen im Querprofil der InGaN-Quantenfilmschicht wies eine eindeutige Quantenpunktbildung auf[Seguin04]. Mithilfe der Proportionalität zwischen den beobachteten lokalen Gitterkonstanten und der Indiumkonzentration konnten Rückschlüsse auf den lokalen Indiumgehalt gemacht werden. Das Ergebnis weist offensichtliche Schwankungen des Indiumgehaltes innerhalb der InGaN-Schicht auf. Bereiche mit erhöhtem Indiumgehalt haben Durchmesser in lateraler Richtung zwischen 2 und 7 nm und können damit als Quantenpunkte bezeichnet werden, da sie sich somit als Lokalisierungszentren von Ladungsträgern eignen. Die in der InGaN-Schicht gefundenen Quantenpunkte schwanken nicht nur bezüglich ihrer Größe, sondern auch hinsichtlich ihres Indiumgehaltes.

Die Quantenpunktdichte dieser Probe liegt bei etwa 10^{11} pro cm^2, also etwa 1000 Quantenpunkte unter einem μm^2 großen Laserfleck für rein optisch fokussierte Mikrophotolumineszenzanregung. Mittels Metallmaskierung befinden sich allerdings Aperturen mit Durchmessern von 10 μm, 200 nm bzw. 100 nm. Lediglich die 100 nm-Löcher eignen sich für Einzelquantenpunktuntersuchungen, da sich hier die Anzahl der darunter befindlichen Quantenpunkte genügent reduzieren läßt. Selbst unter den 200 nm großen Öffnungen liegen im Schnitt über 30 Quantenpunkte. In Abb.53 ist ein entsprechendes Spektren, das an einer solchen 200 nm-Apertur gemessen wurde, dargestellt. Das Spektren enthält so viele Linien, dass diese überhaupt nicht voneinander trennbar sind und das Spektrem eher dem eines Quantenpunktensembles ähnelt.

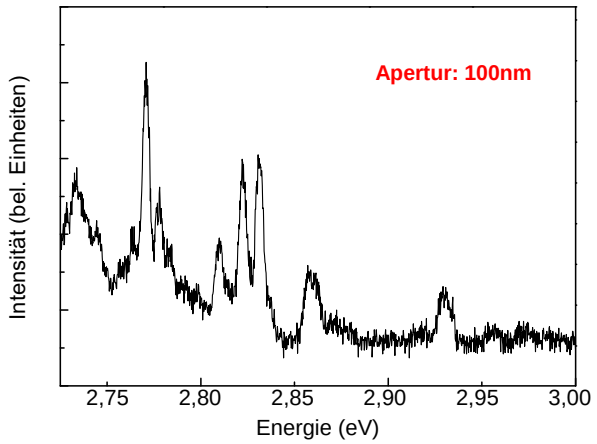

Abbildung 54: μPL-Spektrum weniger Quantenpunkte. Wenige scharfe Linien sind hier beobachtbar. Positionen auf der Probenoberfläche wie diese eignen sich gut, um hier weiterführende Untersuchungen durchzuführen.

Selbst bei den 100 nm großen Öffnungen ist es für die für diese Arbeit zur Verfügung stehende Probe eher selten, eine für eine weitergehende Untersuchung geeignete Position auf der Probenoberfläche zu finden. Im Idealfall enthält ein Spektrum nur sehr wenige Linien, so wie es Abb.54 exemplarisch zeigt. Sämtliche Spektren wurden mit einem frequenzverdoppelten Titan:Saphir-Laser angeregt (λ_{exc}=3,15 eV). Diese vereinzelten, scharfen Emissionslinien können über einem breiten Energiebereich beobachtet werden (zwischen 2,75 und 3,15 eV). Der gesamt Bereich der Ensembleluminesszenz ist damit abgedeckt, deren Maximum sich bei etwa 3,05 eV befindet und eine Halbwertsbreite von ungefähr 75 meV besitzt.

Generell gilt im Gegensatz zu Atomen oder Molekülen bei der optischen Spektroskopie von individuellen Halbleiterquantenpunkten, dass eine inhomogene Verbreiterung der Emssionslinien unvermeidbar ist. Die optische Spektroskopie von hexagonalen Nitrid-Quantenpunkten ist jedoch aufgrund des Faktes zusätzlich erschwert, dass die Emissionslinien erheblich homogen verbreitert sind im Vergleich zu Arsenid-Quantenpunkten (nur wenige μeV). Im Falle der für diese Arbeit untersuchten Probe liegen die Halbwertsbreiten der Emissionslinien zwischen 5 und 10 meV (siehe Abb.54). Diese Werte sind etwa um drei Größenordnungen größer als zum Beispiel typische Werte für InAs-Quantenpunkte (einige μeV). In früheren Publikationen wurden auch Halbwertsbreiten um einige hundert μeV für InGaN-Quantenpunktemissionen gemessen (z.B. schmaler als 700μeV[Oliver03]). Als Ursache für diese spektrale Verbreiterung kann eine Dephasierung mittels Phononen vernachlässigt werden, da sie bei tiefen Temperaturen kaum eine Rolle spielen. Vielmehr läßt sich die homogene Verbreiterung bei Nitrid-Quantenpunkten mit Ladungsträgerfluktuationen erklären. Es gibt es starkes, inneres elektrisches Feld in Wurtzid-Nitridheterostrukturen. Bereits eine kleine Änderung des lokalen, elektrischen Feldes ruft eine messbare Verschiebung

der spektralen Lage hervor. Dies wurde bereits mithilfe von theoretischen Berechnungen für z.B. GaN/AlN-Quantenpunkte gezeigt[Andreev00].

5.2 Spektrale Diffusion

5.2.1 Kathodolumineszenz

Da in den von dieser Probe gemessenen Spektren die Dichte der zu beobachtenden Emissionslinien noch ziemlich groß ist, wird eine Methode benötigt, die Aufschluss darüber geben kann, welche Linien von ein und denselben Quantenpunkten stammen. In der Kathodolumineszenz (CL) existiert eine solche Methode. Die CL ist eine Variante der Lumineszenzspektroskopie, bei der ein Elektronenstrahl die Quantenpunkte zur Emission anregt. Bei mehrmaliger Messung von CL-Spektren, konnte beobachtet werden, dass die individuellen Linien in ihrer energetischen Position und Intensität schwanken. Dieses Phänomen spielt sich häufig auf einer Zeitskala von mehreren 100 ms ab, kann aber auch bis zu Sekunden variieren. Dieses Schwanken wird als Jitter oder spektrale Diffusion bezeichnet und wird durch Änderungen des lokalen elektrischen Feldes des jeweiligen Quantenpunktes hervorgerufen. Deshalb besitzen alle Linie, die vom selben Quantenpunkt stammen, ein identisches Jitter-Muster[Seguin04].

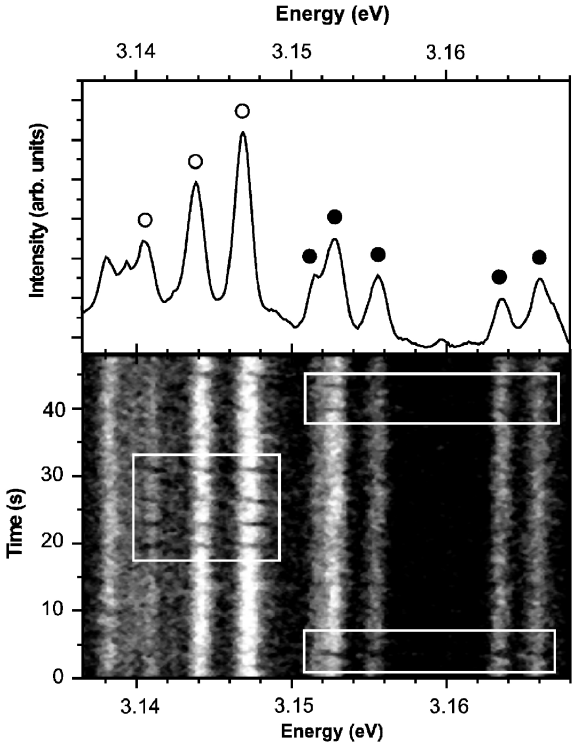

Abbildung 55: Kathodolumineszenzspektren: Emissionslinien vereinzelter Quantenpunkte. Zwei Gruppen von Linien besitzen ein identisches Jitter-Verhalten. Diese Abbildung wurde der Referenz [Winkelnkemper07] entnommen.

Eine solche Zuordnungsmöglichkeit zeigte sich nicht nur bei den Nitriden, sondern konnte auch bei CdSn/ZnSe-[Türck00] oder InAs/GaAs-Quantenpunkten[Rodt05] erfolgreich angewandt werden.

Ein Beispiel für eine solche Quantenpunktzuordnung mithilfe des Jitters bei CL-Messungen ist für die in dieser Arbeit untersuchten Probe in Abb.55 dargestellt. Diese Abbildung wurde der Referenz[Winkelnkemper07] entnommen und zeigt die zeitliche Entwicklung eines InGaN-Quantenpunktspektrums. Zu diesem Zweck wurde eine Serie von 160 CL-Spektren mit einer Integrationszeit von 300 ms aufgenommen. Es konnten zwei Gruppen von Emissionslinien beobachtet werden, die das gleiche Schwankungsverhalten besitzen. In den markierten Bereichen sind besonders charakteristische Fluktuationen zu sehen. Diese Messungen zeigen, dass allein von einem einzigen Quantenpunkt bis zu fünf Linien stammen können, die sich typischerweise über einen Energiebereich von weniger als 20 meV erstrecken. Dies gibt einen Hinweis darauf, dass diese Linien unterschiedlichen exzitonischen Komplexen des gleichen Quantenpunktes entsprechen.

5.2.2 Photolumineszenz

Die InGaN-Quantenpunktprobe wurde im Rahmen dieser Arbeit bezüglich der spektralen Diffusion mittels der Photolumineszenzmethode untersucht. Das Ziel war, zu erfahren, ob auch charakrteristische Jitter in PL-Messungen zur Zuordnung der Emissionslinien beitragen kann. Dazu wurde eine geeignete Apertur mit möglichst wenig Emissionslinien ausgesucht. Von dieser Stelle wurden jeweils 120 Spektren mit fester Integrationszeit hintereinander aufgenommen. Um mögliche Fluktuationen auf unterschiedlichen Zeitskalen zu berücksichtigen, wurden dafür zwei verschiedene Integrationszeiten ausgewählt (siehe Abb.56 bzw. 57).

Bezüglich der gewählten Zeitskalen konnte allerdings bei sämtlichen Messungen keine spektrale Diffusion festgestellt werden. Zum einen könnte dies am spektralen Auflösungsvermögen des verwendeten Monochromators liegen. Verhältnismäßig kleine Energieverschiebungen sind dann nicht auflösbar. Zum anderen ist auch eine zu geringe Anregungsleistung als Erklärung denkbar. Ist die Anzahl der generierten Ladungsträger zu klein, kann der Einfluss auf das elektrische Feld zu gering ausfallen, um sichtbare Fluktuationen zu erzeugen. Denkbar ist jedoch auch, dass die Fluktuationen auf einer anderen Zeitskala ablaufen, als es die Integrationszeit, die gewählt wurde, nachweisen könnte. Kürzere Integrationszeiten sind allerdings mit dem zur Verfügung stehenden Aufbau schwierig, da die Signalintensität sonst zu schwach wird. Möglicherweise erklärt sich damit auch die selbst für InGaN-Quantenpunkte relativ große Linienbreite von mehreren meV.

Da mittels Photolumineszenz keine spektrale Diffusion beobachtbar war, wie es für die gleiche Probe mit der Kathodolumineszenz der Fall war, ist es allerdings sehr wahrscheinlich, dass die gewählte Anregungart viel entscheidender ist. Bei der Kathodolumineszenz werden mittels Elektronenstrahl die Quantenpunkte angeregt. Dabei ist es beispielsweise denkbar, dass Oberflächeneffekte eine entscheidende Rolle spielen, die zur spektralen Diffusion führen.

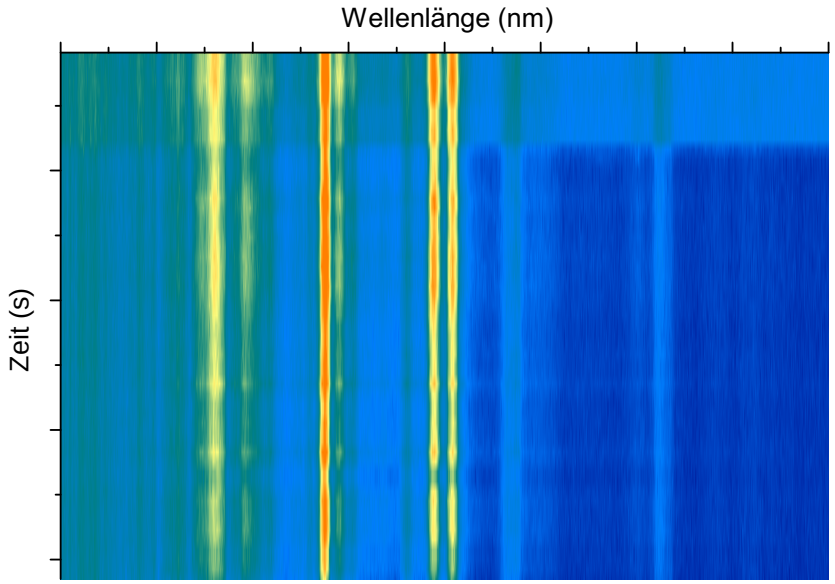

Abbildung 56: Emissionslinien vereinzelter Quantenpunkte. 120 Spektren mit jeweils 500 ms Integrationszeit.

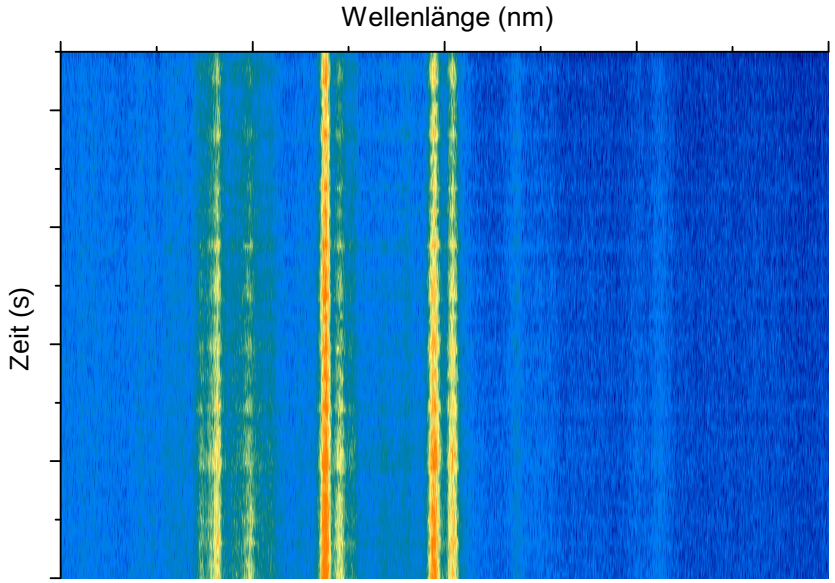

Abbildung 57: Emissionslinien vereinzelter Quantenpunkte. 120 Spektren mit jeweils 100 ms Integrationszeit.

5.3 Leistungsabhängigkeit einzelner QPs

Bisher wurden ausschließlich PL-Spektren präsentiert, die bei einer festen Anregungsleistung gemessen wurden. Im Folgenden sollen Spektren verglichen werden, die mit unterschiedlichen Laserleistungen angeregt wurden. Dies soll die Zuordnung einiger Emissionslinien ermöglichen.

Selbst in den PL-Spektren, die nur noch wenige Emissionslinien aufweisen, können diese jedoch verschiedene Ursprünge habe. Zum einen liegt die Vermutung natürlich nahe, dass sie von mehreren unterschiedlichen Quantenpunkten herrühren. Eine weitere Möglichkeit könnten jedoch auch verschiedene exzitonische Komplexe (wie Biexziton, Trion usw.) oder angeregte Zustände sein.

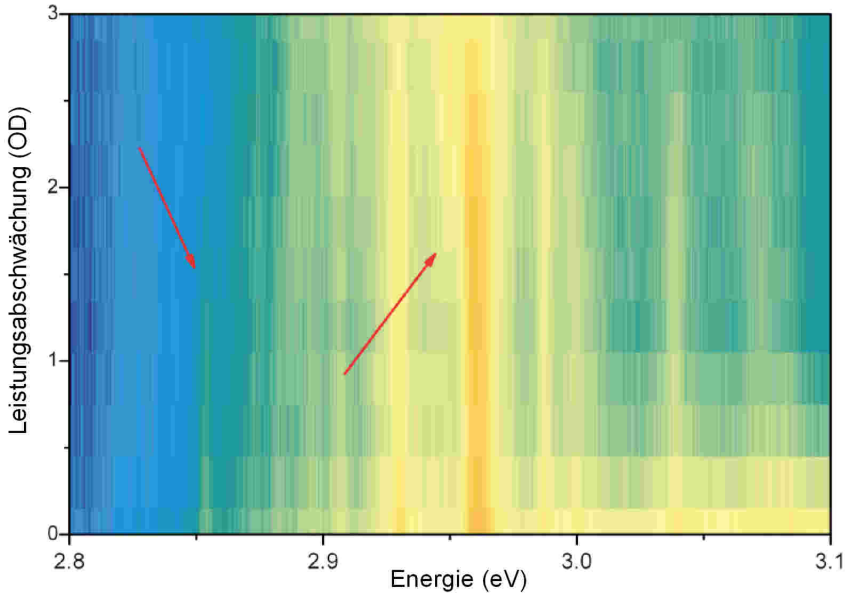

Abbildung 58: Emissionslinien vereinzelter Quantenpunkte für variierende Anregungsleistungen.

Abb.58 zeigt ein Beispiel für leistungsabhängige Photolumineszenz. Die Spektren werden dabei in einem festen Spektralbereich (hier zwischen 2,8 und 3,1 eV) gemessen und bei gleichbleibender Anregungsenergie (λ_{exc}=3,15 eV) mithilfe eines stufenlosverstellbaren Filterrades zunehmend abgeschwächt. In der Abbildung wird diese Abschwächung in Form der optischen Dichte (OD) aufgetragen. Eine optische Dichte von 0 bedeutet dabei, dass keinerlei Abschwächung (P_{exc}=500 mW) vorgenommen wurde, während OD=1 einer Verringerung der Anregungsleistung um eine Größenordnung entspricht. Für die hier präsentierten Messungen wurde die optische Dichte zwischen 0 und 3 gewählt. Höhere Anregungsleistungen waren nicht geeignet, da dann sämtliche Spektren von einer starken Untergrundlumineszenz überlagert wurden. Kleinere Anregungsleistungen als OD=3 waren aus zweierlei Gründen nicht möglich. Zum einen war das verwendete Filterrad nicht weiter geeignet

für stärkere Abschwächungen. Dieses Problem hätte jedoch durch eine Abschwächung der Ti:Sa-Leistung umgangen werden können. Zum anderen nimmt natürlich die Emissionsintensität der Quantenpunkte mit sinkender Anregungsintensität ebenfalls kontinuierlich ab. Dies muß beachtet werden, daß heißt es muß die Akkumulationsdauer während der Messung angepaßt werden, um die Spektren vergleichbar zu machen. Ab einem gewissen Punkt ist die Emissionsintensität jedoch so gering, dass keine sinnnvollen PL-Spektren mehr gemessen werden konnten.

Die meisten Linien in Abb.58 zeigen für den zur Verfügung stehenden Anregungsleistungsbereich (zwischen 500 und 0,5 mW) keine nennenswerten Veränderungen. Es gibt jedoch zwei Linien, die eindeutig eine Leistungsabhängigkeit aufweisen. Sie sind in der Abbildung mit Pfeilen markiert. Zum einen gibt es bei 2,95 eV eine Emission, die ausschließlich für optische Dichten kleiner als 1,66 gemessen werden kann. Dass bedeutet, dass sie bei hoher Anregungsleistung sättigt und damit sehr wahrscheinlich exzitonischer Natur ist. Zum anderen gibt es bei 2,851 eV eine Linie, die unterhalb einer optischen Dichte von ungefähr 2 nicht mehr beobachtbar ist. Dieses superlineare Intensitätsverhalten deutet entweder auf einen multiexzitonischen Ursprung hin oder ist mit einem angeregten Zustand erklärbar. Die Vermutung, ob diese Linien, die sich in einem energetischen Abstand von 49 meV zueinander befinden, von ein und demselben Quantenpunkt stammen, kann jedoch zu diesem Zeitpunkt nicht zweifelsfrei geklärt werden. Es ist allerdings sehr unwahrscheinlich, da die Bindungsenergien im InGaN deutlich geringer als 49 meV sein sollten.

5.4 Polarisationsabhängigkeit einzelner QPs

5.4.1 Kathodolumineszenz

CL-Untersuchungen an diesen InGaN-Quantenpunkten zeigten, dass alle Emissionslinien eine ausgeprägte lineare Polarisation besitzen[Winkelnkemper07]. Dabei sind insbesondere die Linien, die vom gleichen Quantenpunkt stammen, in orthogonalen Richtungen polarisiert.

Für andere Materialsysteme wurden polarisierte Emissionslinien der Feinstrukturaufspaltung von Exzitonen[Seguin05] und geladenen Biexzitonen[Seguin06] zugeordnet. Der Grund für die Polarisation liegt in der anisotropen Austauschwechselwirkung zwischen eingeschränkten Elektronen und Löchern. Diese Polarisationsmuster wurden für Nitrid-Quantenpunkte jedoch nicht beobachtet. Da die Quantenpunkte größere Gitterkonstanten als das Umgebungsmaterial besitzen, sind kompressive, hydrostatische Verspannung und kompressive, biaxiale Verspannung in der Wachstumsebene die hauptsächlichen Verspannungskomponenten. Bei Zinkblende-InAs-Quantenpunkte führt die biaxiale Verspannung zu einer Aufspaltung der zwei höchsten Valenzbänder (Schwer- und Leichtloch) und damit zu einer deutlichen Trennung aller drei Valenzbänder (Schwer- und Leichtloch sowie Split-off-Band). In Wurtzit-Nitrid-Quantenpunkten gibt es jedoch bereits eine Aufspaltung der obersten zwei Valenzbänder: das A- und das B-Band. Diese Aufspaltung wird durch die biaxiale Verspannung jedoch nicht maßgeblich beeinflusst, weshalb die eingeschränkten A- und B-artigen Lochzustände in InGaN-Quantenpunkten energetisch sehr nah beieinander

liegen. Es konnte beispielsweise auch gezeigt werden, dass eingeschränkte Lochgrundzustände größtenteils A-artig (h_A) und erste angeregte Lochzustände hauptsächlich B-artig (h_B) sind[Winkelnkemper06].

5.4.2 Photolumineszenz

Die Frage ist nun, ob sich solche Erkenntnisse auch auf Photolumineszenzexperimente übertragen lassen. Aus diesem Grund sind polarisationsabhängige PL-Messungen an den InGaN-Quantenpunkten durchgeführt worden.

Abb.59 zeigt an einer geeigenten Position auf der InGaN-Quantenpunktprobe beispielhaft die Polarisationsabhängigkeit der beobachtbaren Linien, die in den Photolumineszenzspektren an dieser Stelle gemessen werden. Für diese Untersuchung wurde das von der Probe emittierte Licht mittels eines Polarisatorrades in Abhängigkeit vom stufenlos verstellbaren Winkel aufgenommen. Die Null wurde dabei willkürlich gewählt. In den Spektren sind zwar mehrere, aber jedoch spektral separierte Emissionslinien zu sehen. Beinahe sämtliche Linien haben bei einem kompletten Umlauf des Polarisators zwei Maxima in einem festen Abstand von 180°, während bei dazu senkrechter Winkeleinstellung die Emission nahezu komplett verschwindet. Um dies genauer zu betrachten sind in Abb.60 beispielhaft zwei Spektren mit zueinander senkrechter Polarisation dargestellt. Die mit **1** markierte Linie ist im roten Spektrum so gut wie verschwunden. Im schwarzen Spektrum ist sie sehr gut beobachtbar. Gleiches gilt für Linie **3**. Genau umgekehrt verhält sich hier Emission **2**; sie ist im schwarzen Spektrum nahezu ausgelöscht. Bei Linie **4** ist für die beide hier gewählten Polarisationen eine Emission deutlich erkennbar, obwohl sie im roten Spektrum etwas stärker ausgeprägt ist. Allerdings zeigt auch diese Linie zwei klare Maxima, wie in Abb.59 deutlich sichtbar ist. Die Linie, die direkt oberhalb von Emission **4** bei 2,940 eV liegt, besitzt zwar zwei zueinander um 180° verschobene Maxima, verschwindet jedoch niemals vollständig. Trotzdem hat diese Linie, genauso wie fast alle anderen ein klares Polarisationsverhalten, eben nur mit einem kleineren Polarisationsgrad. All diese Emissionslinien sind systematisch linear polarisiert. Dies ist in Übereinstimmung mit den Beobachtungen aus CL-Untersuchungen[Winkelnkemper07]. Einzige Ausnahme bildet dabei die Emissionslinie bei 2,953 eV, die mit **5** bezeichnet wurde. Sie zeigt so gut wie keine Abhängigkeit von dem Polarisationswinkel.

Die PL-Spektren aus Abb.59 zeigen, dass die an der entsprechenden Probenstelle gemessenen Emissionslinien sehr nah beieinander liegen (in einem Energiebereich von etwa 20 meV), während außerhalb dieses Bereiches so gut wie keine Lumineszenzen beobachtbar sind. Dies spricht entweder dafür, dass sämtliche angeregte Quantenpunkte vergleichbare Größen- und Kompositionsverteilungen besitzen, oder dass die Linien nur von wenigen Quantenpunkten erzeugt werden und multiexitonische Komplexe dieser Quantenpunkte sind. Da jedoch die leistungsabhängigen Messungen eine solche Aussäge nicht unterstützen, ist dies eher unwahrscheinlich. Zusätzlich zeigt Abb.60, dass ein leichter Lumineszenzuntergrund existiert. Möglicherweise stammt dieser von einer asymmetrischen, niederenergetischen Flanke der Linie **5**, die von akustischen Phononen hervorgerufen wird.

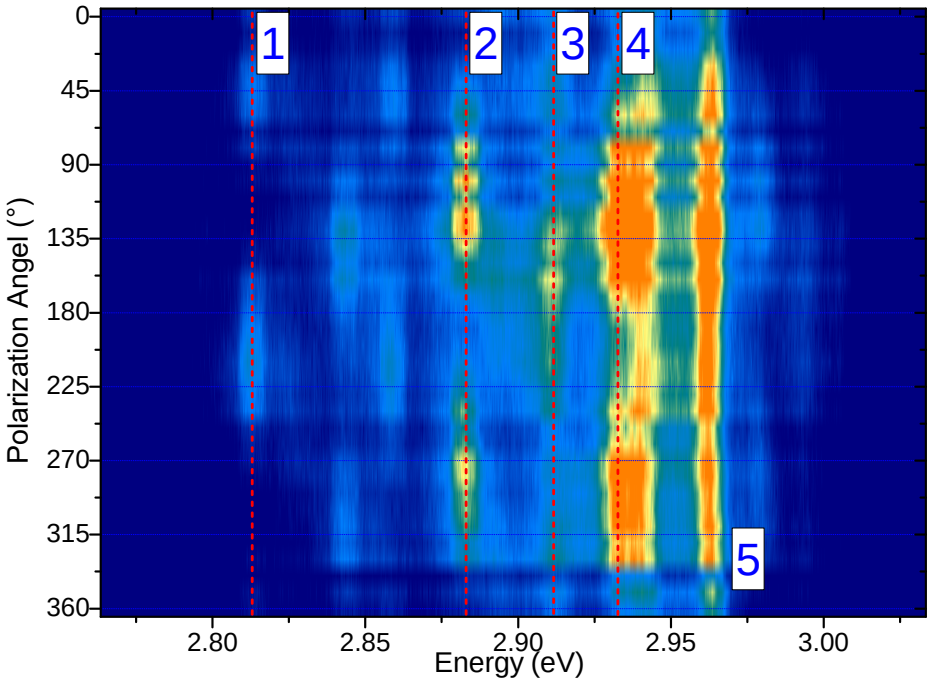

Abbildung 59: Beispiel für polarisierte Spektren: Polarisationseigenschaften von Emissionslinien vereinzelter Quantenpunkte.

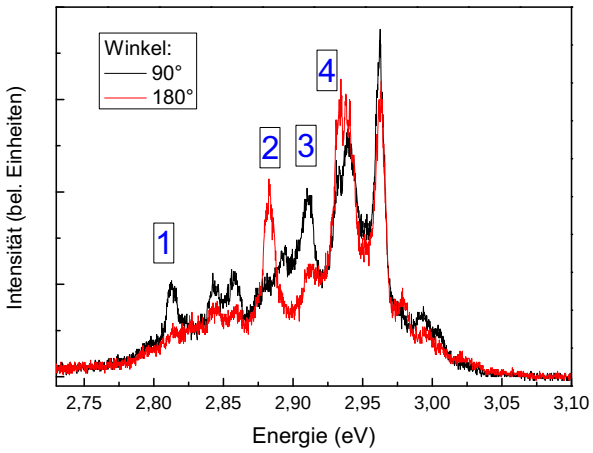

Abbildung 60: Emissionslinien vereinzelter Quantenpunkte unter zwei verschiedenen Polarisationswinkeln.

Tabelle 4: Winkeleinstellung der maximalen Intensität von liniear polarisierten Emissionslinien einzelner Quantenpunkte.

Linie	Emissionsenergie	Maximum 1	Maximum 2
1	2,813 eV	35°	215°
	2,845 eV	135°	315°
	2,857 eV	35°	215°
2	2,880 eV	113°	293°
3	2,907 eV	157°	330°
4	2,928 eV	130°	305°
	2,940 eV	125°	300°
5	2,953 eV	keine Maxima	
	2,978 eV	110°	290°

In Tabelle 4 sind für die neun ausgeprägtesten Emissionslinien dieser hier beispielhaft untersuchten Probenposition die Winkel der maximalen Emissionsintensitäten aufgelistet. Bis auf Linie **5** weisen sämtliche Emissionen eine ausgeprägte, lineare Polarisation, da die jeweiligen Intensitätsmaxima etwa um 180° voneinander versetzt auftreten.

Ein vergleichbares Verhalten konnte - wie bereits zuvor beschrieben - an diesen InGaN-Quantenpunkten auch in Einzelquantenpunkt-Kathodolumineszenzuntersuchungen beobachtet werden[Winkelnkemper07]. Realistische Achtband-**k**·**p**-Berechnungen offenbarten eine Erklärungsmöglichkeit für die beobachteten Polarisationen[Winkelnkemper08a]. Die Polarisation wird dort theoretisch mit Übergängen erklärt, die entweder mit A- oder B-Band-Lochzuständen und einer leichten Ausdehnung der Quantenpunkte in Zusammenhang stehen. Wenn ein Quantenpunkt etwas elongiert ist, so sind Übergänge, bei denen A-Band-Lochzustände h_A involviert sind, parallel zur Ausdehnungsrichtung polarisiert, während Übergänge, die B-Band-Lochzustände h_B beinhalten, senkrecht dazu polarisiert. Also ist die Polarisation von optischen Übergängen in Wurtzit-Quantenpunkten über die Lochzustände kontrollierbar, da sie sensibel auf die Quantenpunktform reagieren. Bereits eine minimale Asymmetrie bewirkt einen starken Polarisationsgrad. Und beinahe komplette lineare Polarisation tritt bei Ausdehnungsverhältnis von 1,25:1 auf[Winkelnkemper07].

Damit erklärt sich, dass Linie **5** aus Abb.59 quasi keine Polarisationsabhängigkeit besitzt. Diese Linie wird demzufolge von einem stark symmetrischen Quantenpunkt emittiert. Die Linie bei 2,940 eV stammt von einem lediglich leicht asymmetrischen Quantenpunkt, da der Polarisationsgrad nicht so hoch ist wie bei allen anderen Emissionen in Abb.59. Diese müssen damit von verhältnismäßig stark elongierten Quantenpunkten hervorgerufen werden. Als Schlußfolgerung kann noch die Aussage getroffen werden, dass die meisten der für diese Arbeit untersuchten Einzelquantenpunkte verhältnismäßig stark asymmetrisch sein müssen und nur einige wenige ein Ausdehnungsverhältnis von 1 besitzen.

Was bei den linear polarisierten Emissionslinien in Abb.59 jedoch noch auffällt, ist,

dass sie abweichende Polarisationswinkeln haben (unter denen die Linie ihre maximale Intensität besitzen). Manche Linien zeigen eine nahezu gleiche Abhängigkeit, bei anderen ist sie nahezu senkrecht dazu ausgeprägt, und bei wiederum anderen liegt der Polarisationswinkel irgendwo dazwischen. Es stellt sich die Frage, ob diese Linien von verschiedenen Quantenpunkten stammen oder verschiedene exzitonische Komplexe eines oder weniger Quantenpunktes sind. Klar ist jedenfalls, dass Emissionen von Übergänge eines Quantenpunktes - je nachdem, ob sie h_A oder h_B involvieren - senkrecht zu einander polarisiert sein müßten. Es ist also durchaus möglich, dass Linie **1** und die Emission bei 2,940 eV vom gleichen Quantenpunkt stammen, da sie genau um 90° verschoben sind (siehe Tabelle 4). Eine Zuordnung des entsprechenden exzitonischen Komplexes ist allerdings leider noch nicht möglich. Da eine große Anzahl von Einflussfaktoren (wie Kristallfeld und Spin-Orbit-Aufspaltung, Form und Größe der jeweiligen Quantenpunkte, Besetzungswahrscheinlichkeiten der unterschiedlichen Zustände sowie eingebaute elektrische Felder) die genaue Übergangsenergie der verschiedenen Komplexe bestimmen, kann an dieser Stelle leider keine weitere Aussage getroffen werden.

5.5 Lebenszeiten einzelner Quantenpunkte

5.5.1 Numerisches Modell: Vorhersagen

Im Gegensatz zu GaN/AlN-Quantenpunkten[Kako06] sind InGaN-Quantenpunkte keine freistehenden, dreidimensionalen Objekte, die im Stranski-Krastanov-Modus gewachsen werden. Sie sind Indium-reiche Inseln, die von einem InGaN-Quantenfilm mit niedrigerer Indiumkonzentration umgeben sind. Diese Indium-reiche Inseln besitzen keine eindeutig definierte Form. Theoretisch beeinflussen kleine Fluktuationen der Größe, Form oder chemischer Komposition der Quantenpunkte sehr stark die Abklingzeiten localisierter, exzitonischer Übergänge.

Achtband-**k**·**p**-Berechnungen zeigten, dass interne piezo- and pyroelektrische Felder innerhalb der Quantenpunkte eine sehr sensible Abhängigkeit der strahlenden Lebenszeiten von der genauen Quantenpunktgeometrie und -komposition besitzen[Winkelnkemper08b]. Zum Beispiel haben Quantenpunkte mit größerer Höhe oder lateraler Durchmesser eine deutlich verlängerte strahlende Lebenszeit. Aber auch die chemische Zusammensetzung des den Quantenpunkt umgebenden Materials kann die strahlende Lebensdauer beeinflussen. Insgesamt ist also eine große Verteilung der exzitonischen Lebenszeiten zu erwarten. Als direkte Folge davon erklärt sich auch das multiexponentielle Abklingverhalten der Ensemble-Photolumineszenz. Einzelne Quantenpunkte sollten jedoch ein eindeutig monoexponentielles Abklingen aufweisen.

5.5.2 Erste experimentelle Ergebnisse

In zeitaufgelösten Ensemble-Makro-PL-Untersuchungen an der für diese Arbeit zur Verfügung stehenden InGaN/GaN-Quantenpunktprobe wiesen sämtliche für alle Detektionsnergien gemessenen Transienten einen multiexponentiellen Zerfall auf. Eine mögliche Erklä-

rung für dieses Verhalten liegt in der Beobachtung, dass die Transienten einzelner Quantenpunkte einen monoexponentiellen Zerfall haben[Bartel04, Robinson03], unabhängig davon ob die Linien exzitonischen oder biexzitonischen Ursprung besitzen[Rice05]. Allerdings unterscheiden sich die Lebensdauern. Die strahlende Rekombinationsdauer eines Biexzitons ist dabei erheblich länger im Vergleich zum Exziton. Es wurde gezeigt, dass Exzitonzustände wieder aufgefüllt werden während das Biexziton strahlenden zerfällt. Dies hat zur Folge, dass das Abklingen der Exzitontransienten allerdings von diesem Wiederauffüllen beeinflußt und schlußendlich verlängert wird. Da Ensemble-PL-Transienten allerdings keine Leistungsabhängigkeit zeigten[Bartel04], ist anzunehmen, dass der Einfluss von Biexzitonen in dieser Probe kaum vorhanden ist. Eine andere Erklärung für das multiexponentielle Abklingen könnte in einer breiten Verteilung der Lebenszeiten einzelner Quantenpunkte liegen, die in Größe, Form und Indiumgehalt variieren.

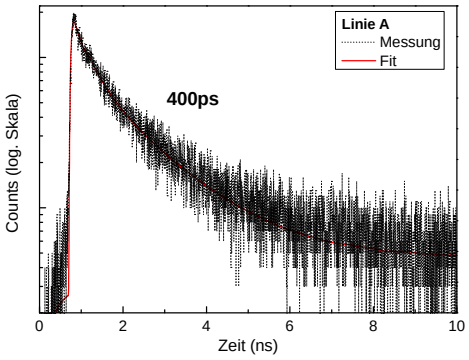

Abbildung 61: Transiente A einer Emission eines einzelnen Quantenpunktes.

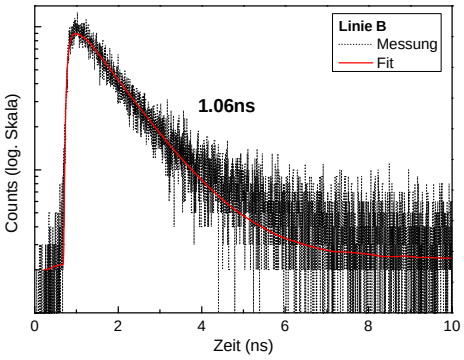

Abbildung 62: Transiente B einer Emission eines zweiten einzelnen Quantenpunktes.

Um eine Größenordnung für die Abklingdauer der Ensemble-Photolumineszenz zu erhalten, wurde versucht, die Transienten als monoexponentielles Abklingen bestmöglichst anzufitten. Die so ermittelte Zeit von ungefähr 1,2 ns entspricht natürlich nicht einem reellen Übergangsprozess sondern ist quasi eine Mittelung der Lebenszeiten der verschiedensten Quantenpunkte dieser Probe, also aller Größen, Formen und Zusammensetzungen. Wechselt man nun von Makro- auf Mikrophotolumineszenz, so können bei geeigneten Positionen einzelne separierte Quantenpunktemissionslinien zeitaufgelöst untersucht werden. Dabei konnte - wie durch die theoretischen Vorhersagen zu erwarten war - eine große Streuung der zu beobachteten Abklingzeiten festgestellt werden. Die strahlende Lebensdauer schwankte für die hier gemessenen Transienten zwischen wenigen hundert Picosekunden und fast zwei Nanosekunden. Zwei Beispiele für solche Einzelpunkttransienten sind in den Abbildungen 61 und 62 dargestellt. Diese zeitaufgelösten Messungen wurden an zwei verschiedenen Einzelquantenpunktemissionslinien aus der selben Öffnung in der Metallmaskierung durchgeführt. Während Linie A (aus Abb.61) ein verhältnismäßig schnelles Abklingen von 400 ps besitzt, zeigt Linie B eine deutlich längere Lebenszeit von 1,06 ns. Da diese Transienten

an derselben Öffnung aufgenommen wurden, kann nicht ausgeschlossen werden, dass sie vom selben Quantenpunkt stammen. Möglicherweise handelt es sich dabei um verschiedene exzitonische Komplexe des gleichen Quantenpunktes. Schließlich ist zu erwarten, dass die strahlende Rekombinationsdauer eines Biexzitons zum Beispiel erheblich länger sein sollte im Vergleich zum Exziton. Da aber keine spektrale Diffusion an diesen Linien beobachtet werden kann, ist auch nicht möglich, solche Vermutungen zu belegen. Würde ein Quantenpunkt mehrere Emissionen besitzen, so sollten diese das gleiche spektrale Diffusionsverhalten aufweisen.

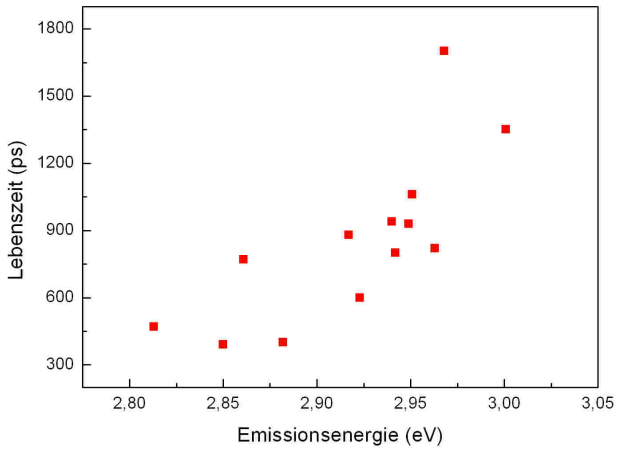

Abbildung 63: Gemessene Lebenszeiten von Einzelquantenpunktemissionen in Abhängigkeit von ihrer Emissionsenergie.

Eine weitere Beobachtung, die hier allerdings gemacht werden konnte, betrifft den Zusammenhang zwischen Emissionsenergie und Lebensdauer. Auch wenn für eine wirklich aussagekräftige Feststellung möglichweise nicht genügend viele Einzelquantenpunkttransienten aufgenommen wurden, so ist doch ein Trend erkennbar, wenn man die ausgewerteten Lebenszeiten als Funktion der Emissionsenergie aufträgt (siehe Abb.63): Linien mit größerer Emissionsenergie besitzen kürzere Lebenszeiten. Das ist auch verständlich. Das Exzitonconfinement ist direkt über die laterale Größe der Quantenpunkte gekoppelt. Je kleiner ein Quantenpunkt wird, desto stärker überlappen sich die Wellenfunktionen von Elektron und Loch, und umso stärker wird die Oszillatorstärke. Als Folge dessen nimmt die Rekombinationszeit mit zunehmender Quantenpunktemissionsenergie ab, weil kleinere Quantenpunkte bei größeren Energien emittieren.

Da aber die meisten für diese Arbeit gemessenen Transienten diesem Trend folgen, kann der Rückschluss gezogen werden, dass die Mehrzahl der Linien einem gleichen exzitonischen Komplex zuzuordnen sind. Würde die Anzahl der Biexzitonen in etwa der der Exzitonen

gleichen, so würde es eine stärkere Streuung in Abb.63 geben. Bei der Leistungsabhängigkeit einzelner Quantenpunkte (Kapitel 5.3) konnten nur sehr wenige Linien beobachtet werden, die ein superlineares Intensitätsverhalten besitzen, welches widerum für eines multiexzitonischen Ursprung sprechen würde. Es ist also sehr wahrscheinlich, dass die meisten Linien, die in den PL-Spektren beobachtet werden, exzitonisch sind und von verschiedenen Quantenpunkten emittiert werden.

5.6 Zusammenfassung des Kapitels

Im Kapitel "Einzelne Quantenpunkte - Mikrophotolumineszenzmessungen an InGaN-Quantenpunkten" wurden räumlich sowie zeitlich aufgelöste Photolumineszenzuntersuchungen einzelner InGaN/GaN-Quantenpunkte präsentiert. Es konnten Positionen auf der Probenoberfläche gefunden werden (unterstützt durch die Methode der Mikrophotolumineszenzspektroskopie in Verbindung mit einer Metallmaskierung), in denen nur wenige scharfe Emissionslinien beobachtet werden konnten, die den Quantenpunktcharakter der zur Verfügung stehenden Probe belegen. Über den genauen Ursprung dieser Linien lassen sich zunächst nur wenige Aussagen treffen, da in der Mikrophotolumineszenz keine spektrale Diffusion beobachtbar war, mittels derer eine Zuordnung zu verschiedenen Quantenpunkten ermöglicht werden könnte (wie es bei der Kathodolumineszenzmethode der Fall ist). Allerdings konnte über leistungsabhängige Photolumineszenzuntersuchungen gezeigt werden, dass so gut wie keine Emissionslinien ein superlineares Intensitätsverhalten besitzen. Es wurden also nur wenige multiexzitonische Komplexe beobachtet. Durch polarisationsabhängige Photolumineszenzmessungen konnte gezeigt werden, dass verschiedene Linien ein unterschiedliches Polarisationsverhalten aufweisen, und damit von unterschiedlichen Quantenpunkten hervorgerufen werden. Da fast sämtliche Einzelquantenpunktemissionen ausgeprägt linear polarisiert sind, kann geschlussfolgert werden, dass die meisten der für diese Arbeit untersuchten Einzelquantenpunkte eine verhältnismäßig stark asymmetrische Form haben, während nur einige wenige Quantenpunkte lateral nicht elongiert sind. Zeitaufgelöste Photolumineszenzuntersuchungen an einzelnen Quantenpunkten zeigten, dass eine große Verteilung der Lebenszeiten innerhalb der InGaN-Quantenpunkte messbar ist. Die Abklingdauer schwankte zwischen wenigen hundert Picosekunden und fast zwei Nanosekunden. Diese Beobachtung passt sehr gut zu theoretischen Vorhersagen mittels Achtband-$\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$-Berechnungen, die eine sehr sensible Abhängigkeit der strahlenden Lebenszeiten von der genauen Quantenpunktgeometrie und -komposition prognostizieren. Es konnte zusätzlich beobachtet werden, dass Linien mit größerer Emissionsenergie kürzere Lebenszeiten besitzen.

6 Zusammenfassung

Die optischen und dynamischen Eigenschaften verschiedener Transferprozesse, Relaxationsmechanismen und Wechselwirkungen in unterschiedlichen Quantenpunktsystemen wurden in dieser Arbeit untersucht. Dabei wurde insbesondere auf den Einfluss von Wachstumsbedingungen oder -methoden, aber auch von Anregungskonditionen eingegangen. Die Wahl der Wachstumsmethode führt zu nicht unerheblichen Unterschieden bezüglich der optischen Eigenschaften, der gewachsenen Quantenpunktsysteme. Das Submonolagen-Quantenpunktwachstum beispielsweise hat eine größere Quantenpunktdichte zur Folge, während ein Wachstum im Stranksi-Krastanov-Modus eine Ausbildung einer Benetzungsschicht hervorruft. Diese Unterschiede beeinflussen schließlich auch die dynamischen Eigenschaften. Eine Benetzungsschicht bewirkt zum Beispiel eine Verlängerung der Lebenszeiten von exzitonischen Quantenpunktzuständen. Aber auch Quantenpunktgröße oder -komposition sowie möglicher Defekteinbau führen zu Veränderungen in den optischen und dynamischen Eigenschaften. Und schließlich spielt die Quantenpunktdichte eine nicht zu vernachlässigende Rolle. Quantenpunktensembles haben neben der typischen inhomogenen Verbreiterung, die durch eine Unkonformität der gewachsenen Quantenpunkte hervorgerufen wird, auch bezüglich der Dynamik gewisse Nachteile. Die Untersuchung einzelner Quantenpunkte ermöglicht es, gezielt Quantenpunkte einer bestimmte Größe und damit mit gezielten optischen Eigenschaften zu adressieren. Eine solche Adressierbarkeit macht auch die nähere Erkundung neuer Fragestellungen möglich, die durch Ensemble-Untersuchungen nicht erreichbar sind.

Innerhalb dieser Arbeit wurden drei Themengebiete diskutiert. Zunächst wurde die Wechselwirkung von Exzitonen mit Phononen in InAs/GaAs-Quantenpunktensembles betrachtet. Die Untersuchung der Dynamik brachte ein tieferes Verständnis verschiedener solcher Wechselwirkungen. Danach wurde der Einfluss einer erhöhten InAs-Quantenpunktdichte - hervorgerufen durch die Submonolagenwachstumsmethode - untersucht. Dabei konnte die Folge verschiedener Wachstumsbedingungen beleuchtet werden. Im letzten Teil dieser Arbeit wurden dann erste experimentelle Ergebnisse von einzelnen InGaN-Quantenpunkten vorgestellt.

Bei nichtpolaren InAs-Quantenpunkten ist eine Phononenkopplung an Exzitonen vergleichsweise schwach. In PLE-Spektren sowohl der Stranski-Krastanov- als auch der Submonolagen-Quantenpunkte des InAs-Quantenpunktsystems sind jedoch Transferprozesse mittels Phononen als Anregungskanäle beobachtet worden. Unter resonanten Anregungsbedingungen bei PL-Untersuchungen konnte schließlich eine Verstärkung von Exziton-Phonon-Wechselwirkungen beobachtet werden. Infolgedessen wurden zwei verschiedene Streu- beziehungsweise Lumineszenzprozesse, die zu solchen Wechselwirkungen zu zählen sind, sowohl zeitintegriert als auch zeitaufgelöst untersucht. Es konnten solche Prozesse bei Emissionsenergien beobachtet werden, die um ein beziehungsweise zwei LO-Phononen von der Laseranregungsenergie entfernt auftreten. Diese zwei Prozesse können gleichzeitig auftreten und miteinander konkurrieren. Aufgrund der charakteristischen Abklingzeiten der verschiedenen Transfer-, Streu- oder Rekombinationsprozesse war es möglich, einen resonanten

Raman-Streuprozess von phononen-assistierter Lumineszenz zu unterscheiden, obwohl sie in Photolumineszenzspektren wegen identischer Emissionsenergien nicht zu trennen sind. Diese Unterscheidbarkeit wird durch theoretische Berechnungen unterstützt, bei denen der Dichtematrixformalismus verwendet wurde. In den experimentellen Messungen konnten für die kohärente Ramanstreuung Lebenszeiten von weniger als 30 ps beobachtet werden, während die phononen-unterstützte Rekombination inkohärent abläuft. Diese weist Lebenszeiten auf, die über den involvierten Übergang innerhalb des elektronischen Systems der Quantenpunkte verknüpft sind. Typischerweise beträgt die Abklingzeit bei den in dieser Arbeit untersuchten InAs-Quantenpunkten nahezu unabhängig von der Anregungsenergie bei tiefen Temperaturen etwa 1 ns. Die phononen-assistierte Lumineszenz zeigt ein stark ausgeprägtes Resonanzverhalten unter ausgehenden Resonanzbedingungen. Dieser Prozess ist besonders intensiv, wenn die Anregung um ein Vielfaches eines LO-Phonons (insbesondere gilt dies für den 2LO-Prozess) oberhalb der Quantenpunktgrundzustandsenergie beträgt, und verschwindet vollkommen sobald eben diese Energie in der Anregung unterschritten wird. Selbst bei resonanter Anregung in den Übergang selbst ist keine Resonanzüberhöhung feststellbar. Durch die Kombination von temperaturabhängigen sowie zeitaufgelösten PL-Messungen konnte gezeigt werden, dass ein schwacher Phononen-Bottleneck-Effekt für tiefe Temperaturen unterhalb von 130 K auftritt, der die angeregten Ladungsträger bevorzugt über den phononen-assistierten Lumineszenzprozess abbaut. Oberhalb dieser Temperatur, verschwindet dieser Effekt und die herkömmliche Grundzustandslumineszenz wird wieder dominanter. Da die Energieseparation zwischen Grundzustand und erstem angeregten Zustand in etwa drei LO-Phononenenergien entspricht, können die erzeugten Ladungsträger jedoch auch bei tiefen Temperaturen genügend erfolgreich in den Quantenpunktgrundzustand transferiert werden, um in den PL-Spektren beobachtet werden zu können. Die Annahme eines Phononen-Bottleneck-Effektes wird noch durch die Beobachtung unterstützt, dass die Lumineszenz für Temperturen oberhalb von 130 K erheblich schneller anklingt - also effizienter angeregt werden kann. Die teilweise Unterdrückung der Rekombination über den Grundzustand unter ausgehender Resonanz erlaubt es den 1LO-Phononen kohärent zu streuen. Dies bedeutet möglicherweise, dass das Phononen-Bottleneck die kohärente Raman-Streuung erst aktiviert oder überhaupt möglich macht.

Der Einfluss von unterschiedlichen wachstumsbedingten Änderungen (Variation der Zwischenschichtdicke sowie diverse Wachstumsunterbrechungen) auf zu beobachtende Emissionen von InAs-Quantenpunkt-Zehnfachstapeln, die im Submonolagen-Modus gewachsen wurden, sowie deren Dynamik wurde mittels Anregungsphotolumineszenzspektroskopie sowie zeitintegrierter als auch zeitaufgelöster Photolumineszenzspektroskopie untersucht. Insbesondere eine Schicht von Stranski-Krastanov-Quantenpunkten, die als Keimquellen für ein vertikal korreliertes SML-Wachstum eingebracht worden sind, sowie deren Einfluss auf die optischen und dynamischen Eigenschaften der SML-Emission stand dabei im Mittelpunkt des Interesses. Die Polarisationseigenschaften der untersuchten Proben zeigen, dass trotz der vergleichsweisen dicken Zwischenschicht eine vertikal korrelierte SML-Quantenpunktanordnung vorliegt. Bei den meisten Proben war kaum einen Unterschied zwischen TE- und TM-polarisierter Emission feststellbar. Der Grund dafür dürf-

te in der Präsenz der Stranksi-Krastanov-Quantenpunkte liegen, die sich unterhalb der SML-Schichten befinden. Aufgrund des verhältnismäßig geringen Polarisationsgrades der SML-Lumineszenz kann geschlossen, dass die Submonolagenquantenpunkte stark an die SK-Quantenpunkte koppeln. Die SK-Quantenpunktlumineszenz selber ist über zwei bevorzugte Kanäle anregbar, die sich als die Submonolagen-Quantenpunkte sowie deren erster angeregter Zustand erklären lassen. Die SK-Quantenpunkte können also über Transferprozesse, die die SML-Quantenpunkte miteinschliesst, ideal mit Ladungsträgern angeregt werden. Bei Proben mit großem, energetischen Abstand zwischen der SML- und der SK-Quantenpunktemission können auch verstärkt Phononen in Transferprozessen involviert sein. Die Lumineszenz der SML-Quanten-punkte ist nur sehr schlecht anregbar, wenn mit einer Energie, die dem GaAs-Matrixmaterial entspricht, eingestrahlt wird. PLE-Spektren weisen für diese Anregungsenergie ein stark ausgeprägtes Minimum auf. Die Dynamik der SML-Lumineszenz spricht für die Annahme, dass das GaAs ein effizientes Auffüllen der SML-Zustände limitiert. Bei Anregungsenergien unterhalb des GaAs-Materials, verkürzt sich die Anklingkonstante der SML-Emission. Licht, dass vom SML-Grundzustand kommt, kann bei manchen Proben nur unter bestimmten Anregungsbedingungen wie insbesondere der Temperatur detektiert werden. Erst ab einer gewissen Temperatur sind SML-Emissionen beobachtbar. Proben, deren SK- und SML-Energien nah beieinander liegen, zeigen eine stärkere Kopplung zwischen deren Eigenschaften sowie eine ausgeprägtere Submonolagen-Lumineszenz. Es konnten auch nur an einigen Proben direkte SML-Emissionen des angeregten Zustandes gefunden werden. Bei einer Probe ist möglicherweise sogar ein zweiter angeregter Zustand der Submonolagen-Quantenpunkte beobachtet worden. Die angeregten Zuständen zeigen allerdings einen stärkeren Polarisationsgrad als es die Grundzustandslumineszenz tut. Die Dynamik der Submonolagen-Quantenpunkte zeigte sich als sehr sensitiv auf Anregungsbedingungen. So haben zum Beispiel die Laserwellenlänge, die Pulsbreite und die Intensität des anregenden Laserpulses sowie die Temperatur einen erheblichen Einfluss auf die dynamischen Eigenschaften. Bei tiefen Temperaturen besitzen die SML-Quantenpunkte unter günstigen Anregungsbedingungen eine Abklingkonstante von etwa 200 ps; für höhere Temperaturen nimmt (analog zur SK-Quantenpunktlumineszenz) die Lebenszeit zu. Auch in dieser Hinsicht zeigten sich die Proben mit stärkerer SML-SK-Separation als vorteilhaft, auch wenn die Lumineszenzintensität der SML-Strukturen bei diesen schwächer ist. Bei hohen Anregungsintensitäten erfährt die SML-Lumineszenz ein Sättigungsverhalten, das auf Nachfüllprozesse zurückzuführen ist. Wenn die Laserleistung zu hoch gewählt wird, so ist die SML-Emission zu einem erst erheblich späteren Zeitpunkt vollständig abgeklungen. Dieses Sättigungsverhalten scheint allerdings nur bei fs-Anregung beziehungsweise tiefen Temperaturen beobachtbar zu sein. Besonders die SK-Lumineszenz besitzt für Temperaturen unterhalb von 40 K eine erhöhte Anklingzeit. Es existiert also bei tiefen Temperaturen ein limitierender Prozess, der das Nachfüllen der SML- und der SK-Zustände verlangsamt. Es gibt also mehrere Faktoren, die eine schnelle und effiziente Rekombination über die SML-Quantenpunkte beeinträchtigen. Neben der Temperatur und der Tatsache, dass zunächst die Stranski-Krastanov-Quantenpunkte bevorzugt mit Ladungsträgern versorgt werden, ist auch das GaAs-Matrixmaterial ein limitierender Faktor. Transienten belegen, dass das Lumines-

zenzanklingen stark verlängert wird, wenn mit höheren Energien als des GaAs angeregt wird, die Ladungsträger also über das GaAs in die SML-Quantenpunkte gelangen müssen.

Für bestimmte Anwendungen, wie zum Beispiel bei Einzelphotonenquellen, sind Kenntnisse über Eigenschaften vereinzelter Quantenpunkte nötig. Zu diesem Zweck wurden räumlich sowie zeitlich aufgelöste Photolumineszenzuntersuchungen mittels der Methode der Mikro-PL-Spektroskopie (in Verbindung mit einer Metallmaskierung) von einzelnen InGaN/GaN-Quantenpunkte präsentiert. Die in dieser Arbeit präsentierten ersten experimentellen Ergebnisse bilden lediglich den Grundstein für weiterführende Untersuchungen. Es konnte gezeigt werden, dass auch mittels der Photolumineszenzmethode die Charakterisierung vereinzelter Quantenpunkte möglich ist. Auch wenn die Kathodolumineszenzmethode in bestimmter Hinsicht Vorteile bietet, so kann jedoch die PL ebenfalls ihren Teil zur Erkenntnis der grundlegenden physikalischen Prozesse in einzelnen Quantenpunkten beitragen. Es konnte gezeigt werden, dass mithilfe der Polarisationseigenschaften beziehungsweise des Anregungsintensitätsverhaltens der Ursprung der zu beobachtenden Emissionslinien zuzuordnen ist. Auch die Messung der dynamischen Eigenschaften einzelner Quantenpunkte konnte gezeigt werden.

An geeigneten Stellen auf der Probenoberfläche konnten in PL-Spektren wenige scharfe Emissionslinien beobachtet werden. Damit konnte der Quantenpunktcharakter der zur Verfügung stehenden Probe belegt werden. Da in der Mikrophotolumineszenz keine spektrale Diffusion beobachtet werde konnte, war zunächst eine Zuordnung dieser Linien zu verschiedenen Quantenpunkten nicht möglich (wie es zum Beispiel bei der Kathodolumineszenzmethode der Fall ist). Es wurden allerdings nur wenige multiexzitonische Komplexe beobachtet. Mithilfe von leistungsabhängigen Photolumineszenzuntersuchungen konnte gezeigt werden, dass so gut wie keine Emissionslinien ein superlineares Intensitätsverhalten besitzen und damit als Exzitonen bestimmt werden. Innerhalb eines PL-Spektrum zeigten verschiedene Linien zusätzlich ein unterschiedliches Polarisationsverhalten. Aufgrunddessen konnte geschlossen werden, dass diese Emissionen von unterschiedlichen Quantenpunkten hervorgerufen werden. Da fast sämtliche Einzelquantenpunktemissionen ausgeprägt linear polarisiert sind (analog zu Kathodolumineszenzmessungen an dieser Probe), kann abgeleitet werden, dass die meisten der für diese Arbeit untersuchten Einzelquantenpunkte eine verhältnismäßig stark asymmetrische Form haben, während nur einige wenige Quantenpunkte lateral nicht elongiert sind. Theoretischen Vorhersagen mittels Achtband-$\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$-Berechnungen sagten voraus, dass InGaN-Quantenpunkte eine sehr sensible Abhängigkeit der strahlenden Lebenszeiten von der genauen Quantenpunktgeometrie und -komposition besitzen. Zeitaufgelöste Photolumineszenzuntersuchungen an einzelnen Quantenpunkten zeigten, dass eine große Verteilung der Lebenszeiten für die InGaN-Quantenpunkte tatsächlich messbar ist. Die Abklingdauer schwankte zwischen wenigen hundert Picosekunden und fast zwei Nanosekunden. Es konnte zusätzlich beobachtet werden, dass Linien mit größerer Emissionsenergie kürzere Lebenszeiten besitzen.

7 Danksagung

Diese Arbeit wurde unter Mithilfe oder durch Unterstützung anderer überhaupt erst möglich. Folgenden Personen möchte ich ganz besonders danken:

Prof. Dr. **Axel Hoffmann** für die Möglichkeit, in seiner Gruppe arbeiten zu dürfen; aber natürlich auch für die helfenden Gespräche und unterstützenden Hinweise im Laufe der Jahre.

Meinem Promotionsausschuss, bestehend aus den Gutachtern Prof. Dr. **Axel Hoffmann**, Prof. Dr. **Janina Maultzsch**, Prof. Dr. **Alejandro Goñi** und dem Vorsitzenden Prof. Dr. **Michael Lehmann**, für das Lesen und Bewerten meiner Arbeit.

Julia Kabuß für die fruchtbare Kooperation bezüglich der theoretischen Berechnungen.

Christian Kindel für eine konstruktive Zusammenarbeit an den InGaN-Quantenpunkten.

Jan-Hindrik Schulze und **Thomas Switaiski** für die Zusammenarbeit an den SML-Quantenpunkten.

Juan Sebastián Reparaz für die zahlreichen Gespräche und unterstützende Hilfe.

Katharina Herrmann für das Helfen beim Korrekturlesen.

Natürlich all den Mitgliedern aus den Arbeitsgruppen von Prof. Dr. Axel Hoffmann, Prof. Dr. Christian Thomsen und Prof. Dr. Janina Maultzsch für die fantastische Arbeitsatmosphäre. Ich habe hier viele wertvolle Freunde gefunden.

Und nicht zuletzt all meinen Freunden und meiner Familie.

8 Literaturverzeichnis

Literatur

[Ahn05] K.J. Ahn, J. Förster und A. Knorr: *Resonance Fluorescence of Semiconductor Quantum Dots: Signatures of the Electron-Phonon Interaction*, Phys. Rev. B 71 (15), 153309 (2005)

[Andreev00] A.D. Andreev und E.P. O'Reilly: *Theory of the Electronic Structure of GaN/AlN Hexagonal Quantum Dots*, Phys. Rev. B 62 (23), 15851 (2000)

[Arakawa82] Y. Arakawa und H. Sakaki: *Multidimensional Quantum Well Laser and Temperature-Dependence of its Threshold Current*, Appl. Phys. Lett. 40 (11), 939-941 (1982)

[Arakawa86] Y. Arakawa und A. Yariv: *Quantum-Well Lasers Gain, Spectra, Dynamics*, IEEE J.o. Quantum Electronics 22 (9), 1887-1899 (1986)

[Asada86] M. Asada, Y. Miyamoto und Y. Suematsu: *Gain and the Threshold of 3-Dimensional Quantum-Box Lasers*, IEEE J.o. Quantum Electronics 22 (9), 1915-1921 (1986)

[Bartel04] T. Bartel, M. Dworzak, M. Strassburg, A. Hoffmann, A. Strittmatter und D. Bimberg: *Recombination Dynamics of Localized Excitons in InGaN Quantum Dots*, Appl. Phys. Lett. 85 (11), 1946 (2004)

[Bayer00] M. Bayer, O. Stier, P. Hawrylak, S. Fafard und A. Forchel: *Hidden Symmetries in the Energy Levels of Excitonic Artifical Atoms*, Nature 405, 923 (2000)

[Bennett05] A.J. Bennett, D.C. Unitt, P. See, A.J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper und D.A. Ritchie: *Microcavity Single Photon Emitting Diode*, Appl. Phys. Lett. 86, 181102 (2005)

[Bimberg98] D. Bimberg, M. Grundmann und N.N. Ledentsov: *Growth, Spectroscopy and Laser Application of Self-ordered II-V Quantum Dots*, MRS Bulletin Vol. 23 (2), TU Berlin (Februar 1998)

[Bimberg99] D. Bimberg, M. Grundmann und N.N. Ledentsov: *Quantum Dot Heterostructures* (John Wiley & Sons, London, 1999)

[Bimberg03] D. Bimberg und N.N. Ledentsov: *Quantum Dots*, J. Phys.: Condens. Matter 15, R1063 (2003)

[Bissiri00] M. Bissiri, G. Baldasarri Höger von Högersthal, A.S. Bhatti, M. Capizzi, A. Frova, P. Frigeri und S. Franchi: *Optical Evidence of Polaron Interaction in InAs/GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. B 62 (7), 4642-4646 (2000)

[Bissiri01] M. Bissiri, G. Baldasarri, M. Capizzi, V.M. Fomin, V.N. Gladilin und J.M. Devreese: *Polaron Interaction in InAs/GaAs Quantum Dots and Resonant Photoluminescence*, Phys. Stat. Sol. (b) 224, 3 (2001)

[Brunner94] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle und G. Weimann: *Sharp-line and Two-photon Absorption of Zero Dimensional Biexcitons in a GaAs/AlGaAs Structure*, Phys. Rev. Lett. 73, 1138 (1994)

[Cardona82] M. Cardona: *Resonance Phenomena in Lights Scattering in Solids II*, edit. von M. Cardona, G. Gäntherodt, Topics Appl. Phys. Vol. 50 (Springer, Berlin, Heidelberg, 1982), Kapitel 2, Seite 19176 ff.

[Cooney07] R.R. Cooney, S.L. Sewall, E.A. Dias, D.M. Sagar, K.E.H. Anderson und P. Kambhampati: *Unified Picture of Electron and Hole Relaxation Pathways in Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. B 75 (24), 245311 (2007)

[Demtröder00] W. Demtröder: *Laserspektroskopie*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (2000)

[Ferreira02] R. Ferreira, O. Verzelen und G. Bastard: *Excitonic Polarons in Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. 88 (14), 146803 (2002)

[Gammon96] D. Gammon, E.S. Snow, B.V. Shanabrook, D.S. Kratzer und D. Park: *Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Qhantum Dots*, Phys. Rev. Lett. 76, 3005 (1996)

[Goni98] A.R. Goñi, M. Stroh, C. Thomsen, F. Heinrichsdorff, V. Turck, A. Krost und D. Bimberg: *High-gain Excitonic Lasing from a Single InAs Monolayer in Bulk GaAs*, Appl. Phys. Lett. 72 (12), 1433-1435 (1998)

[Goni00] A.R. Goñi, A. Cantarero, H. Scheel, S. Reich, C. Thomsen, P.V. Santos, F. Heinrichsdorff und D. Bimberg: *Different Temperature Renormalizations for Heavy and Light-hole States of Monolayer-thick Heterostructures*, Sol. St. Commun. 116 (3), 121-124 (2000)

[Grundmann95] M. Grundmann, J. Christen, N.N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V.M. Ustinov, A.Yu. Egotov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev und Zh.I. Alferov: *Ultranarrow Luminescence Lines from Single Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. 74, 4043 (1995)

[Hameau99] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zemen, A. Lemaître und J.M. Gérard: *Strong Electron-Phonon Coupling Regime in Quantum Dots: Evidence for Everlasting Resonant Polarons*, Phys. Rev. Lett. 83, 4152-4155 (1999)

[Hameau02] S. Hameau, J. N. Isaia, Y. Guldner, E. Deleporte, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zemen und J. M. Gérard: *Far-Infrared Magnetospectroscopy of Polaron States in Self-Assembled InAs/GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. B 65 (8), 085316 (2002)

[Hawes99] P.W. Hawes, B. Kazan und T. Mulvey: *Advances of Imaging and Electron Physics*, Academic Press (1999)

[Heinrichsdorff97] F. Heinrichsdorff, A. Krost, M. Grundmann, D. Bimberg, F. Bertram, J. Christen, A. Kosogov und P. Werner: *Self Organization Phenomena of InGaAs/GaAs Quantum Dots Grown by Metalorganic Chemical Vapour Deposition*, J. Cryst. Growth 170, 568-573 (1997)

[Heitz96] R. Heitz, M. Grundmann, N.N. Ledentsov, L. Eckey, M. Veit, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev und Zh.I. Alferov: *Multiphonon-Relaxation Processes in Self-Organized InAs/GaAs Quantum Dots*, Appl. Phys. Lett. 68, 3 (1996)

[Heitz99] R. Heitz, I. Mukhametzhanov, O. Stier, A. Madhukar und D. Bimberg: *Enhanced Polar Exciton-LO-Phonon Interaction in Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. 83 (22), 4654-4657 (1999)

[Heitz00] R. Heitz, H. Born, A. Hoffmann, D. Bimberg, I. Mukhametzhanov und A. Madhukar: *Resonant Raman Scattering in Self-organized InAs/GaAs Quantum Dots*, Appl. Phys. Lett. 77, 3746 (2000)

[Heitz01] R. Heitz, H. Born, F. Guffarth, O. Stier, A. Schliwa, A. Hoffmann und D. Bimberg: *Existence of a Phonon Bottleneck for Excitons in Quantum Dots*, Phys. Rev. B 64, 241305(R) (2001)

[Hess94] H.G. Hess, E. Betzig, T.D. Harris, L.N. Pfeiffer und K.W. West: *Near-Field Spectroscopy of the Quantum Constituents of a Luminescence System*, Science 264, 1740 (1994)

[Huang50] K. Huang und A. Rhys: *Theory of Light Absorption and Non-radiative Transitions in F-Centers*, Proc. R. Soc. London Ser. A 204, 406 (1950)

[Kabuss10] J. Kabuss, S. Werner, A. Hoffmann, P. Hildebrandt, A. Knorr und M. Richter: *Theory of Time-Resolved Raman Scattering and Fluorescence Emission from Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. B 81, 075314 (2010)

[Kako06] S. Kako, C. Santori, K. Hoshino, S. Götzinger, Y. Yamamoto und Y. Arakawa: *A Gallium-Nitride Single-Photon Source Operating at 200 K*, Nature Materials 5 (11), 887-892 (2006)

[Kira99] M. Kira, F. Jahnke, W. Hoyer und S.W. Koch: *Quantum Theory of Spontaneous Emission and Coherent Effects in Semiconductor Microstructures*, Progr. in Quantum Electronics 23 (6), 189-279 (1999)

[Klimov00] V.I. Klimov: *Optical Nonlinearities and Ultrafast Carrier Dynamics in Semiconductor Nanocrystals*, J.o. Phys. Chem. B 104 (26), 6112-6123 (2000)

[Krestnikov99] I.L. Krestnikov, M. Straßburg, M. Caesar, A. Hoffmann, U.W. Pohl, D. Bimberg, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, D. Litvinov, A. Rosenauer und D. Gerthsen: *Control of the Electronic Properties of CdSe Submonolayer Superlattices via Vertical Correlation of Quantum Dots*, Phys. Rev. B 60 (12), 8695-8703 (1999)

[Ledentsov07] N.N. Ledentsov, D. Bimberg, F. Hopfer, A. Mutig, V.A. Shchukin, A.V. Savel'ev, G. Fiol, E. Stock, H. Eisele, M. Dähne, D. Gerthsen, U. Fischer, D. Litvinov, A. Rosenauer, S.S. Mikhrin, A.R. Kovsh, N.D. Zakharov und P. Werner: *Submonolayer Quantum Dots for High Speed Surface Emitting Lasers*, Nanosc. Research Lett. 2 (9), 417-429 (2007)

[Lemaitre01] A. Lemaître, A.D. Ashmore, J.J. Finley, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, M. Hopkinson und T.F. Krauss: *Enhanced Phonon-assisted Absorption in Single InAs/GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. B 63 (16), 161309(R) (2001)

[Lenz10] A. Lenz, H. Eisele, J. Becker, L. Ivanova, E. Lenz, F. Luckert, K. Pötschke, A. Strittmatter, U.W. Pohl, D. Bimberg und M. Dähne: *Atomic Structure of Buried InAs Sub-Monolayer Depositions in GaAs*, Appl. Phys. Express 3 (10), 105602 (2010)

[Lenz11] A. Lenz, H. Eisele, J. Becker, J.H. Schulze, T.D. Germann, F. Luckert, K. Pötschke, E. Lenz, L. Ivanova, A. Strittmatter, D. Bimberg, U.W. Pohl und M. Dähne: *Atomic Structure and Optical Properties of InAs Submonolayer Depositions in GaAs*, J. Vac. Sci. Technol. B 29 (4), 04D104 (2011)

[Litvinov01] D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen, H. Preis, K. Fuchs und S. Bauer: *Growth and Vertical Correlation of CdSe/ZnSe Quantum Dots*, Journ. of Appl. Phys. 89 (7), 3695-3699 (2001)

[Lochmann06] A. Lochmann, E. Stock, O. Schulz, F. Hopfer, D. Bimberg, V.A. Haisler, A.I. Toropov, A.K. Bakarov, A.K. Kalagin, M. Scholz, S. Büttner und O. Benson: *Electrically Pumped InAs Single Quantum Dot Emitter*, Electr. Lett. 42 (13), 774-775 (2006)

[Louisell73] W.H. Louisell: *Quantum Statistical Properties of Radiation*, Wiley (New York, 1973)

[Marcinkevicius01] S. Marcinkevicius, A. Gaarder und R. Leon: *Rapid Carrier Relaxation by Phonon Emission in $In_{0.6}Ga_{0.4}As/GaAs$ Quantum Dots*, Phys. Rev. B 64, 115307 (2001)

[Marzin94] J.Y. Marzin, J.M. Gérard, A. Izrael, D. Barrier und G. Bastard: *Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs*, Phys. Rev. Lett. 73, 716 (1994)

[Michler01] P. Michler und C. Becher: *Photonen auf Bestellung*, Physikalische Blätter 57 Nr. 9 (2001)

[Mukai96] K. Mukai, N. Ohtsuka, H. Shoji und M. Sugawara: *Phonon Bottleneck in Self-formed $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ Quantum Dots by Electroluminescence and time-resolved photoluminescence*, Phys. Rev. B 54 No. 8, R5243 (1996)

[Mukamel95] S. Mukamel: *Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy*, Oxford University Press (New York, 1995)

[Mutig09] A. Mutig, G. Fiol, K. Pötschke, P. Moser, D. Arsenijevic, V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, S.S. Mikhrin, I.L. Krestnikov, D.A. Livshits, A.R. Kovsh, F. Hopfer und D. Bimberg: *Temperature-Dependent Small-Signal Analysis of High-Speed High-Temperature Stable 980-nm VCSELs*, IEEE Journ. of Select. Topics in Quant. Electron. 15 (3), 679-686 (2009)

[Oliver03] R.A. Oliver, G.A. Briggs, M.J. Kappers, C.J. Humphreys, S. Yasin, J.H. Rice, J.D. Smith und 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)

[Oulton03] R. Oulton, J.J. Finley, A.I. Tartakovskii, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, M. Hopkinson, A. Vasanelli, R. Ferreira und G. Bastard: *Continuum Transitions and Phonon Coupling in Single Self-Assembled Stranski-Krastanow Quantum Dots*, Phys. Rev. B 68, 235301 (2003)

[Paarmann05] A. Paarmann, F. Guffarth, T. Warming, A. Hoffmann und D. Bimberg: *Local Phonon Modes in InAs/GaAs Quantum Dots*, AIP Conf. Proc. of the 27th ICPS 2004 (Editoren: J. Menéndez und Ch.G. Van de Walle), 772 (a), 689 (2005)

[Park98] D. Park, C.R.K. Marrian, D. Gammon, R. Bass, P. Isaacson und E. Snow: *Small Aperture Fabrication for single Quantum Dot Spectroscopy*, J. Vac. Sci. Technol. B 16, 3891 (1998)

[Preisler06] V. Preisler, T. Grange, R. Ferreira, L.A. de Vaulchier, Y. Guldner, F.J. Teran, M. Potemski und A. Lemaître: *Evidence for Excitonic Polarons in InAs/GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. B 73, 075320 (2006)

[Reich99] S. Reich, A.R. Goñi, C. Thomsen, F. Heinrichsdorff, A. Krost und D. Bimberg: *Raman Scattering by Optical Phonons in a Highly Strained InAs/GaAs Monolayer*, Phys. Stat. Sol. B 215 (1), 419-424 (1999)

[Rho01] H. Rho, L.L. Robinson, N. Mukolobwiez, L.M. Smith, H.E. Jackson, S. Lee, M. Dobrowolska und J.K. Furdyna: *Probing CdSe/ZnSe Self-Assembled Quantum Dots by cw and Time-Resolved Photoluminescence*, Physica E 11 (2-3), 59-62 (2001)

[Rice05] J.H. Rice, J.W. Robinson, J.H. Na, K.H. Lee, R.A. Taylor, D.P. Williams, E.P. O'Reilly, A.D. Andreev, Y. Arakawa und S. Yasin: *Biexciton and Exciton Dynamics in Single InGaN Quantum Dots*, Nanotechnology 16 (9), 1477-1481 (2005)

[Richter07] M. Richter, S. Butscher, M. Schaarschmidt und A. Knorr: *Model of Thermal Terahertz Light Emission from a Two-Dimensional Electron Gas*, Phys. Rev. B 75 (11), 115331 (2007)

[Richter09] M. Richter, A. Carmele, A. Sitek und A. Knorr: *Few-Photon Model of the Optical Emission of Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. 103 (8), 087407 (2009)

[Robinson03] J.W. Robinson, J.H. Rice, A.Jarjour, J.D. Smith, R.A. Oliver, G.A. Briggs, M.J. Kappers, C.J. Humphreys und Y. Arakawa: *Time-resolved Dynamics in Single InGaN Quantum Dots*, Appl. Phys. Lett. 83 (13), 2674 (2003)

[Rodt05] S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, F. Guffarth und D. Bimberg: *Correlation of Structural and Few-particle Properties of Self-organized InAs/GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. B 71, 155325 (2005)

[Sanguinetti08] S.Sanguinetti, M. Guzzi, E. Grilli, M. Gurioli, L. Seravalli, P. Frigeri, S. Franchi, M. Capizzi, S. Mazzuccato und A. Polimeni: *Effective Phonon Bottleneck in the Carrier Thermalization of InAs/GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. B 78, 085313 (2008)

[Seguin04] R. Seguin, S. Rodt, A. Strittmatter, L. Reißmann, T. Bartel, A. Hoffmann und D. Bimberg: *Multi-Excitonic Complexes in Single InGaN Quantum Dots*, Appl. Phys. Lett. 84 (20), 4023 (2004)

[Seguin05] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U.W. Pohl und D. Bimberg: *Size-dependent Fine-structure Splitting in Self-organized InAs/GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. 95, 257402 (2005)

[Seguin06] R. Seguin, S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, U.W. Pohl und D. Bimberg: *Size-dependence of Anisotropic Exchange Interaction in InAs/GaAs Quantum Dots*, Phys. Status Solidi B 243 (15), 3937 (2006)

[Seufert00] J. Seufert, R. Weigand, G. Bacher, T. Kümmell, A. Forchel, K. Leonardi und D. Hommel: *Spectral Diffusion of the Exciton Transition in a Single Self-Organized Quantum Dot*, Appl. Phys. Lett. 76, 1872 (2000)

[Shchukin99] V.A. Shchukin und D. Bimberg: *Spontaneous Ordering of Nanostructures on Crystal Surfaces*, Reviews of Modern Physics 71 (4), 1125-1171 (1999)

[Splithoven99] J.L. Splithoven, J. Lorbacher, I. Manke, F. Heinrichsdorff, A. Krost, D. Bimberg und M. Dähne-Prietsch: *Finite Linewidth Observed in Photoluminescence Spectra of Individual $In_{0.4}Ga_{0.6}As$ Quantum Dots*, J. Vac. Sci. Technol. B 17(4), 1632 (1999)

[Sue86] J. Sue, Y.J. Yan und S. Mukamel: *Raman Excitation Profiles of Polyatomic-Molecules in Condensed Phases - A Stochastic-Theory*, J. Chem. Phys. 85 (1), 462.474 (1986)

[Türck00] V. Türck, S. Rodt, O. Stier, R. Heitz, R. Engelhardt, U.W. Pohl, D. Bimberg und R. Steingrüber: *Effect of Random Field Fluctuations on Excitonic Transitions of Individual CdSe Quantum Dots*, Phys. Rev. B 61, 9944 (2000)

[Varshni67] Y.P. Varshni: *Temperature Dependence of the Energy Gap in Semiconductors*, Physica 34 (1), 149 (1967)

[Verzelen02] O. Verzelen, G. Bastard und R. Ferreira: *Energy Relaxation in Quantum Dots*, Phys. Rev. B 66, 081308(R) (2002)

[Verzelen04] O. Verzelen, R. Ferreira und G. Bastard, Semicond. Sci. Technol. 19, S5 (2004)

[Werner08] S. Werner, P. Zimmer, A. Strittmatter und A. Hoffmann: *Phonon Interaction in InGaAs/GaAs Quantum Dots*, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 1053, EE03-03 (2008)

[Winkelnkemper06] M. Winkelnkemper, A. Schliwa und D. Bimberg: *Interrelation of Structural and Electronic Properties in $In_xGa_{1-x}N/GaN$ Quantum Dots using an Eight-band k·p Model*, Phys. Rev. B 74 (15), 155322 (2006)

[Winkelnkemper07] M. Winkelnkemper, R. Seguin, S. Rodt, A. Schliwa, L. Reißmann, A. Strittmatter, A. Hoffmann und D. Bimberg: *Polarized Emission Lines from A- and B-type Excitonic Complexes in Single InGaN/GaN Quantum Dots*, Journ. of Appl. Phys. 101, 113708 (2007)

[Winkelnkemper08a] M. Winkelnkemper, R. Seguin, S. Rodt, A. Schliwa, L. Reißmann, A. Strittmatter, A. Hoffmann und D. Bimberg: *Polarized Emission Lines from Single InGaN/GaN Quantum Dots: Role of the Valence-Band Structure of Wurtzite Group-III Nitrides*, Physica E 40, 2217-2219 (2008)

[Winkelnkemper08b] M. Winkelnkemper, M. Dworzak, T.P. Bartel, A. Strittmatter, A. Hoffmann und D. Bimberg: *Origin of the Broad Lifetime Distribution of Localized Excitons in InGaN/GaN Quantum Dots*, Phys. Stat. Sol. (b) 245 (12), 2766-2770 (2008)

[Xu06] Z. Xu, Y. Zhang, J. Hvam, J. Xu, X. Chen und W. Lu: *Carrier Dynamics in Submonolayer InGaAs/GaAs Quantum Dots*, Appl. Phys. Lett. 89, 013113 (2006)

[Xu08] Z. Xu, Y. Zhang, A. Tackeuchi, Y. Horikoshi und J. Hvam: *Short Exciton Radiative Lifetime in Submonolayer InGaAs/GaAs Quantum Dots*, Appl. Phys. Lett. 92, 063103 (2008)

[Zhukov99] A.F. Zhukov, A.R. Kovsh, S.S. Mikhrin, N.A. Maleev, V.M. Ustinov, D.A. Livshits, I.S. Tarasov, D.A. Bedarev, M.V. Maximov, A.F. Tsatsulnikov, I.P. Soshnikov, P.S. Kop'ev, Z.I. Alferov, N.N. Ledentsov und D. Bimberg, Electron. Lett. 35 (17), 1845 (1999)

[Zrenner94] A. Zrenner, L.V. Butov, M. Hagn, G. Abstreiter, G. Böhm und G. Weimann: *Quantum Dots Formed by Interface Fluctuations in AlAs/GaAs Coupled Quantum Well Structures*, Phys. Rev. Lett. 72, 3382 (1994)