

# Charakterisierung von InP und InGaN Quantenpunkten als Einzelphotonenquellen

## sowie von AlGaInAs Quantenpunkten in Zwischenband-Solarzellen

### **DISSERTATION**

zur Erlangung des  
naturwissenschaftlichen Doktorgrades der  
Julius-Maximilians-Universität Würzburg

vorgelegt von

**STEFAN KREMLING**

WÜRZBURG, 2013





eingereicht am: 11. März 2013

bei der Fakultät für  
Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. Lukas Worschech

2. Gutachter: Prof. Dr. Jens Pflaum

Tag des Promotionskolloquiums: 26. Juni 2014

Leiter Promotionskolloquium: Prof. Dr. Martin Kamp

1. Prüfer: Prof. Dr. Lukas Worschech

2. Prüfer: Prof. Dr. Jens Pflaum

3. Prüfer: Prof. Dr. Wolfgang Kinzel



# Inhaltsverzeichnis

---

Zusammenfassung	1
Summary	5
1 Einleitung	9
2 Theoretische Grundlagen	13
2.1 Quantenpunkte und Exzitonen	13
2.2 Statistische Emissionseigenschaften von Licht	18
2.3 Licht-Materie-Wechselwirkung	20
2.4 Physikalische Grundlagen von Solarzellen	23
3 Experimentelle Methoden	31
3.1 Mikro-Photolumineszenz Messplatz	31
3.2 Zeitaufgelöste Spektroskopie	33
3.3 Magnetolumineszenzspektroskopie	33
3.4 Autokorrelation zweiter Ordnung	33
3.5 Methoden zur Charakterisierung von Solarzellen	34
4 InP/GaInP Quantenpunkte	37
4.1 Ultralangsam gewachsene InP Quantenpunkte	37
4.2 Sequentiell gewachsene InP Quantenpunkte	51
5 Spektroskopie von Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren	59
5.1 Optische Charakterisierung	59
5.2 Elektrische Charakterisierung	65
6 InGaN/GaN Quantenpunkte	71
6.1 Spektral breitbandige Photolumineszenz	71
6.2 $\mu$ -Photolumineszenz	73

7	Quantenpunkt-Solarzellen	87
7.1	Zwischenband Solarzellen	87
7.2	Strom-Spannung-Charakterisierung	90
7.3	Lumineszenz-Eigenschaften	94
7.4	Spektrale Empfindlichkeit und Quanteneffizienz	95
7.5	Zwei-Photonen-Absorption	99
7.6	Hybridisierung der Elektronen Wellenfunktion	104
	Anhang: Materialsysteme und Probenherstellung	107
	Literaturverzeichnis	119
	Veröffentlichungen	127
	Danksagung	129

# Zusammenfassung

---

Die vorliegende Arbeit beschreibt die Charakterisierung von Halbleiter-Quantenpunkten (QP) in unterschiedlichen Materialsystemen. Die hier dargelegten Untersuchungen wurden mit verschiedenen Methoden der optischen Spektroskopie durchgeführt. Wichtige Ergebnisse sind der Nachweis von Einzelphotonenemission bei Indium-Phosphid (InP) QP mit sehr geringer Flächendichte. Eine zusätzliche laterale Strukturierung oder Maskentechniken der Proben war nicht notwendig, um einzelne QP-Photonen beobachten zu können. Weiterhin wird die Emission einzelner Photonen von Indium-Gallium-Nitrid (InGaN) QP nachgewiesen, wobei dies erstmals bis zu einer Temperatur von 50 K demonstriert werden konnte. Abschließend wird das Konzept von Zwischenbandsolarzellen erörtert und die experimentelle Realisierung mittels quaternären Aluminium-Gallium-Indium-Arsenid (AlGaInAs) QP präsentiert.

Im Einzelnen ist die vorliegende Arbeit wie folgt untergliedert:

## Theoretische und experimentelle Grundlagen

Zu Beginn der Arbeit werden theoretische Grundlagen von QP hinsichtlich ihrer elektronischen Struktur und statistischen Eigenschaften erläutert. Besonderes Augenmerk wird dabei auf die Statistik der emittierten Photonen von verschiedenen Arten von Licht gelegt. Darüber hinaus wird näher auf die Physik von Solarzellen eingegangen, in dem die relevanten Gleichungen für die Beschreibung des Ladungsträgertransportes hergeleitet und diskutiert werden.

Darauf folgend werden die experimentelle Methoden erklärt, welche zur Charakterisierung der jeweiligen Proben dienen. Zunächst werden verschiedene Komponenten und Techniken der optischen Spektroskopie für die Untersuchung einzelner, isolierter QP beschrieben. Im Anschluss folgen die experimentellen Grundlagen für die Charakterisierung von Solarzellen. Besonderes Augenmerk wird auf die Methode zur Messung des Zwei-Photonen-Absorptionsprozesses gelegt, da dieser der Funktionsweise von Zwischenband-Solarzellen zu Grunde liegt.

## InP Quantenpunkte mit geringer Dichte

Der Abschnitt der experimentell gewonnenen Ergebnisse beginnt mit Untersuchungen an einzelnen, spektral isolierten InP QP, welche mittels Molekularstrahlepitaxie und ultralangsamem Wachstumsraten hergestellt wurden.

Aufgrund der sehr geringen Flächendichte von nur etwa einem QP pro  $\mu\text{m}^2$  konnten grundlegende physikalische Eigenschaften von QP ohne zusätzliche laterale Strukturierungen studiert werden. Mittels Messungen in Abhängigkeit der Anregungsleistung und durch die Detektion in Abhängigkeit der Polarisation konnten die verschiedenen Lumineszenzlinien eines QP-Spektrums den jeweiligen exzitonischen Zuständen zugeordnet werden. Es wurde eine negative Biexziton-Bindungsenergie beobachtet und der Exziton- bzw. Biexzitonzustand war jeweils durch eine Feinstruktur aufgespalten. Die gemessenen Linienbreiten der Exzitonen liegen im Bereich der Auflösungsgrenze von  $\sim 75 \mu\text{eV}$ . Zusätzlich wurden diese QP in einem externen Magnetfeld in Faraday-Konfiguration untersucht. Im Gegensatz zur geometrischen Größe von 40 nm konnte eine exzitonische Größe von nur 8 nm bestimmt werden. Dieser Befund wird zusätzlich durch Bandstrukturberechnungen unterstrichen. Abschließend durchgeführte Autokorrelationsmessungen erlaubten die Untersuchung der zeitlichen Statistik der QP-Photonen. Es konnte die Emission einzelner Photonen mit einem Wert für  $g^{(2)}(0)$  von 0.214 nachgewiesen werden, dabei lag die Gesamteffizienz der Einzelphotonenemission der planaren Probe bei etwa 1.9 %.

Anschließend folgen spektroskopische Untersuchungen von InP QP, welche mittels sequentiellen Wachstums hergestellt wurden. Mit diesem Verfahren konnte die Flächendichte auf minimal  $2 \cdot 10^9 \text{ QP}/\text{cm}^2$  reduziert werden. Anhand von Messungen in Abhängigkeit der Anregungsleistung und bestätigt durch zeitaufgelöste Messungen am QP-Ensemble wurde eine bimodale QP-Verteilung mit Typ-I und Typ-II Bandverlauf bestimmt. Zusätzlich konnten an einzelnen, spektral isolierten QP verschiedene Exziton-Zustände identifiziert werden, bevor abschließend Autokorrelationsmessungen die Emission einzelner Photonen demonstrierten. Hier konnte ein nahezu idealer Wert für  $g^{(2)}(0)$  von nur 0.06 festgestellt werden.

## InP Quantenpunkte in Mikrosäulenresonatoren

Zur Steigerung der Auskoppelleffizienz der Photonen wurden sequentiell gewachsene InP QP in Mikrosäulenresonatoren, bestehend aus zwei Bragg-Spiegeln mit einer dazwischenliegenden GaInP Kavität, eingebettet. Anfangs wurde die Emission der Kavitätsmode von Strukturen mit unterschiedlichen lateralen Durchmessern charakterisiert. Mittels Temperaturverstimmung konnte die Energie eines einzelnen QP-Exzitons in Resonanz mit der Resonatormode gebracht werden. Im Regime der schwachen Wechselwirkung wurde eine signifikante Überhöhung der Lumineszenzintensität aufgrund des Purcell-Effektes gemessen und ein Purcell-Faktor von 1.25 bestimmt. Zusätzlich wurde im Regime der schwachen Kopplung



die Emission einzelner Photonen anhand von Korrelationsmessungen nachgewiesen und ein Wert für  $g^{(2)}(0)$  von 0.35 bestimmt.

Im zweiten Schritt wurden die QP-Mikrosäulenresonatorstrukturen elektrisch angeregt. Für eine effiziente Strominjektion wurden die Bragg-Spiegel zusätzlich dotiert und mit elektrischen Kontakten versehen. Nach einer grundlegenden Charakterisierung konnte auch hier mittels Temperaturverstimmung die Energie der Resonatormode mit der eines Exziton in Resonanz gebracht werden. Im Regime der schwachen Wechselwirkung stieg die Intensität der Lumineszenz aufgrund des Purcell-Effekts mit einem Purcell-Faktor von 1.85 signifikant an. Zum Abschluss bestätigen Korrelationsmessungen den Nachweis der Emission einzelner Photonen. Abzüglich einer Fehlerkorrektur konnte ein Wert von  $g^{(2)}(0)$  von 0.15 unter elektrischer Anregung bestimmt werden.

## InGaN Quantenpunkte

In Kapitel 6 werden die Eigenschaften von InGaN QP genauer analysiert. Nitrid-Verbindungshalbleiter kristallisieren vorzugsweise stabil in der Wurtzit-Kristallstruktur. Polare Kristallebenen mit fehlender Spiegelsymmetrie führen zu starken piezoelektrischen Feldern. Dies hat eine Lumineszenz mit ausgeprägter linearer Polarisation zur Folge. Diese Eigenschaft wurde mittels statistischen Untersuchungen näher betrachtet. Es wurde ein mittlerer linearer Polarisationsgrad von 84.8 % bestimmt und die Polarisation weist keine Vorzugsrichtung entlang der Kristallachsen auf. Zusätzlich erlaubten Messungen in Abhängigkeit der Anregungsleistung die verschiedenen Exziton-Zustände eines QP zu identifizieren. Erstmals wurde zudem die Emission einzelner Photonen durch InGaN QP mit einer Effizienz von 2.9 % demonstriert. Und darüber hinaus wurde die Einzelphotonenemission sogar bis zu einer Temperatur von 50 K gezeigt.

## AlGaInAs Quantenpunkte in Solarzellen

Im abschliessenden Kapitel wird eine mögliche Anwendung von QP präsentiert, bei der Eigenschaften in Bauteilen gezielt ausgenutzt werden, um die Bandbreite der Photonenabsorption zu erhöhen. Das Konzept der Zwischenband-Solarzellen verspricht, aufgrund der energetischen Lage der QP-Grundzustandsenergien, auch Photonen mit einer Energie kleiner der Bandlücke des umgebenden Materials aufnehmen zu können und somit den spektralen Absorptionsbereich hin zu größeren Wellenlängen zu erweitern. Für eine systematische Untersuchung wurden verschiedene Proben mit integrierten AlGaInAs QP hergestellt, um den Einfluss der  $\delta$ -Dotierung, der Kompensation des intrinsischen Potentials durch Variation der QP Größe, der Anzahl der QP sowie der Größe der Zwischenschichten zu untersuchen. Anhand der Strom-Spannungs-Kennlinien der jeweiligen Proben im Dunkeln und

unter Beleuchtung konnten wichtige Solarzellenparameter bestimmt werden. Spektrale Messungen liefern Informationen über die externe Quanteneffizienz der Proben. Entscheidend für den experimentellen Nachweis des Funktionsprinzips der Zwischenband-Solarzellen ist die Messung der Zwei-Photonen-Absorption für zwei Photonen mit jeweils kleineren Energien als der Bandlücke des umgebenden Materials. Dies konnte bis zu einer Temperatur von 70 K demonstriert werden. Bandstrukturberechnungen beschreiben die Ergebnisse zum Teil qualitativ und geben einen Ausblick, wie zukünftige Proben aufgebaut werden können.

# Summary

---

This thesis describes the characterization of semiconductor quantum dots (QDs) in different material systems with potential applications as single photon emitters or intermediate band solar cells. All investigations were carried out by means of optical spectroscopy methods. Important results are the detection of single photon emission from an Indium-Phosphide (InP) QD. The QD surface density was so small that no lateral patterning of the samples as well as no mask techniques was necessary in order to verify single photons. Further, it was possible to observe single photons from Indium-Gallium-Nitride (InGaN) QDs. This was – for the first time – demonstrated up to a temperature of 50 K. Finally, the concept of intermediate band solar cells is presented and its experimental realization using quaternary Arsenide-QDs is demonstrated.

The thesis is structured in different chapters as described below.

## Theoretical, experimental and technological basis

First, the theoretical background regarding the physics of QDs with respect to their electronic structure and their associated statistical properties are presented. Especially peculiarities of photon statistics of light are explained. Moreover, a closer look at the physics of solar cells and the respective carrier transport is given.

Then experimental methods, which were used to characterize the QD-samples, are briefly explained. First, the components and techniques of optical spectroscopy for the study of individual, isolated QDs are described. Second, different experimental technologies for the characterization of solar cells are discussed. The method for measuring the two-photon-absorption process is explained in detail.

## Ultra-low density InP quantum dots

The section of experimental results begins with studies of individual and spectrally isolated InP QD. Due to the low surface density of one QD per  $\mu\text{m}^2$ , it is possible to study the physical properties of individual QDs optically without additional lateral sample structuring. Based on power and polarization dependent measurements, various luminescence peaks of a single QD were associated with different exciton states. A negative biexciton binding energy and a fine structure splitting of exciton and biexciton state was observed. The linewidth of the excitonic emission is in the range of the setup resolution of  $\sim 75 \mu\text{eV}$ . In addition, the QDs were tested subject to an external magnetic field in a Faraday configuration. In

contrast to the geometric size of 40 nm, an excitonic size of only 8 nm was determined, which was also confirmed by band structure simulations. Finally, the temporal photon statistics of a single QD was tested using autocorrelation measurement and a value of  $g^{(2)}(0)$  of 0.214 was detected. The total efficiency of the single photon emission of the planar sample was estimated to 1.9 %.

Afterwards, InP QDs manufactured by cyclic material deposition with growth interruptions were investigated by means of PL spectroscopy. Here, the areal density was reduced to minimal  $2 \cdot 10^9$  QD/cm<sup>2</sup>. Based on excitation power and time-resolved measurements on the QD ensemble, a bimodal QD distribution of type-I and type-II band alignment was observed. In addition, different exciton states were identified on spectrally isolated single QDs. Finally, the emission of single photons has been demonstrated using autocorrelation measurements. Therefore an almost ideal value of  $g^{(2)}(0)$  of 0.06 was observed.

### InP quantum dots in micropillar resonators

For a more efficient diffraction-limited output coupling of photons, the InP QDs grown by cyclic material deposition were embedded in micropillar resonator structures and investigated by means of spectroscopy. First, structures with different diameters were characterized by photoluminescence spectroscopy. Second, the energy of a single QD exciton and the energy of the cavity were tuned into resonance by changing the temperature. In the regime of weak coupling a luminescence enhancement due to the Purcell Effect was observed with a Purcell factor of 1.25. Finally, also in the regime of weak coupling, the emission of single photons has been demonstrated by autocorrelation measurements, exhibiting a value of  $g^{(2)}(0)$  of 0.35.

In terms of applications, electrical operations are desirable. Therefore, the Bragg mirrors of the micropillar resonator were doped for an efficient current injection and electrical contacts were deposited. After basic electrical characterization, the regime of weak coupling of a single QD exciton and the cavity resulting in a luminescence enhancement were demonstrated by the Purcell effect with a Purcell Factor of 1.85. Finally, the emission of single photons based on autocorrelation measurements is shown. With the aid of error correction a value of  $g^{(2)}(0)$  of 0.15 can be determined.

### InGaN quantum dots

In this chapter, the luminescence properties of single InGaN QD were investigated. Based on the wurtzite crystal structure of nitride-compound semiconductors strong piezoelectric fields occur that lead to strongly linearly polarized luminescence. Several QDs were investigated and statistical studies were performed. Excitation power depending measurements allows one to identify the different exciton states of a single QD. In addition, the emission of single photons of

InGaN QDs up to a temperature of 50 K with an efficiency of 2.9% was demonstrated for the first time.

### AlGaInAs quantum dots in solar cells

In the final chapter, an application of QDs in solar cells is presented to specifically exploit the unique properties of QDs in optical devices. The concept of the intermediate band solar cell utilizes the energy position of the QD ground state to absorb photons with energy smaller than the host materials bandgap. This enables an enhancement of the spectral absorption range to longer wavelengths. For systematic studies various samples with AlGaInAs QDs were fabricated in order to check the influence of  $\delta$ -doping, the compensation of built-in potential, the number of QDs, and size of the spacer layer thickness between adjacent QD layers. The current voltage characteristics of the samples were tested in the dark and under illumination and the respective solar cell parameters were evaluated. Additionally, based on spectral measurements, the external quantum efficiencies of the samples were determined. Furthermore, the measurement of two sub-bandgap-photon absorption demonstrates the operation principle of an intermediate band solar cell. Finally, band structure calculations are shown, which describe the results qualitatively and which also hint to future sample designs.



# 1 Einleitung

Unser tägliches Leben ist geprägt durch informationsverarbeitende Technologien. Nach Schätzungen des Statistischen Bundesamtes verfügen heutzutage 77 % aller deutschen Haushalte über einen Internetzugang [1]. Laut des Verbandes der deutschen Internetwirtschaft e.V. beträgt die Datenmenge am weltweit größten Knotenpunkt in Frankfurt a. M. täglich über 12 Petabyte mit einer jährlichen Wachstumsrate von 80 % [2]. Einen entscheidenden Beitrag zur Bewältigung dieser Datenmengen lieferte die Entwicklung optischer Telekommunikationstechnologien. Der Durchbruch gelang mit der Entwicklung von Halbleiterlasern mit Wellenlängen von 1.3  $\mu\text{m}$  und 1.55  $\mu\text{m}$  für die langreichweitige Datenübertragung mittels Glasfasern. Heute liegt der Rekord der optischen Datenübertragung bei über 26 TBit/s mit einem einzigen Laserstrahl [3]. Der Bundesverband der Informationswirtschaft, Telekommunikation und neue Medien e.V. schätzt, dass der gewachsene Datenverkehr zwischen 2008 und 2011 zu einem Anstieg der Anzahl von Servern um 7 % geführt hat. Zwar sank im gleichen Zeitraum der Stromverbrauch um 4 % auf 9.7 TWh, was in etwa 1.8 % des gesamten Stromverbrauches entspricht, aber aufgrund der gestiegenen Energiekosten haben sich die Stromkosten um 12 % erhöht [4]. Viele Betreiber setzen deshalb verstärkt auf die Nutzung erneuerbarer Energien. Zum Beispiel erzeugte Google im Jahr 2011 insgesamt 33 % seines gesamten Energieverbrauchs durch erneuerbare Energien, in dem u. a. Solaranlagen mit einer Gesamtleistung von 1.7 MW auf den Dächern der Rechenzentren installiert wurden [5]. Jedoch ist der Wirkungsgrad für die Umwandlung von Sonnenenergie in elektrisch nutzbare Energie für einfache Solarzellen auf etwa 31 % begrenzt [6]. Heutzutage existieren verschiedene neue Konzepte dieses physikalische Limit zu überwinden, was häufig als „Solarzellen der dritten Generation“ bezeichnet wird [7, 8].

In Zukunft wird neben einer umweltverträglichen Steigerung der Bandbreite auch die Sicherheit der Datenübertragung von entscheidender Bedeutung sein. Dies gilt besonders in Bereichen mit empfindlichen und wertvollen Daten, wie z. B. bei der Kommunikation zwischen Regierungen oder Banken. Schon heute findet ein Großteil des weltweiten Geldmarktes rein virtuell in Form von Zahlen statt. Dabei müssen große Anstrengungen unternommen werden, um die Daten sicher zu übertragen und vor Abhörangriffen zu schützen. Auf dem Gebiet der klassischen Kryptographie wird ein zufällig erzeugter Schlüssel benutzt, um Daten zu kodieren. Für eine sichere Verschlüsselung mit dem One-Time-Pad muss der Schlüssel mindestens so lang wie die Information selbst und rein zufällig verteilt sein, was bei großen Datenmengen zum Hindernis wird [9]. Außerdem muss der Schlüssel über

einen absolut sicheren Weg übertragen werden, was eine große Herausforderung bedeutet.

Im Gegensatz zur klassischen Schlüsselverteilung bietet die Quantenmechanik neue und elegante Ansätze für den Schlüsselaustausch, welche auf grundlegenden physikalischen Eigenschaften basieren. Die Idee besteht darin, Quantenzustände (Quantenbits bzw. Qubits) als Informationsträger zu verwenden, welche weder gemessen noch geklont werden können, ohne dass dies bemerkt wird [10]. Ein möglicher Ansatz für die Erzeugung von Qubits ist die Verwendung von Polarisationszuständen einzelner Photonen. Darauf basiert auch das erste Protokoll für die Implementierung der Quanten-Kryptographie, das so genannte BB84 Protokoll [11]. Für die Erzeugung einzelner Photonen gibt es verschiedene Möglichkeiten, wie z. B. stark abgeschwächte Laser. Aufgrund der Poisson-Statistik der emittierten Photonen kommt es hier aber auch zu Zwei- oder Mehrphotonen-Ereignissen. Daher sind abgeschwächte Laser nur bedingt als Einzelphotonenquelle zu bezeichnen. Ein anderer, vielversprechender Ansatz sind Quantenemitter mit einer nichtklassischen Emissionscharakteristik. Diese senden pro Anregungspuls jeweils nur ein einzelnes Photon aus [12, 13].

Seit Beginn der Forschung an Bauteilen für die Informations- und Solartechnologie richtet sich das Forschungsinteresse aufgrund ihrer einzigartigen Eigenschaften auf Halbleiter. Für Strukturen mit geometrischen Abmessungen im Bereich der de-Broglie Wellenlänge spielen zusätzlich Quanteneffekte eine entscheidende Rolle. Die erste Beobachtung von quantisierten Ladungsträgerzuständen in Halbleitern wurde schon 1974 von Dingle et al. in einem GaAs Quantenfilm beobachtet [14]. Beim Einschluss in allen drei Raumdimensionen spricht man von nulldimensionalen (0D) Strukturen, welche auch als Quantenpunkte (QP) bezeichnet werden. Charakteristisch für solche Strukturen ist eine 0D Zustandsdichte verbunden mit diskreten Energieniveaus, weshalb diese häufig auch als „*künstliche Atome*“ bezeichnet werden. QP haben die Eigenschaften eines Quantenemitters und können einzelne Photonen auf Knopfdruck emittieren. Mehr noch, aufgrund der Integration im Festkörper verbunden mit der Möglichkeit der elektrischen Anregung sind QP hervorragend für optoelektronische Anwendung wie z. B. Einzelphotonenquellen geeignet [15].

Bei der Herstellung von QP unterscheidet man zwischen *top-down* Methoden mittels Lithographie und *bottom-up* Methoden durch Epitaxie. Die ersten 0D Strukturen mit lateralen Dimensionen von 250 nm wurden bereits 1986 mittels Elektronenstrahl-Lithographie in einer Quantenfilm-Struktur hergestellt [16]. Der Großteil der heutzutage untersuchten QP jedoch basiert auf Epitaxie mittels selbstorganisiertem Wachstum [17,18]. Durch schichtweises Abscheiden von Halbleitermaterialien unterschiedlicher Gitterkonstanten bilden sich Verspannungen



an der Grenzfläche aus, welche zu einem dreidimensionalen Wachstum, d. h. zur Formierung von QP führen. Für die Eigenschaften der QP spielt, neben Form und Größe, vor allem das verwendete Material eine maßgebliche Rolle.

Die intensive Erforschung wachstumsspezifischer Parameter während der vergangenen Jahre erlaubt es heute, die optischen und elektronischen Eigenschaften von QP in gewissem Maße gezielt einzustellen. In Hinblick auf Anwendungen sind speziell III-V-Verbindungshalbleiter interessant, da diese für die industrielle Fertigung besonders relevant sind. Dabei erstreckt sich die Bandbreite zwischen Arsenid-Verbindungshalbleitern, wie z. B. InGaAs/GaAs QP mit einer Emission im NIR<sup>1</sup> Spektralbereich [19], über Phosphid-Verbindungshalbleitern, wie z. B. InP/GaInP mit einer Emission im sichtbaren roten Spektralbereich [20], bis hin zu Nitrid-Verbindungshalbleitern, wie z. B. InGaN/GaN, welche im NUV<sup>2</sup> Spektralbereich emittieren [21]. Mittlerweile ist es sogar möglich einzelne QP an gezielten Stellen zu positionieren, was sowohl für In(Ga)As/GaAs [22, 23], als auch für InP/GaInP [24, 25] gezeigt wurde.

QP sind faszinierende Strukturen um die Physik niederdimensionaler Systeme zu studieren und die Eigenschaften und Leistung von Bauteilen gezielt zu manipulieren bzw. zu steigern. Einen einfachen Zugang zu den Eigenschaften von QP liefern verschiedene Methoden der Spektroskopie. Bei der Lumineszenzspektroskopie werden Ladungsträger durch elektrische oder optische Anregung generiert, welche nach einer charakteristischen Zeit strahlend rekombinieren und Photonen mit definierter Energie aussenden. Bei der Transportspektroskopie werden die Ladungsträger über elektrische Kontakte abgegriffen.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit grundlegenden, spektroskopischen Untersuchung von Halbleiter-QP unterschiedlicher Materialsysteme, sowie möglichen Anwendungen dieser als Einzelphotonenquelle bzw. in Zwischenband-Solarzellen. Die Kapitel 2 und 3 beschreiben zunächst die elementaren physikalischen und messtechnischen Grundlagen. Im darauffolgenden Kapitel 4 werden spektroskopische Untersuchungen an einzelnen, spektral isolierten InP/GaInP QP präsentiert. Dabei wird speziell auf die Emission einzelner Photonen eingegangen. In Kapitel 5 wird gezeigt, wie in Mikrosäulenresonatoren unter Ausnutzung von quantenelektrodynamischer Wechselwirkung die Intensität der Photonenemission von InP QP gesteigert werden kann. Anschließend werden in Kapitel 6 spektroskopische Untersuchungen an InGaN/GaN QP gezeigt. Neben der Emission einzelner Photonen werden die Polarisations-eigenschaften einzelner QP besonders analysiert. Abschließend werden in Kapitel 7 die Eigenschaften von (AlGa)InAs QP untersucht. Im Gegensatz zu den vorausgegangenen

---

<sup>1</sup> Nahen Infra-Rot

<sup>2</sup> Nahen Ultra-Violett

Untersuchungen wird der Schwerpunkt auf das Absorptionsverhalten gegenüber Photonen in Hinblick auf die Integration in Solarzellen gelegt. Im Anhang wird noch kurz auf material- und wachstumsspezifische Aspekte der verwendeten Proben eingegangen.

## 2 Theoretische Grundlagen

*In diesem Kapitel werden allgemeine theoretische Grundlagen kurz erläutert, welche für das Verständnis der in dieser Arbeit durchgeführten Experimente zur Untersuchung von Halbleiter-QP relevant sind.*

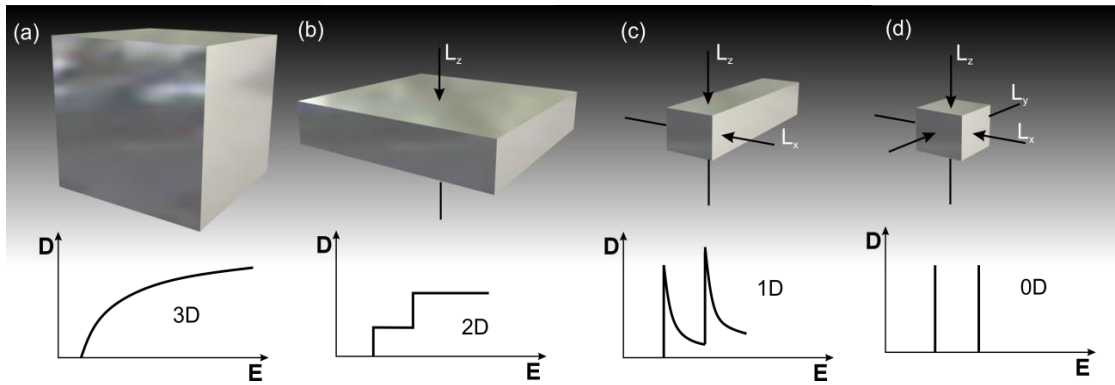
*Zunächst wird in Abschnitt 2.1 die Physik niederdimensionaler Strukturen anhand von strukturellen, elektronischen und optischen Eigenschaften näher betrachtet. Optische Übergänge für unterschiedliche Symmetrien sowie der Einfluss von elektrischen und magnetischen Feldern werden diskutiert. In Abschnitt 2.2 werden statistische Eigenschaften von QP als Lichtemitter näher erläutert. Im folgenden Abschnitt 2.3 wird kurz auf die wesentlichen Grundlagen zum photonischen Einschluss in Mikrosäulenresonatoren sowie der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie eingegangen.*

*Anschließend folgen in Abschnitt 2.4 wichtige Grundlagen und die Funktionsweise von Solarzellen. Es wird zunächst der Ladungsträgertransport in Halbleitern beschrieben, bevor auf die unterschiedlichen Verlustmechanismen eingegangen wird, welche die Effizienz von Solarzellen beschränken. Relevante physikalische Parameter für die Charakterisierung von Solarzellen werden hergeleitet und diskutiert.*

### 2.1 Quantenpunkte und Exzitonen

Freie Ladungsträger eingebettet in makroskopischen Festkörpern lassen sich, abgesehen von Rand- und Oberflächeneffekten, analog zu freien Ladungsträgern durch die Dispersionsrelation  $E(\vec{k}) = \hbar^2 \vec{k}^2 / 2m^*$  mit der effektiven Masse  $m^*$  beschreiben. In niederdimensionalen Halbleiterstrukturen ist im Vergleich zu Volumenhalbleitern die Bewegungsmöglichkeit der Ladungsträger in mindestens einer Raumrichtung auf die Größe der de-Broglie Wellenlänge  $\lambda_{dB} = h / \sqrt{3m^* k_B T}$  eingeschränkt [26]. So unterscheidet man zwischen Quantenfilmen mit einer räumlichen Einschränkung in einer Dimension, Quantendrähten mit einer Einschränkung in zwei Dimensionen und schließlich QP, wo in allen drei Dimensionen eine räumliche Einschränkung vorliegt, wie Abbildung 2-1 veranschaulicht.

Epitaktisch gewachsene QP bestehen aus mehreren 100 bis 10000 Atomen eines Halbleitermaterials, welche in einer Matrix eines weiteren Materials eingebettet sind. Aufgrund der räumlichen Einschränkung der Ladungsträgerbewegung in allen drei



**Abbildung 2-1:** Elektronische Zustandsdichte ( $D$ ) für Halbleiter-Strukturen in Abhängigkeit der Dimension. (a) Im Volumenmaterial ist  $D$  proportional einer Wurzelfunktion. (b) Im 2D-System ist  $D$  stufenartig. (c) Im 1D-Quantendraht ist  $D$  proportional einer inversen Wurzelfunktion und im 0D-Quantenpunkt (d) ist die Zustandsdichte  $\delta$ -förmig.

Raumrichtungen auf einige 10 nm und den daraus resultierenden Quantisierungseffekten spricht man häufig auch von „künstlichen Atomen“. Durch geeignete Wahl der entsprechenden Materialien sowie durch wachstumsspezifischen Einfluss auf die Geometrie lassen sich elektrische und optische Eigenschaften von niederdimensionalen Nanostrukturen über weite Bereiche einstellen.

Betrachtet man mehrere Ladungsträger, so können aufgrund von Teilchenwechselwirkungen untereinander verschiedene Mehrteilchen-Zustände auftreten. Für die Spin-Spin- und Coulomb-Wechselwirkung maßgeblich ist der Überlapp der Wellenfunktionen. Die Symmetrien von Struktur und Wellenfunktion stellen wichtige Parameter bei der Größe der Wechselwirkungen dar. Beispielsweise entsteht durch die Coulomb-Wechselwirkung von einem lokalisiertem Elektron und Loch in einem QP ein gebundenes Quasiteilchen, auch *Exziton* ( $X$ ) genannt. In Analogie zum Wasserstoffatom lässt sich, basierend auf dem Bohr'schen Atommodell, der Exziton-Bohr-Radius im 3D-Fall beschreiben:

$$a_B^X = a_B^H \frac{\epsilon_r}{\mu} = 0.529 \text{Å} \frac{\epsilon_r}{\mu} \quad (1)$$

Dabei ist  $\epsilon_r$  die Dielektrizitätskonstante des jeweiligen Halbleitermaterials und  $\mu$  die effektive reduzierte Masse des Elektron-Loch-Paars. Für die Energie eines Exzitons erhält man, analog zum Wasserstoffatom:

$$E_X = E_{Gap} - \frac{\mu}{2} \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r\hbar} \right)^2 + E_{kin} \quad (2)$$

Exzitonen können im Emissionsspektrum nachgewiesen werden, falls deren Bindungsenergie größer als die thermische Energie ist.

Daneben existieren noch weitere Mehrteilchenzustände, wie z. B. das *Biexziton* (XX) bestehend aus zwei Elektronen und zwei Löchern, welches sich analog zum Wasserstoffmolekül mit zugehöriger Bindungsenergie beschreiben lässt. Im Gegensatz zum Wasserstoffmolekül ist die Bindungsenergie hier abhängig von der Geometrie und kann auch negativ werden [27]. Zusätzlich können diverse Mehrteilchenzustände aus unterschiedlicher Anzahl von Elektronen und Löchern existieren. So bilden z. B. zwei Elektronen und ein Loch ein negativ geladenes Trion (X). Diese Reihenfolge lässt sich beliebig fortsetzen [28].

Die Rekombination eines Elektron-Loch-Paares unter Berücksichtigung von optischen Auswahlregeln und der Emission eines Photons wird Lumineszenz genannt. Bei höheren exzitonischen Komplexen findet diese Rekombination in Kaskaden statt, d. h. ein Biexziton rekombiniert unter Aussendung eines Photons zu einem Exziton, welches anschließend unter Aussendung eines zweiten Photons rekombiniert. Die Rekombinationsenergie und somit die Photonenenergie ist aufgrund der Coulomb- und Spin-Spin-Wechselwirkung für alle Zustände verschieden. Ein QP kann deshalb eine Vielzahl von Emissionslinien besitzen. Diese sind aufgrund der Energie-Zeit-Unschärfe und Dephasierungsprozessen nicht  $\delta$ -förmig sondern lorentzverbreitert mit einer typischen Halbwertsbreite von einigen  $\mu\text{eV}$ , abhängig von Material und Art der QP [29].

Die Bandstruktur in einem Halbleiter entsteht durch die Wechselwirkung der Atome mit einem Überlapp der Atomorbitale. Dabei bilden die s-Orbitale maßgeblich das Leitungsband, welches eine s-artige Symmetrie besitzt und wegen seiner Spinkonfiguration zweifach entartet ist. Aufgrund der p-artigen Symmetrie hingegen existieren drei Valenzbänder: Schwerloch- ( $\text{HH}^3$ ), Leichtloch- ( $\text{LH}^4$ ) und Split Off-Band (SO).

Jedes dieser Bänder besitzt wiederum eine zweifache Spinentartung. Aufgrund von Spin-Bahn-Wechselwirkung und Verspannungseffekten sind das Split Off-Band und das LH-Band energetisch abgesenkt. Für weitere Betrachtungen wird nur noch das HH-Band berücksichtigt, da dies für die Grundzustandsübergänge relevant ist.

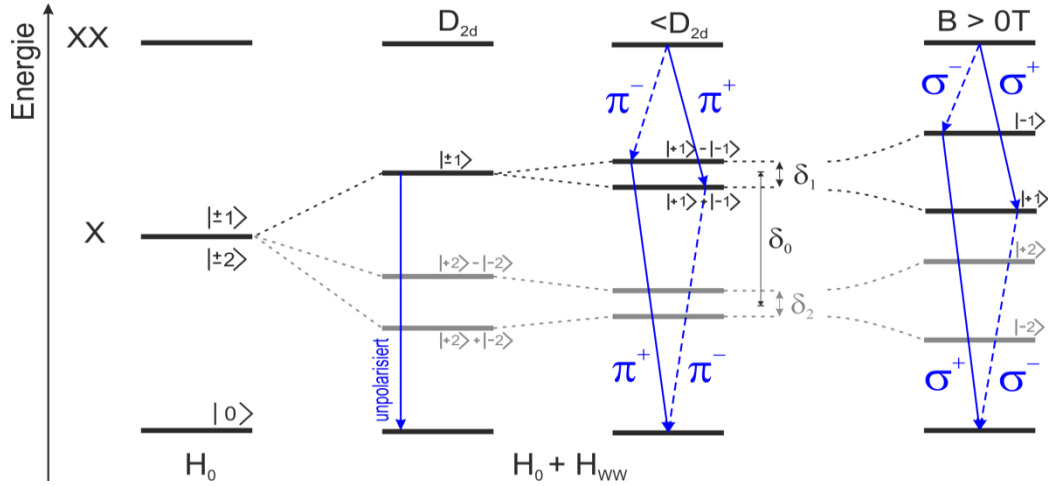
Für einen QP im Grundzustand existiert aufgrund der Spinentartung von Elektron ( $s_{e,z} = \pm 1/2$ ) und Loch ( $j_{h,z} = \pm 3/2$ ) eine insgesamt vierfache Entartung mit dem Gesamtdrehimpuls  $S_{x,z} = \pm 1, \pm 2$ . Optische Auswahlregeln erlauben nur die Zustände mit  $S_{x,z} = \pm 1$ , welche auch „helle Exzitonen“ genannt werden, wohingegen die Zustände mit  $S_{x,z} = \pm 2$  dipolverboten sind und als „dunkle Exzitonen“ bezeichnet werden.

Die Spin-Austauschwechselwirkung hebt die Entartung der Spinzustände von Elektron und Loch auf. Der zugehörige Hamilton-Operator ist gegeben durch [8]:

---

<sup>3</sup> Heavy Hole

<sup>4</sup> Light Hole



**Abbildung 2-2:** Energieschema eines (Bi)Exzitons im ungestörten Fall (links). Unter Berücksichtigung der Austauschwechselwirkung spalten für zylindrische Symmetrie ( $D_{2d}$ ) nur die dunklen Zustände auf ( $\pm 2$ ). Bei weiterer Reduzierung der Symmetrie ( $< D_{2d}$ ) wird zusätzlich die Entartung der hellen Zustände aufgehoben ( $\pm 1$ ). Die emittierten Photonen für den Übergang  $XX \rightarrow X$  bzw.  $X \rightarrow 0$  sind linear polarisiert ( $\pi^{\pm}$ ). Wird zusätzlich ein Magnetfeld angelegt, so nimmt aufgrund des Zeeman-Effektes die Energieaufspaltung weiter zu und die Polarisation der Übergänge geht in zirkular ( $\sigma^{\pm}$ ) über.

$$H_{WW} = - \sum_{i=x,y,z} (a_i J_{h,i} \cdot S_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 \cdot S_{e,i}) \quad (3)$$

Dabei sind  $a_i$  und  $b_i$  richtungs- und materialabhängige Koeffizienten.  $S_{e,i}$  bzw.  $J_{h,i}$  sind die Operatoren der Gesamtdrehimpulse von Elektron und Loch. Für die Basis der Drehimpuls-Eigenzustände erhält man für den Hamilton-Operator in Matrixform:

$$H_{WW} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0 & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & +\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix} \quad (4)$$

Aus der Block-Diagonal-Form der Matrix kann man erkennen, dass helle und dunkle Zustände mit verschiedenen Drehimpulsen nicht mischen. Demnach sind helle und dunkle Zustände durch  $\delta_0 = -3/4(a_z + 9/4b_z)$  separiert, wohingegen die hellen Zustände ihrerseits durch  $\delta_1 = 3/8(b_x - b_y)$  und die dunklen Zustände durch  $\delta_2 = 3/8(b_x + b_y)$  aufgespalten sind. Eine Skizze zur Rolle von Symmetrie und Aufspaltung ist in Abbildung 2-2 aufgezeigt.

Für den Fall einer Rotationssymmetrie ( $D_{2d}$ ), d. h.  $b_x = b_y \neq b_z$ , sind nur die dunklen Zustände aufgespalten, während helle Zustände weiter entartet sind. Durch Reduzierung der Symmetrie ( $< D_{2d}$ ), z. B. durch Anisotropie der QP in der Ebene senkrecht zur Wachstumsrichtung, wird die Entartung der hellen Zustände aufgehoben und es kommt zu einer Energieaufspaltung, was im Lumineszenz-

spektrum als Feinstrukturaufspaltung (FSS<sup>5</sup>) sichtbar wird. Die Eigenvektoren setzen sich zu gleichen Teilen aus einer Linearkombination der zirkularen Exziton-Zustände zusammen ( $\frac{1}{\sqrt{2}}[|+1\rangle \pm |-1\rangle]$ ) und sind folglich linear polarisiert. Das Biexziton hingegen hat aufgrund des vollständig besetzten Grundzustandes nur eine mögliche Spin-Konfiguration und deshalb keine Aufspaltung. Da das Biexziton aber in einer Kaskade über das Exziton zerfällt, wird auch hier die FSS sichtbar. Allerdings vertauschen sich die linearen Polarisationsrichtungen der kurz- und langwelligen Emission von Biexziton und Exziton. Für eine mögliche Anwendung bei der Erzeugung von verschränkten Photonen-Paaren über den sequentiellen Zerfall an der Biexziton-Exziton-Kaskade erweist sich die Feinstrukturaufspaltung allerdings als störend, da der Zerfallsweg über die Polarisation nachvollzogen werden kann und somit unterscheidbare Pfade darstellen [30].

Legt man an einen QP ein externes Feld an, so müssen zusätzliche Wechselwirkungsterme berücksichtigt werden. Im Fall eines schwachen Magnetfeldes in Faraday-Konfiguration, d. h. das Magnetfeld ist parallel zur Wachstumsrichtung, ist der Zeeman-Hamilton-Operator gegeben durch [31]:

$$H_{Zeeman}(B) = \frac{\mu_B B_z}{2} \begin{pmatrix} (g_{e,z} + g_{h,z}) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -(g_{e,z} + g_{h,z}) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -(g_{e,z} - g_{h,z}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & (g_{e,z} - g_{h,z}) \end{pmatrix} \quad (5)$$

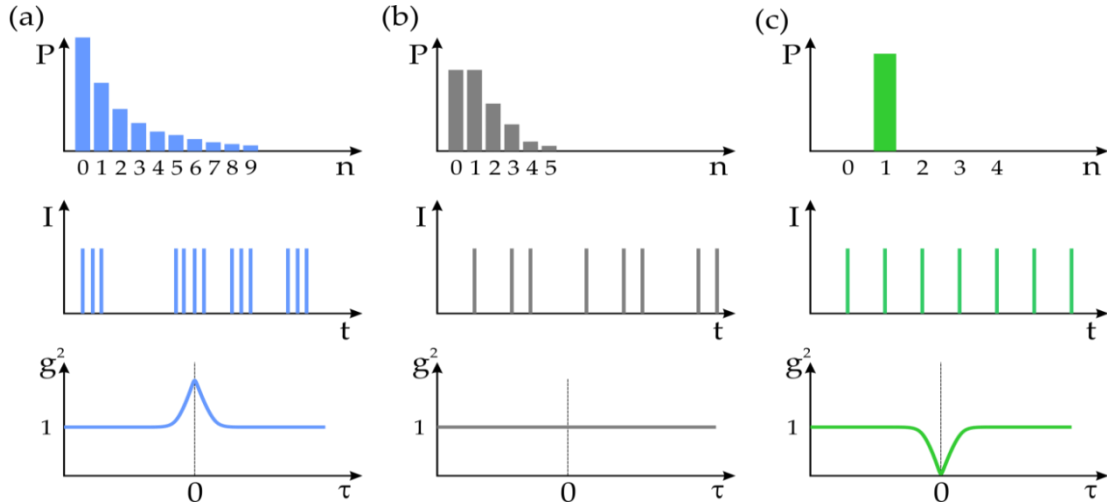
$\mu_B$  ist das Bohr'sche Magneton und  $g_{e(h),z}$  die z-Komponente des g-Faktors für Elektron bzw. schwere Löcher. Die Aufspaltung der hellen Zustände im Magnetfeld erhöht sich zu:

$$\Delta E_{Zeeman} = \sqrt{\delta_1^2 + (\mu_B B_z (g_{e,z} + g_{h,z}))^2} \quad (6)$$

Für kleine Magnetfelder ist der Energieverlauf der magnetischen Subkomponenten nahezu quadratisch, wohingegen für große Magnetfelder die Energieaufspaltung in etwa linear mit dem Magnetfeld verläuft, die der Landau-Aufspaltung entsprechen. Der Einfluss eines externen Magnetfeldes ist ebenfalls in Abbildung 2-2 skizziert. Zusätzlich muss noch die diamagnetische Verschiebung berücksichtigt werden. Diese verursacht keine Aufspaltung, sondern eine annäherungsweise quadratische Verschiebung der Lumineszenzenergie mit steigendem Magnetfeld. Außerdem verlagern die Eigenvektoren ihre Gewichtung und die Emission geht von linearer in zirkuläre Polarisation über.

---

<sup>5</sup> Fine Structure Splitting



**Abbildung 2-3:** Photonenverteilung (oben), zeitliche Photonabfolge (mitte) und Korrelationsfunktion zweiter Ordnung (unten) für (a) thermisches Licht, (b) kohärentes Licht und (c) nichtklassisches Licht.

## 2.2 Statistische Emissionseigenschaften von Licht

Eine wichtige Eigenschaft von Lichtquellen ist durch die zeitliche Abfolge der emittierten Photonen gegeben. Die Messung der Photonenzahl bzw. der Korrelation der Photonen untereinander lässt Rückschlüsse auf charakteristische Emissionsprozesse zu. Für die Bestimmung der Photonenzahl und deren Beschreibung dient die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung  $g^{(2)}(\tau)$ . Anschaulich beschreibt diese die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Photon zur Zeit  $t+\tau$  emittiert wird, nachdem bereits ein Photon zur Zeit  $t$  emittiert wurde.

Grundsätzlich wird zwischen drei verschiedenen Arten von Licht unterschieden: thermisches, kohärentes und nichtklassisches Licht. In quantenmechanischer Betrachtung wird das Lichtfeld durch Fock-Zustände beschrieben, welche die Eigenzustände des Photonenzähloperators  $\hat{n}|n\rangle = n|n\rangle$  sind. Nach R.J. Glauber ist die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung im quantenmechanischen Bild definiert als [32]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(0)\hat{a}^\dagger(\tau)\hat{a}(\tau)\hat{a}(0) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(0)\hat{a}(0) \rangle^2} \quad (7)$$

Dabei sind  $\hat{a}^\dagger(0)$  und  $\hat{a}(0)$  der Erzeugungs- bzw. Vernichtungsoperator eines Photons zur Zeit  $t = 0$ . Es gilt die Vertauschungsrelation  $[\hat{a}^\dagger, \hat{a}] = 1$  und der Besetzungszahloperator ist gegeben durch  $\hat{n} = \hat{a}^\dagger \hat{a}$ . Besonders interessant ist der Fall  $\tau = 0$ , d. h. die Wahrscheinlichkeit zu einem Zeitpunkt  $t$  zwei Photonen gleichzeitig zu messen. Unter diesen Annahmen errechnet sich die Korrelationsfunktion zu:



$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle n(n-1) \rangle}{\langle n \rangle^2} = \frac{\langle n^2 \rangle - \langle n \rangle}{\langle n \rangle^2} = 1 + \frac{(\Delta n)^2 - \langle n \rangle}{\langle n \rangle^2} \quad (8)$$

Hierbei ist  $\langle n \rangle$  der Photonenerwartungswert mit der zugehörigen Varianz  $(\Delta n)^2$ . Für die verschiedenen Arten von Licht erhält man folgende Werte für  $g^{(2)}(\tau)$ , wie in Abbildung 2-3 schematisch dargestellt ist:

**Thermische Lichtquellen:** Im thermischen Gleichgewicht kann die Wahrscheinlichkeit  $P$ , dass  $n$  Photonen angeregt sind, durch eine Boltzmann-Verteilung ausgedrückt werden [33]:

$$P(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{(1 + \langle n \rangle)^{1+n}} \quad (9)$$

Dabei ist  $\langle n \rangle$  der Erwartungswert der Photonenzahl und die Varianz gegeben durch

$$(\Delta n)^2 = \sum_{n=0,1,\dots} P(n)n^2 - \left( \sum_{n=0,1,\dots} P(n)n \right)^2 = \langle n \rangle + \langle n \rangle^2 \quad (10)$$

Mit Gleichung ( 8 ) wird die Korrelationsfunktion  $g^{(2)}(0) = 2$ . Thermische Lichtquellen haben auf einer kurzen Zeitskala eine große Fluktuation in der Zahl der emittierten Photonen. Die Wahrscheinlichkeit zwei Photonen zur Zeit  $t=0$  zu detektieren ist erhöht. Daraus folgt, dass  $g^{(2)}(0) = 2$  ist. Dieser Effekt wird als „*Bunching*“ bezeichnet. Für große Zeitskalen, d. h. größer als die Kohärenzzeit des thermischen Lichtes sind die Photonen unkorreliert und  $g^{(2)}(0) \rightarrow 2$ .

**Kohärente Lichtquellen:** Ein Beispiel hierfür ist Laserlicht, was durch einen kohärenten Zustand beschrieben wird [33]:

$$|a\rangle = \exp\left(-\frac{1}{2}|a|^2\right) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{a^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle \quad (11)$$

Dabei ist  $a$  eine komplexe Zahl und  $|n\rangle$  entspricht einem Fock-Zustand. Daraus folgt für den Erwartungswert und die Varianz der Photonenzahl

$$(\Delta n)^2 = \langle n \rangle = |a|^2 \quad (12)$$

Nach Einsetzen in Gleichung ( 8 ) errechnet man für die Korrelationsfunktion einen Wert von  $g^{(2)}(0) = 1$ . Es treten kaum Fluktuationen für die Anzahl der emittierten Photonen auf, was bedeutet, dass aufeinanderfolgende Photonen unabhängig voneinander sind.

**Nichtklassische Lichtquellen:** Die Beschreibung geschieht durch Fock-Zustände  $|n\rangle$ . Hier ist die Varianz der Photonenzahl  $(\Delta n)^2 = 0$ . Daraus folgt nach Einsetzen in Gleichung ( 8 ):

$$\Rightarrow g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n} \quad (n \geq 1) \quad (13)$$

Die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung besitzt demnach Werte zwischen  $0 \leq g^{(2)}(0) < 1$ , was auch als „*Antibunching*“ bezeichnet wird. Eine Einzelphotonenquelle, d. h.  $n = 1$ , bedeutet  $g^{(2)}(0) = 0$  und es verschwinden alle Multi-Photonenprozesse. Für den experimentellen Nachweis einer Einzelphotonenquelle ist die Bedingung  $g^{(2)}(0) < 0.5$  ausreichend, da in diesem Fall weniger als  $n = 2$  Photonen zu einem Zeitpunkt emittiert werden.

### 2.3 Licht-Materie-Wechselwirkung

In einem Mikroresonator wird das Lichtfeld auf ein möglichst kleines Volumen lokalisiert. Für einen dreidimensionalen Einschluss in der Größenordnung der Lichtwellenlänge wird die photonische Zustandsdichte im Vergleich zum Vakuumfall stark modifiziert. Durch Integration von QP kommt es zu einer Wechselwirkung zwischen den elektronischen Zuständen der QP und den Resonatormoden. Heutzutage existieren verschiedene Konzepte für die Realisierung von Resonatoren wie z. B. photonische Kristalle [34] oder Ringresonatoren [13]. Alternativ dazu wurden in dieser Arbeit Mikrosäulenresonatoren [35] für den Lichteinschluss verwendet.

Mikrosäulenresonatoren bestehen aus zwei Bragg-Spiegeln (DBRs<sup>6</sup>) für einen vertikalen photonischen Einschluss, zwischen denen eine Kavität mit der aktiven QP-Schicht eingebettet ist. DBR-Spiegel sind Interferenzspiegel, welche typischerweise aus einer alternierenden Folge von (Halbleiter-)Schichten mit unterschiedlichen Brechungsindizes bestehen. Bei jedem Übergang kommt es zur teilweisen Reflexion, wobei am Übergang von optisch dünnen zu optisch dichtem Material zusätzlich ein Phasensprung von  $\pi$  auftritt. Eine maximale Reflektivität der Lichtwellen wird erreicht, in dem die Bragg-Bedingung  $\lambda_{Bragg} = 4d_1n_1 = 4d_2n_2$  berücksichtigt wird. Hier sind  $d_{1,2}$  die Dicken der jeweiligen Schichten und  $n_{1,2}$  die zugehörigen Brechungsindizes. Für einen DBR-Spiegels mit  $m$  Perioden kann diese abgeschätzt werden zu [36]:

$$R = \left( \frac{1 - \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^{2m}}{1 + \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^{2m}} \right)^2 \quad (14)$$

Die Reflektivität konvergiert mit steigendem  $m$  gegen 1 und je größer der Unterschied der Brechungsindizes, desto schneller der Anstieg. Eine mathematische Beschreibung einer kompletten Struktur eines Mikrosäulenresonators bestehend aus

<sup>6</sup> Distributed Bragg Reflector

zwei DBRs mit einer eingeschlossenen Kavität bietet die Transfermatrixmethode [36]. Diese beschreibt den Zusammenhang von ein- und auslaufender Amplitude des elektrischen Feldes an optischen Elementen durch eine Matrixbeziehung. Damit kann das Reflexionsspektrum für eine gegebene Resonanzwellenlänge, Dicke der Kavität und Anzahl der Spiegelpaare berechnet werden.

In die planare Struktur wird mittels Elektronenstrahlolithographie und chemischem Ätzen eine freistehende, zylindrische Mikrosäule definiert. Im Gegensatz zum vertikalen optischen Einschluss erfolgt der laterale Lichteinschluss durch Totalreflexion aufgrund eines Brechungsindexsprungs am Übergang vom Halbleitermaterial zur Umgebung. Folglich sind in einem Mikrosäulenresonator die Moden in allen drei Dimensionen eingeschlossen. Für eine zylindersymmetrische Geometrie sind die Eigenenergien gegeben durch [37]:

$$E = \sqrt{E_0^2 + \frac{\hbar^2 c^2 \chi_{n,l}^2}{\epsilon_r r^2}} \quad (15)$$

Dabei ist  $E_0$  die Modenenergie der planaren Struktur,  $c$  die Vakuum-Lichtgeschwindigkeit,  $\epsilon_r$  die relative Dielektrizitätskonstante,  $r$  der Radius der Mikrosäule und  $\chi_{n,l}$  die  $l$ -te Nullstelle der Besselfunktion der Ordnung  $n$ .

Die Qualität des photonischen Einschlusses ist durch den Gütefaktor (Q-Faktor<sup>7</sup>) charakterisiert, welcher definiert ist als Quotient aus Lage und Breite der Resonatormode:

$$Q \equiv \frac{E}{\gamma} \quad (16)$$

Bei einem realen Mikrosäulenresonator setzt sich der Gütefaktor aus mehreren Anteilen zusammen [38, 39]:

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{intr.}} + \frac{1}{Q_{extr.}} + \frac{1}{Q_{streu}} \quad (17)$$

- Der erste Faktor  $1/Q_{intr.}$  beschreibt intrinsische Verluste aufgrund der endlichen Reflektivität der Spiegelpaare.
- Durch den zweiten Faktor  $1/Q_{extr.}$  werden Absorptionsverluste durch die QP und die beiden DBRs berücksichtigt.
- Im letzten Faktor  $1/Q_{streu}$  werden Verluste durch Streuung an den Seitenwänden der Mikrotürmchen bedacht.

Theoretische Grundlage zur Beschreibung der Wechselwirkung von Quantenemitter (hier: QP) und Resonator (hier: Kavität und DBRs) bildet die Quantenelektrodynamik in Kavitäten (CQED<sup>8</sup>). Der physikalischen Beschreibung

---

<sup>7</sup> Quality Factor

<sup>8</sup> Cavity Quantum Electro Dynamic

der CQED wird die Quantentheorie in zweiter Quantisierung zu Grunde gelegt. Dabei wird das Jaynes-Cummings-Modell zur quantenmechanischen Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung herangezogen [40]. Ausgangspunkt ist ein ideales Zwei-Niveau-System (z. B. QP-Exziton) als Emitter und eine einzelne, ungedämpfte Resonatorfeldmode, welche über eine Dipol-Wechselwirkung miteinander gekoppelt sind. Der Hamilton-Operator des Systems ist gegeben durch:

$$H = H_X + H_C + H_{WW} = \hbar\omega_X\sigma^+\sigma^- + \hbar\omega_C a^\dagger a + g(\sigma^- a^\dagger + \sigma^+ a) \quad (18)$$

Dabei sind  $\sigma^\pm$  die Pseudospinoperatoren des Emitters und  $a, a^\dagger$  die Erzeugungs- bzw. Vernichtungsoperatoren des Lichtfeldes. Die Kopplungskonstante  $g$  bestimmt die Stärke der Wechselwirkung. Unter Beachtung der endlichen Lebensdauer des angeregten Exziton-Zustandes und der endlichen Aufenthaltsdauer des Photons in der Kavität erhält man folgende Eigenwerte [41]:

$$E_{1,2} = E_0 - i\frac{\gamma_C + \gamma_X}{4} \pm \sqrt{g^2 - \left(\frac{\gamma_C - \gamma_X}{4}\right)^2} \quad (19)$$

Dabei sind  $\gamma_{C,X}$  die Halbwertsbreite von Kavität bzw. Exziton.

Prinzipiell unterscheidet man je nach Kopplungsstärke zwischen zwei Bereichen der Wechselwirkung:

**Starke Kopplung:** Emittiert das Exziton im Resonanzfall verlustfrei in eine Kavitätsmode, so wird das Photon in der Mode gespeichert und kann vom Emitter reabsorbiert werden. Es kommt zu einem periodischen Energieaustausch zwischen Emitter und Kavitätsmode (*Rabi-Oszillationen*), was aufgrund der Photon-Exziton-Austauschwechselwirkung zu einer Energieaufspaltung in Polaritonmoden führt. Dies wird beobachtet, falls der Ausdruck unter der Wurzel in Gleichung ( 19 ) positiv wird, d. h.  $g > (\gamma_C - \gamma_X)/4$ .

**Schwache Kopplung:** Für den Fall einer negativen Diskriminante hingegen, d. h. der Ausdruck unter der Wurzel in Gleichung ( 19 ) wird negativ, unterliegt das System einer starken Dämpfung und es kommt zu keiner Energieaufspaltung im Resonanzfall. Trotzdem wird die Emission des Emitters aufgrund der veränderten Modendichte in der Kavität beeinflusst. Im Resonanzfall wird die Rate der spontanen Emission im Exziton durch das diskrete Modenspektrum verstärkt und es kommt zu einer Überhöhung der Intensität, was als Purcell-Effekt bekannt ist [42]. Das Verhältnis von spontaner Emissionsrate  $1/\tau_{wc}$  zur freien Emissionsrate  $1/\tau_{frei}$  ist gegeben durch [43]:

$$\frac{\tau_{frei}}{\tau_{wc}} = \frac{3Q(\lambda_C/n_1)^3}{4\pi^2 V_m} \frac{\gamma_C^2}{4\Delta^2 + \gamma_C^2} \frac{|E_r|^2}{|E_{max}|^2} \quad (20)$$

Dabei ist  $E_r$  die Feldstärke am Emitter und  $E_{max}$  die maximale Feldstärke in der Kavität. Unter der Voraussetzung, dass die Halbwertsbreite von Emitter und Kavität gleich sind und dass der Emitter im Maximum des elektrischen Feldes der Kavität sitzt, erhält man den maximalen Purcell-Faktor eines Systems:

$$F_P = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q}{V_m} \left(\frac{\lambda_C}{n_1}\right)^3 \quad (21)$$

Im Resonanzfall wird durch den Purcell-Effekt eine Erhöhung der Intensität erreicht, was in Hinblick für die Realisierung von Einzelphotonenquellen mit QP sehr nützlich sein kann, um die Photonenerate zu steigern.

## 2.4 Physikalische Grundlagen von Solarzellen

Das Funktionsprinzip von Solarzellen besteht im Wesentlichen darin, elektromagnetische Strahlung in Form von Sonnenenergie in nutzbare elektrische Energie umzuwandeln. In einem Halbleiter regt ein einfallendes Photon mit einer Energie größer als die Bandlücke ( $E_{ph} > E_G$ ) ein Elektron vom Valenzband ins Leitungsband an und erzeugt so ein Elektron-Loch-Paar. An einem  $pn$ -Übergang werden die Ladungsträger räumlich getrennt und nach Außen in externe Kontakte abgeführt. Ein wichtiges Maß für die Energieumwandlung ist dabei die Größe der Bandlücke  $E_G$  des Halbleiters.

Der Wirkungsgrad einer Solarzelle ist definiert als das Verhältnis von elektrischer Energie der Elektronen und der Energie der (Sonnen-)Strahlung bzw. der maximal erzeugten elektrischen Leistung und der einfallenden Strahlungsleistung:

$$\eta = \frac{P_{elektrisch}}{P_{Sonne}} \quad (22)$$

Durch Vernachlässigung aller elektrischen und optischen Verluste auf ein theoretisches Minimum ist der Wirkungsgrad durch den zweiten Hauptsatz der Thermodynamik begrenzt. Die thermodynamische Betrachtungsweise basiert auf dem Prinzip des detaillierten Gleichgewichts und wurde im Jahre 1961 durch Shockley und Queisser eingeführt [6]. Es besagt, dass die Anzahl der absorbierten und emittierten Photonen in jedem Energieintervall gleich groß sind und somit die Solarzelle mit ihrer Umgebung im Gleichgewicht steht. Um den maximalen Wirkungsgrad einer Solarzelle zu bestimmen, werden folgende Annahmen definiert:

- Jedes Photon erzeugt genau ein Elektron-Loch-Paar und umgekehrt.
- Rekombination von Elektron-Loch-Paaren findet nur strahlend statt.
- Es kommt nicht zu Thermalisierungsverlusten.

- Die Aufspaltung der (Quasi-)Fermienergieebenen ist gleich der Energiedifferenz  $eU_A$  durch eine äußere angelegte Spannung.
- Absorption- und Emissionsvermögen sind eins für  $E_{ph} > E_G$ , sonst null.

Mit diesen Annahmen konnten Shockley und Queisser den theoretisch maximalen Wirkungsgrad von Solarzellen bestimmen. Für eine Sonnentemperatur von 6000 K und der Temperatur auf der Erde von 300 K liegt dieser für unkonzentrierte Bestrahlung mit einem Spektrum AM 1.5 bei  $\sim 31\%$  und für konzentrierte Bestrahlung bei  $\sim 41\%$ . Im Gegensatz dazu aber erreichen bisher realisierte Solarzellen nur geringere Wirkungsgrade. Einen aktuellen Überblick über die experimentell bestätigten Rekord-Effizienzen liefert Green et al. [44]. So liegt dieser z. B. für eine kristalline Silizium-Solarzelle aktuell bei  $25.0\%$  oder für eine GaAs-Dünnschicht-Solarzelle bei  $28.8\%$  unter unkonzentrierter Bestrahlung.

Im Folgenden sollen einige Grundlagen zum Ladungsträgertransport und diverse Rekombinationsmechanismen in Solarzellen näher betrachtet werden. Die Ladungsträgerverteilung in einem Halbleiter lässt sich durch eine Fermi-Verteilung mit entsprechender Fermi-Energie beschreiben. Werden aber durch z. B. Absorption von Photonen zusätzliche Ladungsträger generiert gilt das Massenwirkungsgesetz ( $n \cdot p = n_i^2$ ) nicht mehr. Die Elektronen- und Löcherdichte können durch getrennte Verteilungen beschrieben werden, in dem sogenannte „Quasi-Fermienergien“ für Elektronen  $E_{F,n}$  bzw. Löcher  $E_{F,p}$  eingeführt werden [45]:

$$n = N_c \exp\left(\frac{E_{F,n} - E_C}{kT}\right); \quad p = N_v \exp\left(\frac{E_V - E_{F,p}}{kT}\right) \quad (23)$$

Für die Beschreibung des Ladungsträgertransports sind folgende Gleichungen relevant:

**Poisson-Gleichung:** Sie stellt einen Zusammenhang zwischen elektrischem Feld  $E$  und der Raumladungsdichte  $\rho$  her.

$$\Delta\varphi = -\nabla \cdot \vec{E} = -\frac{\rho}{\varepsilon\varepsilon_0} \quad (24)$$

Dabei ist  $\varphi$  das elektrostatische Potential und  $\varepsilon$  bzw.  $\varepsilon_0$  die elektrische Feldkonstante im Vakuum bzw. im Medium.

**Kontinuitätsgleichungen:** Diese beschreiben die zeitlichen Änderungen der Ladungsträgerdichten mit entsprechenden Generations- ( $G$ ) und Rekombinationsraten ( $R$ ) sowie der Divergenz der Stromdichten  $j$ .

$$\begin{aligned} \frac{\partial n}{\partial t} &= G_n - R_n + \frac{1}{q} \nabla \cdot j_n \\ \frac{\partial p}{\partial t} &= G_p - R_p - \frac{1}{q} \nabla \cdot j_p \end{aligned} \quad (25)$$

**Drift-Diffusions-Modell:** Es werden nur isotherme Prozesse berücksichtigt. Die Elektronen- bzw. Löcherstromdichte wird beschrieben durch:

$$\begin{aligned} j_n &= n\mu_n \nabla E_{F,n} \\ j_p &= p\mu_p \nabla E_{F,p} \end{aligned} \quad (26)$$

Dabei sind  $\mu_{n,p}$  die Mobilität von Elektronen bzw. Löchern. Diese Gleichungen beschreiben den Zusammenhang zwischen Stromdichte und Quasi-Fermienergien.

Befindet sich ein Halbleiter im thermischen Gleichgewicht, so ist die Fermi-Energie konstant ( $E_{F,n} = E_{F,p}$ ). Durch thermische Prozesse werden ständig freie Elektronen und Löcher generiert, welche mit einer gleich großen Rate wieder rekombinieren. Werden durch z. B. Absorption von Photonen zusätzliche freie Ladungsträger generiert, so befinden sich die Elektronen und Löcher nicht mehr im Gleichgewicht. Falls keine Ladungsträger entnommen werden, d. h. dass kein Strom fließt, stellt sich wiederum ein Gleichgewichtszustand ein. Die Nettorekombinationsrate beschreibt die zusätzlichen Rekombinationen und definiert die Ladungsträgerlebensdauer in Solarzellen:

$$\tau = \frac{n - n_0}{R} \quad (27)$$

Dabei ist  $n_0$  die Ladungsträgerkonzentration im thermischen Gleichgewicht.

In einer Solarzelle existieren verschiedene Rekombinationsmechanismen. Die Gesamtrate ergibt sich aus der Summe der einzelnen Raten. Somit setzt sich die Gesamtlebensdauer reziprok aus der Summe der Lebensdauern der Einzelprozesse zusammen:

$$\frac{1}{\tau_{ges}} = \sum_i \frac{1}{\tau_i} \quad (28)$$

Nachfolgend werden mögliche Verlust- bzw. Rekombinationsmechanismen kurz vorgestellt:

**Strahlende Rekombination:** Rekombination von Elektronen und Löchern unter Aussendung von Photonen der Energie  $E_G$ . Die Rekombinationsrate ist proportional zur Ladungsträgerdichte und gegeben durch:

$$R_{rad} = B(np - n_i^2) \quad (29)$$

**Auger-Rekombination:** Ein nichtstrahlender Rekombinationsmechanismus. Dabei wird die Energie, welche bei der Rekombination von Elektron und Loch frei wird an ein weiteres Elektron bzw. Loch abgegeben, welches die Energie dann wiederum durch Wechselwirkung mit Phononen an das Gitter abgibt. Die Rekombinationsrate ist gegeben durch:

$$R_{Au} = (C_n n + C_p p)(np - n_i^2) \quad (30)$$

**Störstellenrekombination:** auch Shockley-Read-Hall (SRH) Rekombination genannt. Gitterfehler oder Verunreinigungen erzeugen Energiezustände die innerhalb der Bandlücke liegen. Die Rekombinationsrate folgt aus rein statistischen Überlegungen heraus:

$$R_{SRH} = \frac{np - n_i^2}{\tau_{p0}(n + n_1) + \tau_{n0}(p + p_1)} \quad (31)$$

Dabei sind  $\tau_{n0,p0}$  die Zeitkonstanten für den Einfang von Elektronen bzw. Löchern in den Störstellen.  $n_1$  und  $p_1$  sind die SRH-Dichten welche das Energieniveau der Störstellen beinhalten:

$$n_1 = n_i \exp\left(\frac{E_{st} - E_i}{kT}\right); p_1 = n_i \exp\left(\frac{E_i - E_{st}}{kT}\right) \quad (32)$$

**Oberflächenrekombination:** Die Kristallstruktur der Solarzelle wird an deren Oberfläche abrupt unterbrochen. Dies führt zu unzähligen offenen Bindungen, welche Energiezustände innerhalb der Bandlücke erzeugen. Die Rekombinationsrate ist analog zu der Störstellenrekombination und gegeben durch:

$$R_{Surf} = \frac{n_s p_s - n_i^2}{\frac{(n_s + n_1)}{s_p} + \frac{(p_s + p_1)}{s_n}} \quad (33)$$

$n_s, p_s$  sind die Elektronen- bzw. Löcherdichte an der Oberfläche.

Zur Entnahme der generierten Energie müssen Elektronen und Löcher räumlich getrennt werden. Beim Zusammenbringen eines n- und p-dotierten Halbleiters gleichen sich die Fermi-Energien  $E_F$  an, was zu einem Gradienten im elektrischen Potential und zu einer Bandverbiegung führt. Daraus resultiert eine Spannungsdifferenz zwischen der n- und p-Region, die sogenannte *built-in* Spannung, welche hauptsächlich von der Dotierkonzentration und der Temperatur abhängt. Diese ist gegeben durch:

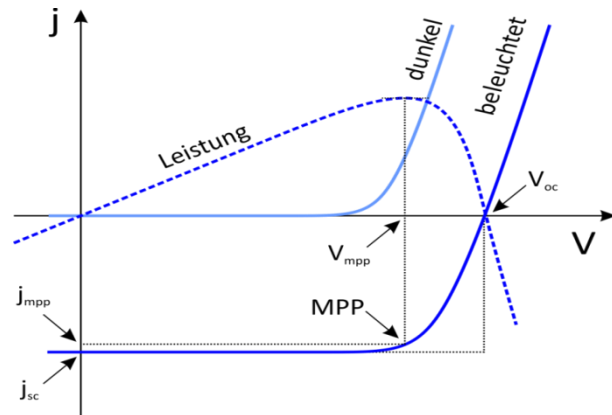
$$V_{bi} \equiv \varphi^n - \varphi^p = \frac{kT}{q} \ln\left(\frac{N_D N_A}{n_i^2}\right) \quad (34)$$

Für eine beleuchtete Solarzelle werden die Ladungsträgerdichten durch die Quasi-Fermieenergien beschrieben. Für den Betrieb einer Solarzelle sind zwei Grenzfälle näher zu betrachten:

**Kurzschlussfall:** Alle freien Ladungsträger werden entnommen. Es bildet sich ein starker Gradient der Fermi-Energie was zu einer hohen Ladungsträgerstromdichte führt, der Kurzschlussstromdichte  $j_{sc}$ . In diesem Fall haben



**Abbildung 2-4:** schematischer Verlauf der I-V-Kennlinien einer Solarzelle ohne (hellblau) und mit Beleuchtung (dunkelblau). Zusätzlich ist die Leistungskennlinie einer Solarzelle (gestrichelt) gezeigt. Es sind die wichtigsten Kenngrößen ( $V_{oc}$ ,  $j_{sc}$  und MPP) für die Charakterisierung indiziert.



Elektronen und Löcher das gleiche Potential und es wird keine Energie entnommen.

**Offene Klemmen:** Es werden *keine* freie Ladungsträger entnommen. Für den Fall offener Klemmen entsteht eine Spannungsdifferenz zwischen den Fermi-Energien am p- und n-Kontakt, die offene Klemmspannung  $V_{oc}$ . In diesem Fall findet kein Ladungsträgertransport statt, was bedeutet, dass zusätzlich generierte Ladungsträger im Halbleiter rekombinieren müssen und  $V_{oc}$  ein Maß für die Rekombinationsaktivität ist. Da auch hier keine Ladungsträger entnommen werden, ist die Energieentnahme gleich null.

Folglich liegt der Punkt für die maximale Leistungsentnahme zwischen beiden Grenzfällen. Zur Bestimmung des Punktes der maximalen Leistung wird die Strom-Spannung-Kennlinie einer Solarzelle unter definierter Beleuchtung bestimmt.

Für eine Solarzelle ergibt sich die Stromdichte über den pn-Übergang zu [45, 46]

$$j = - \int_{-L_h}^{L_e} \nabla j_e dz \quad (35)$$

wobei  $L_e$  und  $L_h$  die Diffusionslängen von Elektronen und Löchern sind. Durch Verwendung der Kontinuitätsgleichung (25) im statischen Fall erhält man für die Stromdichte:

$$j = -q \int_{-L_h}^{L_e} \left\{ G_{th} \left[ 1 - \exp\left(\frac{E_{F,n} - E_{F,p}}{kT}\right) \right] - G_{ph} \right\} dz \quad (36)$$

wobei  $G_{ph}$  die Photonengenerationsrate und  $G_{th}$  die thermische Generationsrate ist.

Die Differenz der Quasi-Fermieenergien entspricht der Spannung am pn-Übergang mal der Elementarladung  $e$ . Daraus resultiert die Strom-Spannung-Kennlinie einer Solarzelle zu:

$$j = qG_{th}(L_e + L_h) \left[ \exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1 \right] + q \int_{-L_h}^{L_e} G_{ph} dz \quad (37)$$

Für den Kurzschlussfall ( $V = 0$ ) ergibt sich die Kurzschlussstromdichte zu:

$$j_{sc} = q \int_{-L_h}^{L_e} G_{ph} dz \quad (38)$$

Für negative Spannungen und ohne Beleuchtung ( $G_{ph} = 0$ ) erhält man die Dunkelsättigungsstromdichte:

$$j_0 = qG_{th}(L_e + L_h) \quad (39)$$

Daraus resultiert die Ein-Dioden-Gleichung für Solarzellen:

$$j(V) = j_{sc} - j_0 \left[ \exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1 \right] \quad (40)$$

Für den Fall der offener Klemmspannung ( $j(V) = 0$ ) ist die Spannung:

$$V_{oc} = \frac{kT}{q} \ln\left(\frac{j_{sc}}{j_0} + 1\right) \quad (41)$$

Für reelle Solarzellen treten häufig noch Verlustkanäle auf, welche die Kennlinie beeinflussen. Diese können durch parasitäre serielle und parallele Flächenwiderstände  $R_s$  und  $R_p$  berücksichtigt werden. Dabei beschreibt der Parallelwiderstand  $R_p$  Verluste innerhalb der Struktur, wie z. B. Kristallfehler oder Materialdefekte. Im Gegensatz dazu beschreibt der serielle Widerstand  $R_s$  den Widerstand des Halbleitermaterials sowie die Kontaktwiderstände und die Widerstände der Zuleitungen. Unter Berücksichtigung folgt daraus eine modifizierte Ein-Dioden-Gleichung:

$$j(V) = j_{sc} - j_0 \left[ \exp\left(\frac{q(V + R_s A \cdot j)}{kT}\right) - 1 \right] - \frac{V + R_s A \cdot j}{R_p A} \quad (42)$$

In Abbildung 2-4 sind die idealen Kennlinien einer Solarzelle im Dunkeln und unter Beleuchtung schematisch dargestellt. Aus der Strom-Spannungs-Kennlinie unter definierter Beleuchtung können die wichtigsten Kenngrößen einer Solarzelle extrahiert werden. Berechnet man die Leistung der Zelle, so entspricht das Maximum der Kurve dem Punkt der maximaler Leistung ( $MPP^9$ ) und daraus abgeleitet auch die Spannung  $V_{mpp}$  bzw. die Stromdichte  $j_{mpp}$  für die maximale Leistung.

Das Verhältnis von maximaler Leistung und dem Produkt aus offener Klemmspannung und Kurzschlussstromdichte wird als Füllfaktor ( $FF$ ) bezeichnet:

---

<sup>9</sup> Maximum Power Point

$$FF = \frac{P_{MPP}}{V_{oc} \cdot j_{sc}} = \frac{V_{MPP} \cdot j_{MPP}}{V_{oc} \cdot j_{sc}} \quad (43)$$

Den Wirkungsgrad einer Solarzelle kann dann wie folgt bestimmt werden:

$$\eta = \frac{P_{MPP}}{P_{ein}} = \frac{V_{oc} \cdot j_{sc} \cdot FF}{P_{ein}} \quad (44)$$

Aus den Formeln kann man sich überlegen, anhand welcher Parameter der Wirkungsgrad von Solarzellen optimiert werden kann:

- Maximieren der Diffusionslänge erhöht die Dunkelsättigungsstromdichte und damit die offenen Klemmspannung  $V_{oc}$  und die Kurzschlussstromdichte  $j_{sc}$ .
- Eine Steigerung der optischen Generationsrate  $G_{ph}$  erhöht die Kurzschlussstromdichte  $j_{sc}$ .
- Reduzierung von (parasitären) Widerstandsverlusten und nicht idealen Diodenströmen.

Eine weitere Größe zur Beschreibung von Solarzellen ist die spektrale Empfindlichkeit, welche definiert ist als das Verhältnis von monochromatisch erzeugter Stromdichte  $j_{photo}(\lambda)$  zu monochromatischer Bestrahlungsstärke  $E(\lambda)$ :

$$S(\lambda) = \frac{dj_{photo}(\lambda)}{E(\lambda) \cdot d\lambda} \quad (45)$$

Daraus lässt sich die zu erwartende Photostromdichte  $j_{photo}$  einer Solarzelle unter beliebigen spektralen Bedingungen berechnen:

$$j_{photo} = \int S(\lambda)E(\lambda)d\lambda \quad (46)$$

Alternativ zur spektralen Empfindlichkeit wird häufig die externe Quanteneffizienz (EQE) angegeben. Diese ist definiert als das Verhältnis der zum Photostrom beitragenden Elektronen und der Anzahl von eingestrahlenen Photonen einer bestimmten Wellenlänge:

$$EQE(\lambda) = \frac{n_q}{n_\lambda} \quad (47)$$

Beide Größen enthalten äquivalente Informationen und sind wie folgt miteinander verknüpft:

$$EQE(\lambda) = \frac{j_{photo}(\lambda)/q}{E(\lambda)/h\nu} = \frac{hc}{q} \frac{j_{photo}}{E(\lambda) \cdot \lambda} = 1239,84 \frac{nm \cdot W}{A} \cdot \frac{S(\lambda)}{\lambda} \quad (48)$$

Häufig wird die Quanteneffizienz angegeben, da sich die Qualität der Solarzelle einfacher ablesen lässt. Der Verlauf und die Werte der Quanteneffizienz lassen eine genaue Abschätzung der zu erwartenden Kurzschlussstromdichte zu.



## 3 Experimentelle Methoden

*Im dritten Kapitel werden verschiedene Messmethoden und -aufbauten präsentiert, welche zur Charakterisierung der jeweiligen Proben verwendet wurden.*

*Grundlage für spektrale Untersuchungen einzelner QP bildet ein Mikro-Photolumineszenz ( $\mu$ PL) Messplatz, welcher in Abschnitt 3.1 mit den zugehörigen Komponenten beschrieben wird. Darauf folgend werden in Abschnitt 3.2 die Methoden der zeitaufgelösten Spektroskopie zur Analyse der dynamischen Entwicklung des PL Signals näher erklärt. Eine weitere Möglichkeit zur Charakterisierung ist die orts aufgelöste Magnetolumineszenz-Spektroskopie, welche in Abschnitt 3.3 vorgestellt wird. Anschließend werden die Komponenten und Techniken zur Analyse der statistischen Eigenschaften einzelner QP-Photonen in Abschnitt 3.4 behandelt. Hier wird speziell auf den Aufbau und die Funktionsweise eines Hanbury Brown und Twiss (HBT) Experiments fokussiert.*

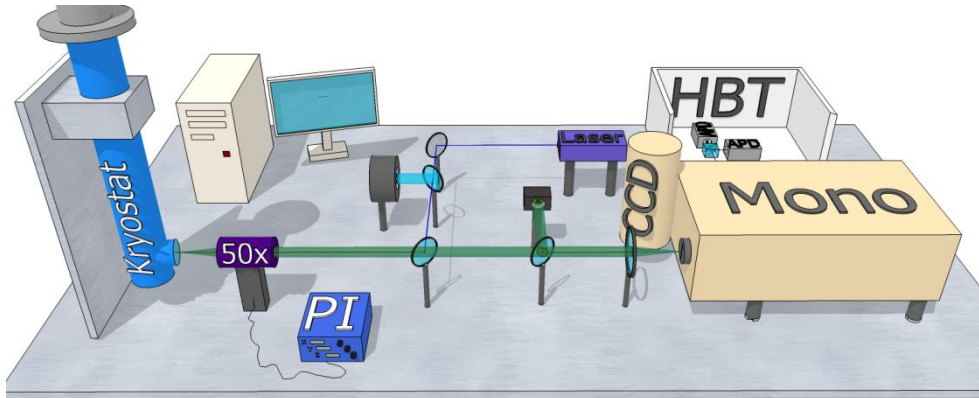
*Abschließend werden in Abschnitt 3.5 die experimentellen Methoden zur Charakterisierung von Solarzellen detailliert beschrieben. Die Messung der Strom-Spannung-Kennlinien, sowohl mit als auch ohne Beleuchtung, die experimentellen Techniken zur Bestimmung der externen Quanteneffizienz sowie der Messaufbau zur Bestimmung der Zwei-Photonen-Absorption werden erläutert. Zudem werden allgemeine Standard-Testbedingungen der Charakterisierung von Solarzellen kurz diskutiert.*

### 3.1 Mikro-Photolumineszenz Messplatz

Die Grundlage für hochortsaufgelöste spektroskopische Untersuchungen einzelner QP bildet ein  $\mu$ PL Messplatz, wie schematisch in Abbildung 3-1 skizziert. Nachfolgend werden die wichtigsten Komponenten kurz erläutert:

**Kryostat:** Die Proben werden auf einem Kältefinger im evakuierten Probenraum eines Durchflusskryostaten montiert, welcher mit flüssigem Helium gekühlt wird. Mit einer Temperatur-Steuereinheit kann über eine Heizspule die Probentemperatur beliebig zwischen 8 K und Raumtemperatur (300 K) variiert werden. Der Kryostat verfügt zudem über mehrere Glasfenster zur optischen Anregung der Probe sowie zur Auskopplung des Lumineszenzsignals. Zusätzlich gibt es mehrere elektrische Durchführungen zur elektrischen Anregung bzw. zur Messung von generiertem Strom.

**Laser:** Für die optische Anregung der Proben wurde vorzugsweise eine 375 nm GaN Laserdiode verwendet, welche im Dauerstrichbetrieb oder auch gepulst mit



**Abbildung 3-1:** Schematische Darstellung des  $\mu$ PL Messplatzes. Für die optische Anregung wurde eine 375 nm Laserdiode verwendet. Ein 50x Mikroskopobjektiv, welches auf einem 3D Piezosystem montiert ist, dient zur Fokussierung des Lasers und zum Einsammeln des PL Signals. Dieses wird im Monochromator spektral zerlegt und mittels einer Si-CCD Kamera detektiert. Am seitlichen Ausgang des Monochromators ist ein HBT Experiment für Korrelationsmessungen aufgebaut.

Frequenzen bis zu 80 MHz betrieben werden kann. Alternativ konnte auch auf einen frequenzverdoppelten Nd:YAG-Festkörperlaser mit einer Emissionswellenlänge von 532 nm zurückgegriffen werden.

**Strahlengang:** Der Laserstrahl wird über diverse Spiegel und Strahlteiler auf ein Mikroskopobjektiv mit einer numerischen Apertur von  $NA = 0.42$  gelenkt, wodurch der Laserspot auf einen Durchmesser von ca. 3 - 5  $\mu\text{m}$  fokussiert werden konnte. Das Objektiv ist auf einer 3D Piezo - Lineareinheit montiert, um einzelne Strukturen mit einer Genauigkeit von einigen 10 nm gezielt anzusteuern. Zusätzlich wird das PL-Signal durch das Objektiv eingesammelt und mit einer Linse auf den Eingangsspalt eines Monochromators fokussiert.

**Monochromator:** Es stand ein Gittermonochromator in der Czerny-Turner-Anordnung mit einer Fokallänge von 0.55 m und zwei Gittern mit 600 Strichen/mm und 1800 Strichen/mm zur Verfügung. Das spektral zerlegte PL-Signal wird mit einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten Silizium-CCD<sup>10</sup> Kamera detektiert. Intern ist zusätzlich ein Klappsiegel integriert, wodurch das spektral zerlegte Signal auf einen Seitenausgang abgebildet werden kann.

**Weißlichtabbildung:** Zum exakten Positionieren bzw. Selektieren von Nanostrukturen wurde eine Konfokalmikroskop-Abbildung, bestehend aus einer Weißlichtquelle, diversen Spiegeln und Linsen sowie einer CCD-Videokamera in den Strahlengang integriert.

**Optiken:** Zusätzlich stehen eine Reihe von Filtern und Polarisationsoptiken ( $\lambda/2$ -Plättchen,  $\lambda/4$ -Plättchen, verschiedene Farbgläser, ...) zur Verfügung, welche im Strahlengang platziert werden können.

<sup>10</sup> Charged Coupled Device

### 3.2 Zeitaufgelöste Spektroskopie

Die zeitaufgelöste Spektroskopie gibt einen Einblick in die Anregungs- und Rekombinationsdynamik von Exzitonen. Dafür werden Ladungsträger im QP durch einen kurzen Laserpuls angeregt und die Zeit gemessen, bis diese wieder rekombinieren. Die Laserdiode wird im gepulsten Modus mit einer Frequenz von 80 MHz betrieben, wobei die Laserpulse eine Pulsbreite von  $< 300$  ps haben. Zur Detektion der Photonen wird eine Silizium (Si) Lawinenphotodiode (APD<sup>11</sup>) mit einer zeitlichen Auflösung von ca. 450 ps am seitlichen Ausgang des Monochromators platziert. Eine TAC<sup>12</sup>-Karte verknüpft das Start-Signal des Lasers mit dem Stopp-Signal der APD und errechnet ein Intensität-Zeit-Diagramm, woraus die dynamische Entwicklung des PL-Signals bzw. die charakteristische Lebensdauer bestimmt werden.

### 3.3 Magnetolumineszenzspektroskopie

Der Messaufbau ist analog zu dem  $\mu$ PL Aufbau in Abbildung 3-1, jedoch wird ein Kryostat verwendet, welcher mittels supraleitenden Spulen homogene Magnetfelder bis zu 5 T erzeugen kann. Die Richtung des Magnetfeldes ist durch die Konstruktion des Kryostaten in Verbindung mit dem verwendeten Probenhalter festgelegt und entspricht der Faraday-Konfiguration, d. h. das Magnetfeld ist parallel zur Wachstumsrichtung. Es handelt sich ebenfalls um einen mit flüssigem Helium gekühlten Durchflusskryostaten mit der Möglichkeit zur Variation der Proben temperatur zwischen 4 K und Raumtemperatur. An diesem Setup wird zur Anregung der Proben ein frequenzverdoppelter Nd:YAG Festkörperlaser mit einer Wellenlänge von 532 nm verwendet. Die spektrale Auswertung des Lumineszenzsignals geschieht ebenfalls über einen Monochromator und einer Si-CCD Kamera.

### 3.4 Autokorrelation zweiter Ordnung

Für die Messung der Photonenstatistik mittels Intensität-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung wird eine Hanbury Brown und Twiss (HBT) Messanordnung verwendet, benannt nach ihren Erfindern R. Hanbury Brown und R.Q. Twiss [47]. Ein HBT-Setup besteht im Wesentlichen aus einem 50 : 50 Strahlteiler und zwei Detektoren, in diesem Fall zwei APDs. Zur Fokussierung werden

---

<sup>11</sup> Avalanche Photo Diode

<sup>12</sup> Time to Amplitude Converter

zusätzlich noch zwei Linsen verwendet. Ein Tiefpassfilter dient zur Unterdrückung von Nebensignaleffekten (Crosstalk) zwischen den beiden APDs.

Das PL-Signal wird über einen Klappspiegel auf den seitlichen Ausgangsspalt des Monochromators gelenkt und mit Linsen durch den Strahlteiler auf die beiden APDs fokussiert. Diese sind jeweils auf einem xyz-Lineartisch montiert, so dass jede APD in den Fokus des Signals justiert werden kann. Photonen werden mit gleicher Wahrscheinlichkeit entweder transmittiert oder reflektiert und treffen je auf nur eine der beiden Detektoren. Die APDs werden an den Start- bzw. Stoppeingang der TAC-Karte angeschlossen.

Wird von APD 1 ein Photon detektiert, so löst der Spannungspuls am Start-Eingang die Zeitmessung aus. Trifft nach einer gewissen Zeit  $\tau$  ein Photon auf APD 2, so stoppt die Messung. Diese Messung wird sehr oft wiederholt und es entsteht ein Koinzidenzhistogramm der zeitlichen Abstände von Photonenpaaren, welches proportional zu  $g^{(2)}(\tau)$  ist.

### 3.5 Methoden zur Charakterisierung von Solarzellen

Der Messaufbau zur Charakterisierung von Solarzellen ist in Abbildung 3-2 schematisch skizziert. Zur Bestimmung der Strom-Spannungs-Kennlinien wird eine äußere Spannung an die Solarzelle angelegt, welche mit einem Messwiderstand in Reihe geschaltet ist. Der Strom wird indirekt als Spannungsabfall über den Widerstand gemessen.

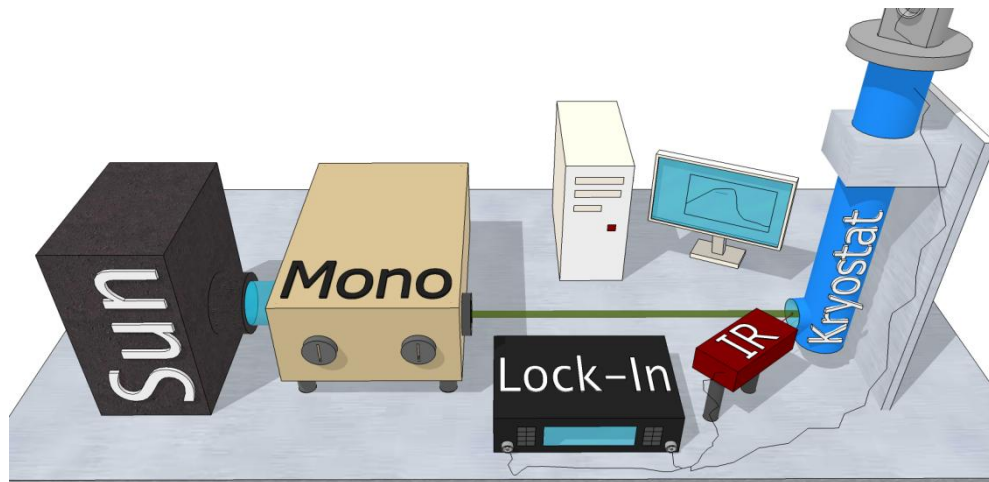
Zur Bestimmung der Solarzellenparameter (z. B. Kurzschlussstrom, offene Klemmspannung, ...) sind abhängig vom möglichen Einsatzgebiet standardisierte Testbedingungen definiert, wie in Tabelle 1 aufgeführt. Die Bezeichnung der Spektren erfolgt nach der jeweils durchstrahlten Luftmasse (AM<sup>13</sup>). Die Referenzspektren waren und sind immer noch Gegenstand von Diskussionen und unterscheiden sich leicht je nach gewählter Norm.

	Weltraum	Terrestrisch	Konzentratorsystem
Spektrum	AM 0	AM 1.5 global	AM 1.5 direkt
Bestrahlungsstärke	1367 W/m <sup>2</sup>	1000 W/m <sup>2</sup>	900 W/m <sup>2</sup>
Zelltemperatur	25 °C	25 °C	25 °C
Norm	ISO 15387 ASTM E490-00a	IEC 60904-3	IEC 60904-3

**Tabelle 1:** Standardisierte Testbedingungen für Solarzellen, unterschieden je nach Anwendungsgebiet.

<sup>13</sup> Air Mass





**Abbildung 3-2:** Messaufbau zur Charakterisierung der Solarzellen und zur Messung der Zwei-Photonen-Absorption mit einer IR Lichtquelle. Als Sonnensimulator (Sun) wurde eine Xe – Hochdruckdampfampe verwendet. Zur Bestimmung der Quanteneffizienz und für die Messung der Zwei-Photonen-Absorption wird das Weißlicht durch einen Monochromator spektral zerlegt.

Für Sonnensimulatoren werden häufig Lampenkombinationen in Verbindung mit Filtern verwendet, um das Sonnenspektrum so exakt wie möglich wiederzugeben. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurden mit einer Xe-Hochdruckdampfampe durchgeführt.

Für die Messung der spektralen Empfindlichkeit bzw. der externen Quanteneffizienz (EQE) wurde der Messplatz um einen Gitter-Monochromator erweitert. Das weiße Licht des Sonnensimulators wird spektral zerlegt und der Kurzschlussstrom für jede Wellenlänge mit einem Picoamperemeter direkt gemessen ( $I_{sc}(\lambda)$ ). Zur Berechnung der EQE wird zusätzlich noch die spektrale Beleuchtungsstärke benötigt. Dafür stand ein Leistungsmessgerät mit Messköpfen für den sichtbaren als auch für den infraroten Spektralbereich zur Verfügung.

Um die Absorption von zwei Photonen mit jeweils einer Energie kleiner als die Bandlücke experimentell nachzuweisen, wird der spektrale Messaufbau erweitert. Zusätzlich zur primären Lichtquelle, d. h. das spektral zerlegte Licht der Xe-Hochdruckdampfampe, wird eine Infrarot-Lichtquelle (IR) benötigt. Zum Einsatz kam hier eine  $1.3 \mu\text{m}$  Laserdiode, welche durch einen Funktionsgenerator mit einer Frequenz von 477 Hz moduliert wurde. Die Energie der IR Lichtquelle ist kleiner als die Bandlücken aller verwendeten Materialien und kann deshalb keinen Anteil zum primären Photostrom beitragen. Aber im Falle eines Zwischenbandes kann über einen Zwei-Photonen-Absorptionsprozess ein zusätzlicher Photostrom erzeugt werden. Dieser wird direkt durch den Lock-In Verstärker gemessen, welcher mit der Laserdiode synchronisiert ist. Dies ermöglicht den IR Photostrom vom primären Photostrom zu trennen. Die Messungen zum Zwei-Photonen-Absorptionsprozess

werden bei tiefen Temperaturen durchgeführt, um thermische Anregungen der Ladungsträger in das Leitungsband zu unterdrücken. Deshalb wurden die Proben in einem Durchflusskryostaten montiert, so dass eine beliebige Temperatur zwischen 10 K und Raumtemperatur (300 K) gewählt werden konnte. Damit konnten zusätzlich die Aktivierungsenergien der QP bestimmt werden.

## 4 InP/GaInP Quantenpunkte

*In diesem Kapitel werden Photolumineszenz (PL)-Untersuchungen an InP/GaInP QP gezeigt und diskutiert. Diese Kombination von QP und Matrixmaterial zeichnet sich durch eine Emission im roten Spektralbereich aus.*

*Beginnend mit der  $\mu$ PL-Spektroskopie an ultralangsam gewachsenen InP QP werden in Abschnitt 4.1 leistungsabhängige Messungen an spektral isolierten QP präsentiert. Ein Ratenmodell beschreibt die Emission von Exziton und Biexziton. Zusätzlich wird die Feinstrukturaufspaltung von Exziton und Biexziton durch polarisationsabhängige Detektion näher untersucht. Messungen in einem extern angelegten Magnetfeld zeigen unterschiedliche Auswirkungen auf die Lumineszenz. Die Emission einzelner Photonen unter gepulster Anregung sowie unter Dauerstrichanregung wird anhand der zeitlichen Emissionsstatistik demonstriert. Die daraus ermittelten Werte für  $g^{(2)}(0)$  und der Einzelphotoneneffizienz bestätigen die hohe Güte dieser QP.*

*Anschließend werden in Abschnitt 4.2 die Ergebnisse der spektroskopischen Untersuchungen an InP QP gezeigt, welche mit einem sequentiellen Wachstumsprozess hergestellt wurden. Am makroskopischen QP-Ensemble werden zusätzlich zu leistungs- und temperaturabhängigen Messungen auch die dynamische Entwicklung des Lumineszenzsignals analysiert. Abschließend werden auch hier einzelne, spektral isolierte QP näher untersucht. Messungen in Abhängigkeit der Anregungsleistung erlauben die Identifikation der Lumineszenz von Exziton und Biexziton. Auch in Bezug auf die zeitliche Emissionscharakteristik wird die Emission einzelner Photonen demonstriert und die zugehörige Effizienz bestimmt.*

### 4.1 Ultralangsam gewachsene InP Quantenpunkte

Aufgrund einer hohen Kristallqualität und Quanteneffizienz werden bevorzugt selbstorganisiert gewachsene QP gewählt. Weit verbreitet sind QP-Systeme auf Basis von III-Arsenid-Verbindungshalbleiter. Aufgrund ihrer Bandlücke emittieren diese im NIR Spektralbereich. Jedoch ist die Detektionseffizienz von kommerziell erhältlichen Detektoren in diesem Bereich stark limitiert. Beispielsweise haben Si-APDs ihre maximale Effizienz bei 650 nm mit stark abnehmender Tendenz zu größeren Wellenlängen.

Eine Substitution des Gruppe-V-Elements durch Phosphid resultiert in größeren Bandlücken und demzufolge kleineren Emissionswellenlängen der zugehörigen

Halbleiterverbindungen im sichtbaren Spektralbereich, wie Abbildung A-1 im Anhang verdeutlicht. Die typische Flächendichte von InP/GaInP QP ist im Bereich von  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$  bis  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . Für die Verwendung von QP als Einzelphotonenquelle ist es essentiell, dass die Emissionslinien spektral isoliert sind. Im ersten Abschnitt werden experimentell gewonnene Ergebnisse an spektral isolierten InP QP präsentiert, welche mit ultralangsamem Wachstumsraten hergestellt wurden. Es ist zu erwähnen, dass weder laterale Mikrostrukturen geätzt noch Nanoaperturen durch eine Schattenmaske aufgebracht wurden. Lediglich eine Nahfeldabbildung mit einem 50x Mikroskopobjektiv auf den Eingangsspalt des Monochromators wurde realisiert um die Emission einzelner QP zu selektieren.

---

#### 4.1.1 $\mu$ PL versus Anregungsleistung

---

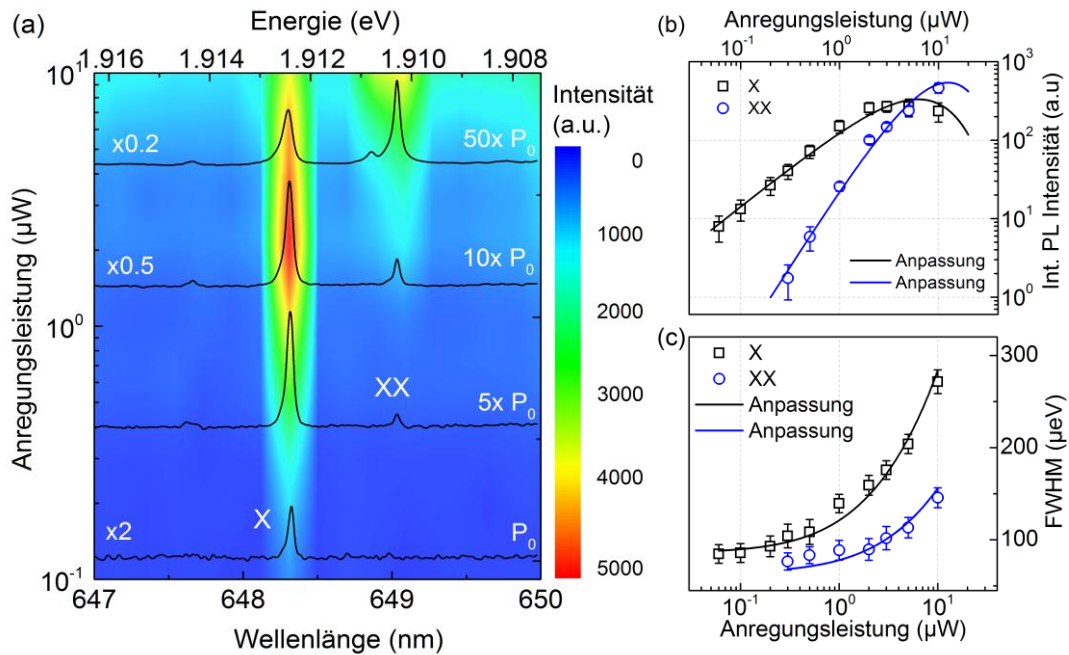
Abbildung 4-1 (a) zeigt eine Serie von Spektren in Abhängigkeit der Anregungsleistung eines einzelnen, spektral isolierten InP QP in Konturdarstellung. Dabei spiegeln blaue Bereiche geringe PL Intensität und rote Bereiche dementsprechend hohe PL Intensität wieder. Zusätzlich sind in Abbildung 4-1 vier ausgewählte  $\mu$ PL Spektren für verschiedene Anregungsleistungen dargestellt. Bei einer kleinen Anregungsleistung von  $P_0 = 100 \text{ nW}$  ist nur eine einzelne Linie bei  $648.33 \text{ nm}$  mit einer Halbwertsbreite (FWHM<sup>14</sup>) von  $0.025 \text{ nm}$  ( $\cong 74 \text{ } \mu\text{eV}$ ) zu erkennen. Die Linienbreite ist nahe der Auflösungsgrenze von  $70 \text{ } \mu\text{eV}$  und wird einem QP-Exziton ( $X$ ) zugeordnet. Ab einer Anregungsleistung von etwa  $5 \cdot P_0$  wird im  $\mu$ PL Spektrum die Lumineszenz einer weiteren Linie bei einer Wellenlänge von  $649.03 \text{ nm}$  mit einer FWHM von ebenfalls  $0.025 \text{ nm}$  ( $74 \text{ } \mu\text{eV}$ ) sichtbar, welche dem Biexziton ( $XX$ ) zugeordnet wird. Daraus folgt für das Biexziton eine Bindungsenergie von  $E_B = E_{XX} - E_X = -2.09 \text{ meV}$ .

Nach Definition ist die Biexziton-Bindungsenergie der Abstand vom dunklen Exziton zum Biexziton [48], d. h. die Bindungsenergie ist um den Betrag der Aufspaltung von hellen zu dunklen Exzitonen kleiner. Da dunkle Exzitonen nicht in PL Experimenten beobachtet werden, wird häufig der Abstand von hellen Exzitonen und Biexziton als Bindungsenergie bezeichnet. Persson et al. untersuchten die Biexziton-Bindungsenergie für InP QP in Abhängigkeit der QP-Geometrie und den zugehörigen Emissionsenergien. Danach erwartet man für QP mit einer Emissionsenergie von etwa  $1.9 \text{ eV}$  und einer geometrischen Höhe von nur etwa  $2 \text{ nm}$  eine negative Bindungsenergie in der Größenordnung von etwa  $-2.5 \text{ meV}$  [49].

Biexzitonen bestehen aus zwei Elektronen und zwei Löchern. Eine negative Bindungsenergie bedeutet, dass die abstoßende Wechselwirkung der Elektronen

---

<sup>14</sup> Full Width at Half Maximum



**Abbildung 4-1:** (a) Konturdarstellung und ausgewählte  $\mu$ PL Spektren eines einzelnen InP QP für steigende Anregungsleistung. Blaue Bereiche stellen geringe PL Intensität dar und rote Bereiche hohe Intensität. Die Linie bei 648.32 nm wird dem Exziton (X) bzw. bei 649.03 nm dem Biexziton (XX) zugeordnet. (b) Integrierte Intensität als Funktion der Anregung für X und XX in doppellogarithmischer Darstellung. Die Linien sind Anpassungen nach Gleichung ( 50 ). (c) Halbwertsbreite (FWHM) von X (schwarz) und XX (blau) als Funktion der Anregungsleistung mit Anpassungen nach Gleichung ( 51 ) (Linien).

bzw. Löcher untereinander im Verhältnis zur anziehenden Wechselwirkung zwischen jeweils Elektronen und Löchern überwiegt. Je kleiner die QP, desto stärker ist die räumliche Lokalisierung der Elektronen/Löcher im QP-Potential. Daher werden Elektronen sowie Löcher in diesem Fall nur durch das tiefe QP-Potential zusammengehalten und würden sich sonst gegenseitig abstoßen.

Mit stetiger Erhöhung der Anregungsleistung nimmt die Intensität von X weiter zu und geht ab  $20 \cdot P_0$  in Sättigung über. Bei der maximalen Anregungsleistung sinkt die Intensität sogar wieder leicht ab. Für XX hingegen ist eine deutlich stärkere Zunahme der Intensität mit steigender Anregungsleistung zu beobachten. Um dies zu quantifizieren ist die integrierte Intensität von X und XX als Funktion der Anregungsleistung in Abbildung 4-1 (b) in doppellogarithmischer Skalierung dargestellt.

Wie aus den einzelnen Spektren bzw. dem Konturplot schon vermutet, steigt die Intensität von X annähernd linear mit der Anregungsleistung und geht ab  $2 \mu\text{W}$  in Sättigung über. Für Anregungsleistungen  $> 10 \mu\text{W}$  sinkt diese sogar wieder leicht ab.

Hingegen ist die Lumineszenz von  $XX$  erst für größere Anregungsleistungen sichtbar ( $> 0.3 \mu\text{W}$ ) und steigt superlinear an.

Der Intensitätsverlauf von  $X$  bzw.  $XX$  mit steigender Anregungsleistung kann durch ein Ratenmodell beschrieben werden [50]. Die Mastergleichung für die Wahrscheinlichkeit  $f_N$  dass  $N$  Exzitonen in einem einzelnen QP erzeugt werden ist gegeben durch:

$$\frac{df_N}{dt} = \alpha(t)f_{N-1} - \alpha(t)f_N + (N+1)\alpha(t)f_{N+1} - Nf_N \quad (49)$$

wobei  $\sum f_N = 1$  und  $\alpha(t)$  eine Konstante, die proportional zur Anregungsleistung ist. Die beiden ersten Terme aus Gleichung ( 49 ) beschreiben die Anregung und sukzessive Relaxation von Exzitonen in den  $N-1$  und  $N$ -Zustand. Der dritte und vierte Term beschreiben den Zerfall von Exzitonen vom  $N+1$  und  $N$ -ten Zustand. Unter Dauerstrich-Anregung (d. h.  $\alpha(t) = \text{konst.}$ ) können Exziton und Biexziton durch eine Poisson-Verteilung beschrieben werden:

$$f_N = \frac{\alpha^N}{N!} e^{-\alpha} \quad (50)$$

Dabei ist  $\alpha$  konstant und proportional zur Anregungsleistung sowie  $N$  der jeweilige Exziton-Zustand. Für die Beschreibung der Messdaten sind hier noch ein Proportionalitätsfaktor  $a$  für die Anregungsleistung und ein Integrationsfaktor  $b$  für die Intensität zu berücksichtigen. Die berechneten Kurven für  $X$  und  $XX$  sind als durchgezogene Linien in Abbildung 4-1 (b) für  $N = 1$  ( $X$ , schwarz) und  $N = 2$  ( $XX$ , blau), sowie einen Proportionalitätsfaktor von  $a = 0.16$  und Integrationsfaktor von  $b = 950$  gezeigt.

Eine Zuordnung der Linien für  $X$  und  $XX$  alleine durch leistungsabhängige Messungen ist nicht eindeutig, da z. B. auch geladene Exzitonenzustände einen ähnlichen Intensitätsverlauf haben. Eine genaue Bestimmung wäre beispielsweise durch Kreuzkorrelationsmessungen möglich [51]. Aber auch über polarisationsaufgelöste Messungen kann das  $X$ - $XX$ -Paar bestätigt werden, was im nächsten Abschnitt folgt.

Aus den Anpassungen der Lumineszenzlinien wurde ebenfalls die FWHM bestimmt. Betrachtet man die FWHM der beiden Linien  $X$  und  $XX$ , so nehmen diese mit steigender Anregungsleistung zu, wie in Abbildung 4-1 (c) aufgetragen ist. Für  $X$  steigt diese von  $74 \mu\text{eV}$  auf  $270 \mu\text{eV}$  für die maximale Anregungsleistung von  $10 \mu\text{W}$  an, wobei für kleine Anregungsleistungen die FWHM sich zunächst kaum ändert. Eine merkliche Zunahme setzt erst ein, wenn die Intensität in Sättigung übergeht, was bei einer Anregungsleistung von  $20 \cdot P_0$  der Fall ist. Für  $XX$  hingegen vergrößert sich die FWHM von anfangs  $75 \mu\text{eV}$  auf  $145 \mu\text{eV}$  für die maximale

Anregungsleistung. Die Zunahme setzt hier erst später ein, da die Intensität auch erst bei einer höheren Anregungsleistung in Sättigung übergeht. Die Zunahme der Halbwertsbreite mit steigender Anregungsleistung ist auch bekannt als „Leistungsverbreiterung“ und kann für lorentzförmige Linien beschrieben werden durch [52]:

$$\Gamma = \Gamma_0 \sqrt{1 + \alpha} \quad (51)$$

Dabei ist  $\alpha$  konstant und proportional zur Anregungsleistung. Eine Anpassung der Messdaten von X mit  $\Gamma_0 = 85.7 \mu\text{eV}$  (schwarz) und für XX mit  $\Gamma_0 = 63.7 \mu\text{eV}$  (blau) nach Gleichung (50) ist in Abbildung 4-1 (c) jeweils als Linie gezeigt.

Zusätzliche Verbreiterungsmechanismen können in Dephasierungsprozessen begründet sein. Aufgrund steigender, nichtresonanter Anregungsleistung treten in der Umgebung des QP lokale Schwankungen des elektromagnetischen Feldes durch den Einfang und der Wechselwirkung von Ladungsträgern auf, was zu verbreiterten Emissionslinien führt [53, 54].

---

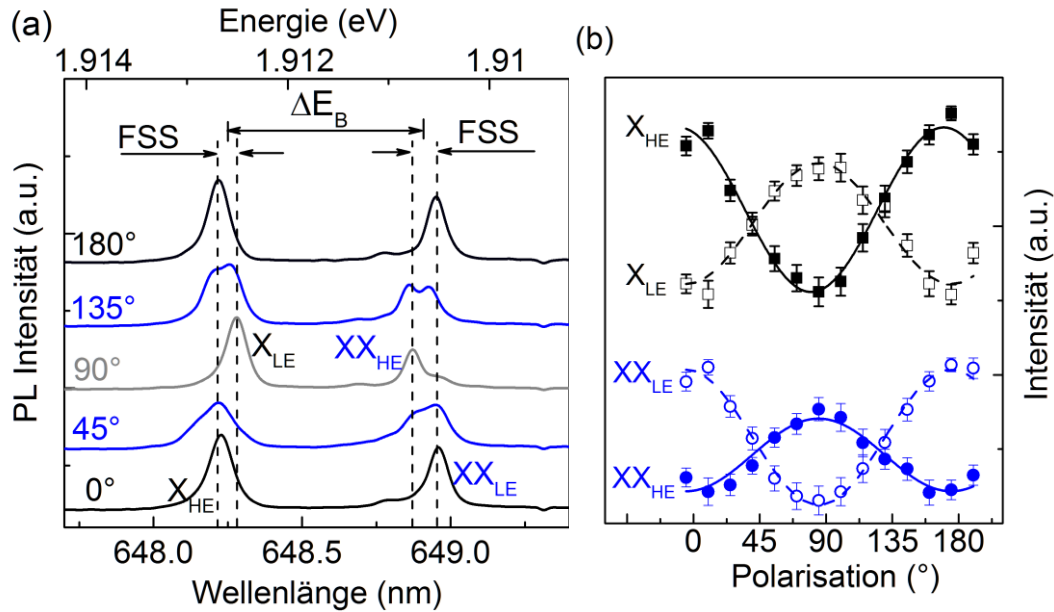
#### 4.1.2 Feinstrukturaufspaltung und Polarisationsseigenschaften

---

Ein idealer, symmetrischer QP hat nach dem Energieschema in Abbildung 2-2 eine vierfache Spinentartung des Grundzustandes. Bei der Rekombination von Elektronen-Loch-Paaren kommt es zur Emission von rechts- und linkszirkular polarisierten Photonen und die Emissionslinien sind im ungestörten Fall  $\delta$ -förmig. Aufgrund von Dephasierungsprozessen und der Energie-Zeit-Unschärfe sind die Emissionslinien im Experiment jedoch verbreitert und können durch eine Lorentz-Kurve mit endlicher Halbwertsbreite beschrieben werden.

Bisher wurde für die Anpassung der Emissionslinien von X und XX je nur eine Lorentz-Kurve verwendet. Berücksichtigt man jedoch zusätzlich die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung, so führt dies zu einer Störung verbunden mit einer Reduzierung der Symmetrie. Die Energieentartung wird aufgehoben und der Grundzustand wird durch eine Feinstruktur aufgespalten (FSS). Da das Biexziton als Kaskade über das Exziton zerfällt, wird auch hier die Feinstruktur sichtbar. Die zugehörigen Emissionslinien sind im Falle ohne äußeres Magnetfeld linear polarisiert, wie im Energieschema in Abbildung 2-2 skizziert.

Für eine genauere Betrachtung der FSS wurde die Lumineszenz abhängig von der linearen Polarisation für den oben untersuchten QP detektiert. In Abbildung 4-2 (a) sind ausgewählte Spektren für Polarisationsstellungen mit einem Vielfachen von  $45^\circ$  dargestellt (von unten nach oben). Dabei stimmt die  $0^\circ$  Stellung mit der [110]-Kristallorientierung des Substrates überein. Bei einer linearen Polarisations-



**Abbildung 4-2:**  $\mu$ PL Spektren verschiedener linearer Polarisations-einstellungen. Für  $0^\circ$  sind nur die hochenergetische Emissionslinie des Exzitons ( $X_{HE}$ ) sowie die niederenergetische Linie des Biexzitons zu sehen ( $XX_{LE}$ ). Für  $90^\circ$  hingegen sind jeweils die beiden komplementären Komponenten zu erkennen, d. h. die niederenergetische Emission von  $X_{LE}$  und die hochenergetische Emission von  $XX_{HE}$ . Bei einer Zwischenstellung von z. B.  $45^\circ$  sind jeweils beide Komponenten von  $X$  und  $XX$  zu sehen. (b) Intensität der jeweils beiden Anpassungen für  $X$  (Quadrate) und  $XX$  (Kreise) als Funktion der Polarisations-einstellung zeigt die gegenphasige Bewegung. Die Messdaten für  $X$  sind für eine bessere Darstellung vertikal versetzt.

einstellung von  $0^\circ$  (unterste Linie) ist jeweils nur eine Komponente des Exziton- bzw. Biexzitonendupletts dominierend, in diesem Fall die höherenergetische Komponente des Exzitons ( $X_{HE}$ ) sowie die niederenergetische Komponente des Biexzitons ( $XX_{LE}$ ). Für eine lineare Polarisations-einstellung von  $45^\circ$  hingegen sind beide Anteile der Lumineszenz von  $X$  sowie von  $XX$  annähernd gleich intensiv. Daraus bestimmt sich die FSS des Exziton-Dupletts zu  $200 \mu\text{eV}$  und die des Biexzitons zu  $210 \mu\text{eV}$ . Bei einer Polarisations-einstellung von  $90^\circ$  sind, im Vergleich zu  $0^\circ$ , die jeweils komplementären Komponenten von  $X$  und  $XX$  zu erkennen, d. h. die niederenergetische Linie von  $X_{LE}$  sowie die hochenergetische Linie von  $XX_{HE}$ .

Um den Polarisationsverlauf der jeweiligen (Bi-)Exziton-Komponenten zu verdeutlichen, sind die Intensitäten der jeweils beiden Exziton-Linien  $X_{HE}$  und  $X_{LE}$  sowie der beiden Biexziton-Linien  $XX_{HE}$  und  $XX_{LE}$  als Funktion der Polarisations-einstellung in Abbildung 4-2 (b) dargestellt. Für eine bessere Übersicht sind die Messdaten von  $X$  vertikal nach oben versetzt, wobei Punkte die experimentellen Daten verkörpern.



Für  $0^\circ$  besitzen  $X_{HE}$  und  $XX_{LE}$  eine hohe Intensität, während  $X_{LE}$  und  $XX_{HE}$  nur eine geringe Intensität haben. Bei  $45^\circ$  sind die Intensitäten aller Komponenten annähernd gleich. Weiter drehende Polarisationsstellungen führen zu einer Umkehrung der linearen Polarisation bei  $90^\circ$ , d. h. die Intensitäten der entgegengesetzten Komponenten werden maximal. Eine Fortsetzung der Serie dreht die Polarisationsrichtung zwischen  $90^\circ$  und  $180^\circ$  erneut um. Die Linien in Abbildung 4-2 (b) sind Anpassungen einer Sinusfunktion mit einer Periode von  $90^\circ$ . Der Verlauf der beiden Komponenten von  $X$  (bzw.  $XX$ ) und somit die Polarisation ist jeweils gegenphasig zueinander, wie auch aus dem Energieschema in Abbildung 2-2 für einen QP mit der Symmetrie kleiner  $D_{2d}$  erwartet wird. Dieser gegenphasige Intensitätsverlauf und die annähernd gleichgroße FSS von  $X$  und  $XX$  bekräftigt, dass es sich hier um ein Exziton-Biexziton-Paar eines einzelnen QP handelt.

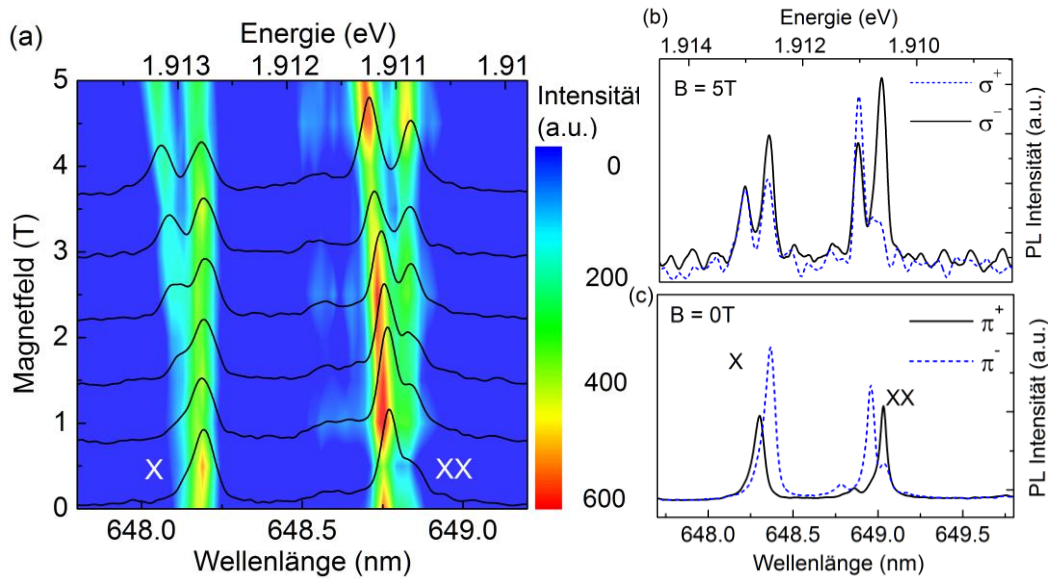
Bei QP in einer GaInP-Barriere kommt es auf Grund von Verspannungen häufig zu lokalen Bereichen mit verminderter Materialmischung, was zu In- und Ga-reicheren Regionen führt. Diese Kompositionsmodulationen können eine starke optische Anisotropie in InP/GaInP QP Systemen hervorrufen [55]. In diesem Fall kann dies hier ausgeschlossen werden, da an Vergleichsstrukturen ohne QP nur ein geringer Polarisationsgrad von 17 % in der  $[-110]$ -Richtung beobachtet wurde, was eine schwach ausgeprägte Kompositionsmodulation bedeutet [56]. Eine mögliche Ursache der FSS liegt in einer reduzierten Symmetrie der QP, hervorgerufen durch das Streckungsverhältnis von etwa 2 : 1 der QP Geometrie. Ellström et al. berichteten für InP/GaInP QP mit „normalen“ Wachstumsraten und vergleichbaren geometrischen Dimensionen eine FSS von 150  $\mu\text{eV}$  [57]. Es gibt verschiedene Möglichkeiten die FSS zu manipulieren. So kann z. B. durch Ausheilen der QP [58], durch gezielte Verspannungen [59] oder durch externe elektrische [60] bzw. magnetische Felder [61] die FSS verringert werden. Dies ist in Hinblick auf die Erzeugung von polarisationsverschränkten Photonen relevant, wo eine verschwindende FSS Voraussetzung ist.

---

#### 4.1.3 Magnetolumineszenz einzelner InP QP

---

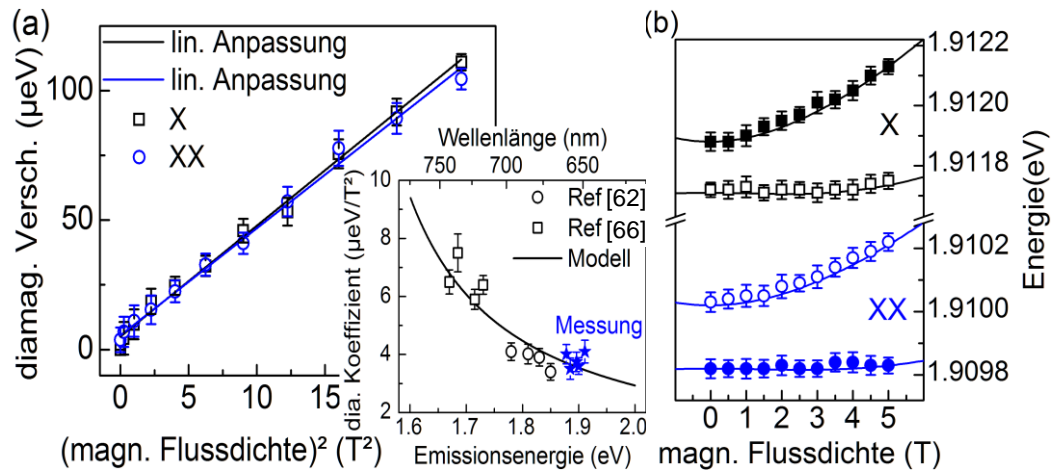
In den theoretischen Betrachtungen in Kapitel 2 wurde diskutiert, dass das Anlegen äußerer Felder die Energieposition, FSS und Polarisationsseigenschaften von  $X$  bzw.  $XX$  zusätzlich beeinflusst. Darüber hinaus können Untersuchungen in Magnetfeldern auch Rückschlüsse auf Spin-Eigenschaften der Ladungsträger geben. Daher wurde das PL Signal eines einzelnen QP für ein variierendes äußeres Magnetfeld näher studiert.



**Abbildung 4-3:** (a)  $\mu$ PL Konturdarstellung von X und XX für äußere Magnetfelder zwischen 0 T und 5 T, gemessen ohne Polarisator. Blaue Bereiche spiegeln geringe PL Intensität und rote Bereiche eine hohe Intensität wieder. Zusätzlich sind die Spektren für ganzzahlige Magnetfelder dargestellt. Mit steigendem Magnetfeld spalten die Emissionslinien weiter auf und verschieben zu größeren Energien. (b)  $\mu$ PL Spektren bei  $B = 5$  T unter rechts- und linkszirkularer Detektion. (c)  $\mu$ PL Spektren für  $B = 0$  T und Detektion in horizontaler und vertikaler linearer Basis.

Die Lumineszenzspektren von X und XX mit steigendem äußerem Magnetfeld in Faraday-Konfiguration, d. h. Magnetfeld senkrecht zur Wachstumsrichtung, sind in Abbildung 4-3 in einem Konturdiagramm gezeigt. Dabei stellen blaue Bereiche geringe PL Intensität und rote Bereiche dementsprechend hohe PL Intensität dar. Ohne äußeres Magnetfeld sind die Emissionslinien von X bzw. XX durch die Feinstruktur von  $200 \mu\text{eV}$  (X) bzw.  $210 \mu\text{eV}$  (XX) aufgespalten. Die Analyse der Polarisation zeigt, dass die jeweiligen Komponenten linear und senkrecht zueinander polarisiert sind, wie Abbildung 4-2 (c) verdeutlicht. Dies ist konsistent mit den vorangegangenen Messungen und dem Energieschema der Biexziton-Zerfallskaskade aus Abbildung 2-2 für QP mit einer Symmetrie  $< D_{2d}$ . Allerdings sind die Intensitäten der beiden Komponenten unterschiedlich. Mit steigendem Magnetfeld nimmt die FSS aufgrund des Zeeman-Effektes zu. Zusätzlich verschiebt die mittlere Energieposition durch die diamagnetische Verschiebung mit steigendem Magnetfeld hin zu kleineren Wellenlängen (Blauverschiebung). Die Analyse der Polarisation enthüllt, dass die jeweiligen Komponenten von linearer in zirkuläre Polarisation übergehen.

Abbildung 4-2 (b) zeigt das  $\mu$ PL Spektrum von X und XX mit der Detektion in zirkularer Basis für eine Magnetfeldstärke von 5 T. Nach dem Energieschema in

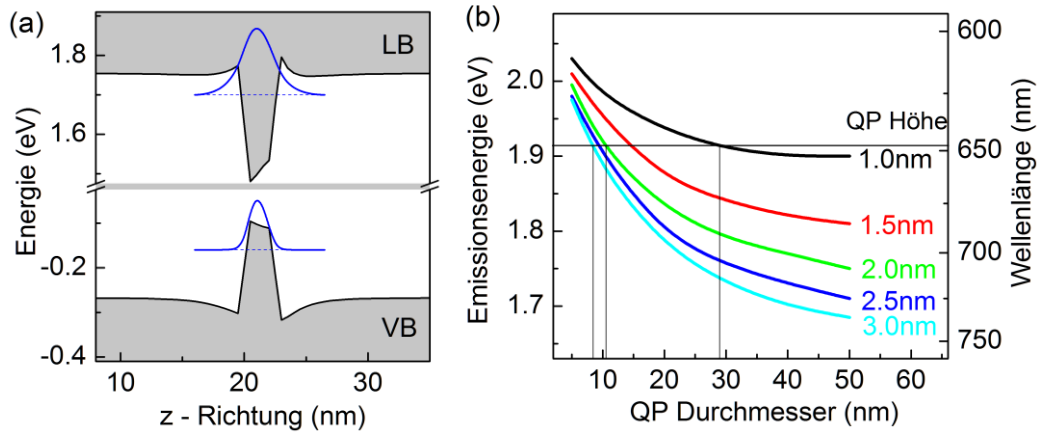


**Abbildung 4-4:** (a) diamagnetische Verschiebung von X (Quadrat) und XX (Kreis) in Abhängigkeit der quadratischen magn. Flussdichte. Linien stellen lineare Anpassungen mit  $\gamma_X = 4.3 \mu\text{eV}/\text{T}^2$  und  $\gamma_{XX} = 4.1 \mu\text{eV}/\text{T}^2$  dar. Einsatz: diamagnetische Koeffizienten in Abhängigkeit der Energie verschiedener InP QP. Die Linie ist eine Simulation nach Gleichung ( 54 ) (b) Energiepositionen der beiden X – (Quadrate) und XX – Komponenten (Kreise) in Abhängigkeit der magnetischen Flussdichte. Die Linien sind Anpassungen nach Gleichung ( 6 ).

Abbildung 2-2 soll die Polarisation der Komponenten rechts- bzw. linkszirkular sein. Allerdings zeigt das Experiment, dass die die beiden Komponenten nicht vollständig zirkular polarisiert sind. Mögliche Ursachen sind zum einen eine zu geringe Magnetfeldstärke, so dass die jeweiligen FSS-Komponenten noch Mischzustände aus linearen und zirkularen Anteilen sind. Zum anderen kann dies auch messtechnisch bedingt sein, da das PL Signal in diesem Messaufbau über mehrere Spiegel und Strahlteiler zum Monochromator gelenkt wurde und diese zum Teil nicht polarisationserhaltend waren.

Für eine genauere Betrachtung der Energien verdeutlicht Abbildung 4-4 (b) die Energiepositionen der beiden X- und XX-Komponenten als Funktion des angelegten Magnetfeldes. Die jeweils hochenergetischen Linien von X bzw. XX verschieben stärker mit steigendem Magnetfeld, wohingegen die Energien der niederenergetischen Linien annähernd konstant bleiben. Aus der mittleren Energieposition der beiden Komponenten von X bzw. XX berechnet sich die diamagnetische Verschiebung, welche in Abbildung 4-4 (a) gegenüber der quadratischen Magnetfeldstärke aufgetragen ist. Eine lineare Anpassung liefert aus der Steigung für das Exziton eine diamagnetische Verschiebung von  $\gamma_X = 4.3 \mu\text{eV}/\text{T}^2$  und für das Biexziton  $\gamma_{XX} = 4.1 \mu\text{eV}/\text{T}^2$ .

Ein Magnetfeld in Faraday-Konfiguration schränkt die Ladungsträger senkrecht zur Wachstumsrichtung, d. h. in der  $x$ - $y$ -Ebene ein. Dies bedeutet, dass der diamagnetische Koeffizient in Faraday-Geometrie die Ausdehnung der



**Abbildung 4-5:** (a) Berechneter Verlauf des Valenz- und Leitungsbandes, sowie Elektronen- und Lochwellenfunktion eines InP QP mit 2.5 nm Höhe und 10 nm Durchmesser. (b) Emissionsenergie bzw. -wellenlänge in Abhängigkeit des QP-Durchmesser für verschiedene QP-Höhen.

Wellenfunktion in der  $x$ - $y$ -Ebene widerspiegelt. Daraus kann man die „exzitonische“ Größe des QP abschätzen [62]:

$$d = 2\sqrt{\langle \rho^2 \rangle} = 2\sqrt{\gamma \frac{8\mu}{e^2}} \quad (52)$$

Dabei ist  $\mu = (m_f \cdot m_{hh}) / (m_f + m_{hh}) = 0.071 \cdot m_e$  die reduzierte Masse für InP. Für eine diamagnetische Verschiebung von  $\gamma_x = 4.3 \mu\text{eV}/\text{T}^2$  errechnet man für die Ausdehnung in  $x$ - $y$ -Richtung eine exzitonische Größe von  $d = 8 \text{ nm}$ . AFM Untersuchungen ergaben für die geometrische Ausdehnung in  $x$ - $y$ -Richtung in etwa 40 nm [63]. Allerdings beträgt der Exziton-Bohr-Radius von InP im Volumenhalbleiter nur  $r_B = 10.6 \text{ nm}$  [64]. Die durch AFM Messungen bestimmten geometrischen Abmessungen übersteigen den Exziton-Bohr-Radius deutlich. Die Ladungsträgerwellenfunktionen befinden sich in der Wachstumsebene im Bereich des schwachen Einschlusses, was die Beschreibung der Bewegung in der Wachstumsebene durch eine quantisierte Schwerpunktbewegung zulässt [41]. In diesem Fall nimmt die mittlere laterale Ausdehnung der Exziton-Wellenfunktion nur einen Teil des QP-Potentials in der Wachstumsebene ein.

Für eine weitergehende Analyse wurden zu diesen QP zusätzliche Bandstrukturberechnungen mit *NextNano*® angestellt. Die Form der QP wurde als Pyramidenstumpf angenommen, welche auf einer 0.5 nm dicken Benetzungsschicht (WL) sitzen. Das Material von QP und WL ist als reines InP angenommen, das der umgebenden Barriere als  $\text{Ga}_{0.52}\text{In}_{0.48}\text{P}$ . Für Zinkblende-Strukturen bedient sich das Programm einer Datenbank basierend auf Vurgaftman et al. [65]. Exemplarisch ist

der berechnete Verlauf von Valenzband und Leitungsband für einen QP mit einer Höhe von 2.5 nm und einem Durchmesser von 10 nm in Abbildung 4-5 (a) gegenüber der Wachstumsrichtung skizziert. Zusätzlich sind die berechneten Elektronen- und Lochwellenfunktion eingezeichnet (blau).

Die aus dem energetischen Abstand von Elektronen- und Lochwellenfunktion berechneten Emissionsenergien sind in Abbildung 4-5 (b) in Abhängigkeit des Durchmessers für verschiedene QP-Höhen aufgetragen. Auf Basis der Messungen im Magnetfeld wurde ein Durchmesser von 8 nm berechnet. Für eine Emissionsenergie von 1.91 eV erwartet man dafür eine QP-Höhe von  $\sim 3$  nm. Für die gleiche Emissionsenergie von 1.91 eV und einer QP-Höhe von nur 2 nm, wie aus den AFM Untersuchungen hervorgeht, erwartet man einen QP Durchmesser von 10.5 nm. Aus den AFM Untersuchungen erhält man außerdem einen lateralen Durchmesser von 40nm. Danach müsste für eine Emissionsenergie von 1.91 eV die QP Höhe kleiner als 1 nm sein. Dies bekräftigt, dass die Wellenfunktion in der Ebene stark eingeschränkt ist und nicht die volle geometrische Größe des QP einnimmt.

Im Einsatz von Abbildung 4-4 (a) sind diamagnetischen Koeffizienten für Faraday-Konfiguration verschiedener InP QP in Abhängigkeit der Emissions-energie gezeigt. Folgendes Modell beschreibt den Zusammenhang des diamagnetischen Koeffizienten mit der Emissionsenergie. Die Exzitonenergie eines sphärischen QP mit dem Radius  $r$  kann beschrieben werden durch [62]:

$$E = E_B + \frac{\hbar^2 \pi^2}{2\mu r^2} \quad (53)$$

wobei  $E_B$  die Energielücke von InP und  $\mu$  die reduzierte Masse ist. Unter Annahme, dass der effektive Exziton-Radius vergleichbar ist mit der QP Größe, erhält man für den diamagnetischen Koeffizienten:

$$\gamma \cong \frac{\delta}{E - E_B} \quad (54)$$

Dabei ist  $\delta = (\hbar e \pi / 4 \mu)^2$ . Der berechnete Verlauf des diamagnetischen Koeffizienten in Abhängigkeit der Emissionsenergie ist als Linie ebenfalls im Einsatz von Abbildung 4-4 dargestellt. Zusätzlich sind diamagnetischen Koeffizienten anderer InP QP mit eingezeichnet (aus [62, 66]), sowie weitere 5 Koeffizienten der hier untersuchten Probe (blaue Sterne). Diese einfache Abschätzung beschreibt den Zusammenhang von diamagnetischen Koeffizienten und Emissionsenergie sehr gut.

Zur Bestimmung des effektiven g-Faktors sind die Energiepositionen aus den Anpassungen der jeweils beiden Exziton-(Quadrate) bzw. Biexziton-Lumineszenzlinien (Kreise) als Funktion des angelegten Magnetfeldes in Abbildung

4-4 (b) dargestellt. Die durchgezogenen Linien in Abbildung 4-4 (b) sind Simulationen nach der Gleichung (6) aus Kapitel 2.1 mit folgenden Parametern:

$$X: \quad E_0 = 1.9118\text{eV}, \Delta E_{FSS} = 180\mu\text{eV}, \gamma_X = 4.3\mu\frac{\text{eV}}{\text{T}^2}, g_{eff} = 1.23 \quad (55)$$

$$XX: \quad E_0 = 1.9099\text{eV}, \Delta E_{FSS} = 190\mu\text{eV}, \gamma_{XX} = 4.1\mu\frac{\text{eV}}{\text{T}^2}, g_{eff} = 1.22 \quad (56)$$

Die Werte für  $E_0$  und  $\Delta E_{FSS}$  sind aus den  $\mu\text{PL}$  Messungen vorgegeben. Die diamagnetischen Verschiebungen  $\gamma_{X,XX}$  wurden durch lineare Anpassung in Abbildung 4-4 (a) bestimmt. Somit ist  $g_{eff}$  der einzig verbleibende Anpassungsparameter. Die hier bestimmten Werte von  $g_{eff} = 1.23$  bzw.  $g_{eff} = 1.22$  liegen in der Größenordnung von z. B. MOVPE gewachsenen InP/GaInP QP, wo ein effektiver  $g$ -Faktor von  $g_{eff} = 1.35$  publiziert wurde [67].

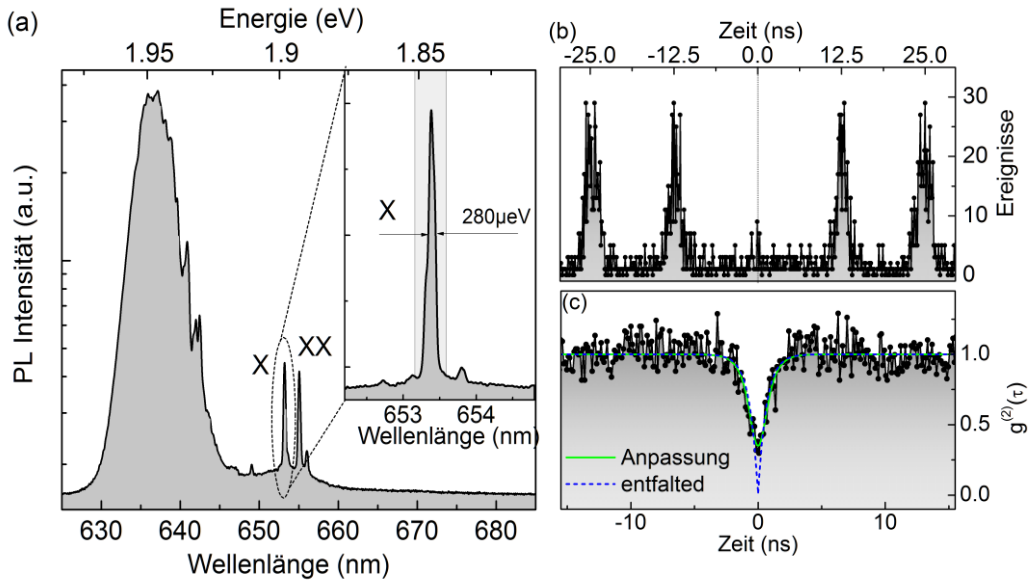
---

#### 4.1.4 Autokorrelationsmessung spektral isolierter InP QP

---

Im folgenden Abschnitt werden die InP QP auf ihre zeitliche Photonstatistik hin getestet. Dafür wird an einem einzelnen QP-Exziton mit einem HBT-Messaufbau die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung bestimmt. In Abbildung 4-6 (a) ist ein breitbandiges PL Spektrum der Probe gezeigt. Neben der Lumineszenz der GaInP Barriere bei 635 nm sind zwei einzelne, spektral getrennte QP-Emissionslinien bei 653.5 nm und 655 nm zu sehen. Für die Autokorrelationsmessung wird das Spektrum auf den seitlichen Ausgangspalt des Monochromators abgebildet. Die Variation der Spaltbreite am Ausgang ermöglicht die spektrale Selektierung der Lumineszenzlinien, wie im Einsatz von Abbildung 4-6 (a) durch den grau hinterlegten Bereich angedeutet ist. Das Lumineszenzsignal wird über zwei Linsen in einen HBT-Aufbau eingekoppelt, wie in Abschnitt 3.4 beschrieben.

Die zugehörigen Histogramme der Autokorrelationsmessungen unter gepulster sowie unter Dauerstrich-Anregung sind in Abbildung 4-6 (b) und (c) dargestellt. In beiden Fällen ist eine ausgeprägte Unterdrückung der Ereignisse bei  $t = 0$  ns zu erkennen. Um die Einzelphotonenemission zu quantifizieren, werden im Falle von gepulster Anregung die Anzahl der Ereignisse um  $t = 0$  ns mit einer Breite von  $\pm 6.25$  ns gezählt und mit der Anzahl bei einem Vielfachen der inversen Anregungsfrequenz verglichen. Bei der Messung lag Anregungsfrequenz bei 80 MHz, d. h. die Pulse sind bei einem Vielfachen von  $(12.5 \pm 6.25)$  ns. Im Bereich um 0 ns zählt man hier 97 Ereignisse und bei den anderen Pulsen sind es im Mittel 512 Ereignisse. Daraus errechnet man einen Wert von  $g^{(2)}(0) = 0.19 \pm 0.08$ . Der Wert ist deutlich kleiner als 0.5, was die Grenze für das Einzelphotonenregime darstellt.



**Abbildung 4-6:** (a) PL Spektrum für Autokorrelationsmessungen. Einsatz: Vergrößerung eines QP-Exzitons mit einer FWHM von  $280 \mu\text{eV}$ . Der hellgraue unterlegte Bereich entspricht dem spektralen Ausschnitt am Ausgangsspalt. Histogramm der Autokorrelationsmessung für (b) gepulste Anregung und (c) unter Dauerstrich-Anregung. Hier sind zusätzlich eine Anpassung nach ( 61 ) (grün) und mit Entfaltung nach ( 62 ) (blau, gestrichelt) dargestellt.

Anhand des  $g^{(2)}(0)$ -Wert lässt sich auch die Einzelphotonen-Emissionsrate dieses QP-Exzitons abschätzen. Die Gesamteffizienz des Messaufbaus setzt sich zusammen aus der Transmission aller Linsen, der Reflektivität der Spiegel, der Gittereffizienz und der Detektionseffizienz der APDs und beträgt insgesamt  $\eta_s = 1.41 \cdot 10^{-3}$ . Dieser Wert wurde experimentell bestimmt und liegt in der Größenordnung von anderen Werten ähnlicher Versuchsaufbauten, welche eine Effizienz von  $\eta_s = 1.2 \cdot 10^{-3}$  berichteten [68]. Während der Autokorrelationsmessung betrug die Zählrate an jeder APD jeweils  $n_{APD} = 2.5 \cdot 10^3$  Photonen/s. Daraus errechnet man eine Einzelphotonenemissionsrate von:

$$n_{SPS} = \frac{n_{APD}}{\eta_s} * \sqrt{1 - g^{(2)}(0)} = 1.55 \text{ MHz} \quad (57)$$

Berücksichtigt man die Anregungsfrequenz des Lasers von 80 MHz, so erhält man eine Effizienz für die Emission von einzelnen Photonen von:

$$\eta = \frac{n_{SPS}}{f_{Laser}} = 1.9 \% \quad (58)$$

Dieser Wert ist deutlich kleiner als maximal bekannte Werte von z. B. Claudon et al., welche eine Effizienz von 72 % unter optischer Anregung publizierten [68]. Allerdings wurde diese an InAs QP in photonischen Drähten aus

GaAs gemessen, welche eine deutlich bessere Auskoppel-effizienz der Photonen haben als die hier verwendete planare Strukturen.

Die maximale Auskoppel-effizienz bei planaren Strukturen kann wie folgt abgeschätzt werden: Der kritische Winkel für die Totalreflexion an einem Übergang von einem optisch dichten zu einem optisch dünnen Medium beträgt

$$\Theta = \arcsin\left(\frac{n_2}{n_1}\right) \quad (59)$$

wobei  $n_1$  ( $n_2$ ) der Brechungsindex des optisch dichteren (dünnere)n Mediums ist. Für den Übergang von GaInP/Luft ist  $\Theta \cong 16.6^\circ$  mit  $n_1 = 3.5$  und  $n_2 = 1$ . Im 3D-Raum entspricht die maximale Auskoppel-effizienz dem Unterschied eines Kegelvolumens mit dem Öffnungswinkel  $\Theta$  zu dem gesamten Kugelvolumen bei isotroper Abstrahlung. Unter Vernachlässigung interner Reflexionen an den Grenzflächen kann die maximale Auskoppel-effizienz von einem Photonenemitter in GaInP beim Übergang zu Luft abgeschätzt werden zu

$$\eta_{max} = \frac{1}{4} \cos\Theta \cdot \sin^2\Theta = 2.0 \% \quad (60)$$

Die experimentell ermittelte Einzelphotoneneffizienz von 1.9 % ist nur geringfügig schlechter, was eine entsprechend hohe interne Quanteneffizienz bedeutet. Durch Verwendung von z. B. photonischen Strukturen zur Steigerung der Auskoppel-effizienz könnte die Einzelphotonenemissionsrate somit signifikant gesteigert werden.

Für eine Quantifizierung von  $g^{(2)}(0)$  unter Dauerstrichanregung kann die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung genähert werden durch [69]:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - [1 - g^{(2)}(0)] \cdot e^{-\tau/t} \quad (61)$$

Hierbei ist  $\tau = (\Gamma + W_P)^{-1}$  mit  $\Gamma$  der spontanen Emissionsrate und  $W_P$  der effektiven Pumprate.

Abbildung 4-6 (c) zeigt ein Histogramm einer Autokorrelationsmessung unter Dauerstrichanregung. Aus der Anpassung der Messdaten mit Gleichung ( 61 ) erhält man für die Zeitkonstante einen Wert von  $\tau = (860 \pm 85)$  ps und einen Wert von  $g^{(2)}(0) = 0.209 \pm 0.054$ , was in Abbildung 4-6 (c) als grüne Linie dargestellt ist. Dieser Wert für  $g^{(2)}(0)$  ist vergleichbar mit dem Wert unter gepulster Anregung und ebenfalls unterhalb von 0.5, der Grenze für das Regime der Einzelphotonen-Emission.

Für den Fall der Dauerstrichanregung kann der Wert aufgrund der endlichen Zeitaufösung der APDs noch durch eine Entfaltung korrigiert werden. Die zeitliche Auflösungsgrenze der APDs beträgt laut technischen Spezifikationen in etwa 450 ps. Der experimentell ermittelte Wert entspricht daher einer Faltung zwischen dem



reellen Wert und der Antwortfunktion des Messaufbaus. Für die Instrumentenfunktion wird eine Gauß-Funktion der Breite  $2\sigma = t_{\text{Auflösung}}$  angenommen, so dass Messwert durch eine Faltung gegeben ist:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau' g^{(2)}(\tau - \tau') \cdot e^{-\frac{\tau'^2}{2\sigma^2}} \quad (62)$$

Umgekehrt erhält man den reellen Wert durch Entfaltung der Messdaten mit der Gauß-Funktion. Die entfaltete Funktion ist als blaue, gestrichelte Linie ebenfalls in Abbildung 4-6 (c) dargestellt. Für diesen Fall erhält man einen theoretischen Wert von  $g^{(2)}(0) = 0$ , was dem einer idealen Einzelphotonenquelle entspricht.

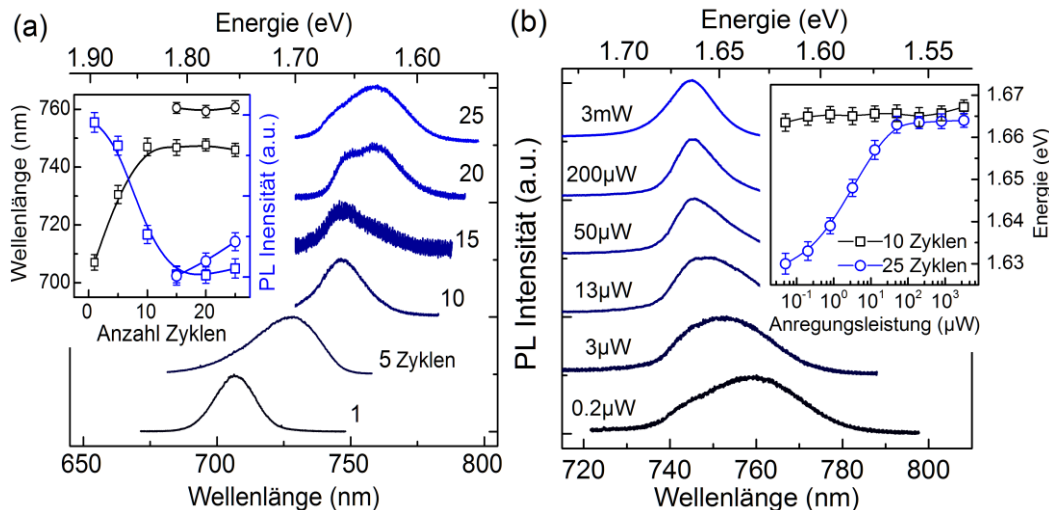
## 4.2 Sequentiell gewachsene InP Quantenpunkte

Im folgenden Abschnitt werden nun PL-Messungen für Proben mit stark reduzierter QP-Dichte präsentiert, bei denen ein sequentieller Wachstumsprozess angewendet wurde. Es wird untersucht, inwieweit sich die Eigenschaften dieser QP von den zuvor untersuchten QP unterscheiden.

### 4.2.1 Zeitintegrierte Ensemble-Messungen

In Abbildung 4-7 (a) sind die Makro-PL Spektren von sechs verschiedenen Proben mit variierender Anzahl an Wachstumszyklen gezeigt. Die morphologischen und wachstumsspezifischen Informationen zu den Proben sind im Anhang wiedergegeben. Aus Gründen einer besseren Übersicht sind die Spektren jeweils auf eins normiert und vertikal zueinander versetzt. Um Anregungen höherer Zustände zu vermeiden wurde eine geringe Anregungsleistung von  $P = 0.2 \mu\text{W}$  gewählt. Das Spektrum der Probe, welche mit nur einen Zyklus gewachsen wurde, zeigt einen typischen Verlauf eines QP-Ensemble mit einer gaussförmigen Verteilungsfunktion bei einer mittleren Wellenlänge von 708 nm. Mit steigender Anzahl von Wachstumszyklen tritt eine deutliche Rotverschiebung der Lumineszenz auf.

Wie anhand von AFM Untersuchungen im Anhang gezeigt ist, nimmt die Größe der QP mit wachsender Zyklenanzahl zu (vgl. Abbildung A-3). Dies resultiert in einer Absenkung der Quantisierungsenergie und führt zu einer Rotverschiebung der Lumineszenz. Bei Proben mit mehr als 15 Wachstumszyklen geht die einfache Gaußverteilung in eine bimodale Verteilung über. Im Einsatz von Abbildung 4-7 (a) sind zum einen die mittleren Wellenlängen der Lumineszenzmaxima als schwarze Quadrate für die Variation der Wachstumszyklen aufgetragen. Für Proben mit mehr als 15 Wachstumszyklen sind entsprechend den beiden Lumineszenzpeaks auch



**Abbildung 4-7:** (a) Normierte PL Spektren der jeweiligen Proben mit variierender Anzahl an Wachstumszyklen. Einsatz: Wellenlänge und Intensität der Lumineszenzmaxima in Abhängigkeit der Anzahl an Wachstumszyklen. (b) Normierte PL Spektren der Probe mit 25 Zyklen mit steigender Anregungsleistungen. Einsatz: Max. PL Energieposition als Funktion der Anregungsleistung für 10 Zyklen (schwarz) und 25 Zyklen (blau).

zwei Punkte abgebildet. Zusätzlich ist im Einsatz auch die Intensität der Lumineszenz der jeweiligen QP-Ensemble als Funktion der Zyklenanzahl gezeigt. Diese nimmt zunächst im Bereich von einem Zyklus bis 15 Zyklen mit steigender Anzahl ab. Bei mehr als 15 Wachstumszyklen nimmt die Intensität des zweiten, langwelligen Peaks hingegen wieder zu.

Abbildung 4-7 (b) zeigt Spektren einer Leistungsserie der Probe, welche mit 25 Zyklen gewachsen wurde. Aus Gründen der Übersicht sind die Spektren ebenfalls auf eins normiert und vertikal zueinander verschoben. Für kleine Anregungsleistungen entspricht der Verlauf, wie in Abbildung 4-7 (a), einer bimodalen Gaußverteilung, wobei das Maximum auf der langwelligen Seite bei einer Wellenlänge von 760 nm liegt. Mit Erhöhung der Anregungsleistung geht die bimodale Verteilung immer stärker in eine einfache Gaussverteilung mit einer mittleren Wellenlänge von 745 nm über. Im Einsatz von Abbildung 4-7 (b) sind die maximalen PL-Energiepositionen der Probe mit 10 Wachstumszyklen (schwarze Quadrate) und 25 Wachstumszyklen (blaue Kreise) als Funktion der Anregungsleistung in halblogarithmischer Darstellung aufgetragen. Es ist klar ersichtlich, dass das Maximum der Lumineszenz von der Probe mit 25 Zyklen mit steigender Anregungsleistung um 35 meV hin zu größeren Energien verschiebt, während die PL-Energie der Probe mit 10 Zyklen über den gesamten Bereich der Variation der Anregungsleistung nahezu konstant bleibt. Einen ähnlich konstanten Verlauf der maximalen Energieposition zeigen auch die Proben welche mit einem bzw. fünf Wachstumszyklen hergestellt wurden, was hier nicht explizit dargestellt ist.

Dies lässt sich durch einen Übergang zwischen verschiedenen QP-Typen erklären. Typ-II QP, bei denen Elektronen im QP und Löcher in der umgebenden Barriere eingeschlossen sind, schieben mit steigender Anregungsleistung typisch in Richtung blau, was man für schwach verspannte InP/GaInP QP erwartet [70]. Für große Anregungsleistungen kommt es zu Bandverbiegungen am Übergang zu den QP, was zu einer Verschiebung der Elektronen- und Lochzustände und schließlich in einer Typ-I Bandanordnung resultiert [71]. Die deutliche Abhängigkeit der PL-Energie von der Anregungsleistung bei der Probe mit 25 Zyklen deutet auf die Existenz von zwei QP-Verteilungen hin. Dabei kann die höherenergetische PL den Typ-I QP zugeordnet werden, welche bei größeren Anregungsleistungen dominant ist. Die Blauverschiebung von 35 meV ist vergleichbar mit den Literaturwerten von z. B. Typ-II InSb/GaAs von 50 meV oder GaSb/GaAs von 22 meV, wobei die Anregungsleistung ebenfalls in vier Größenordnungen variiert wurde [72].

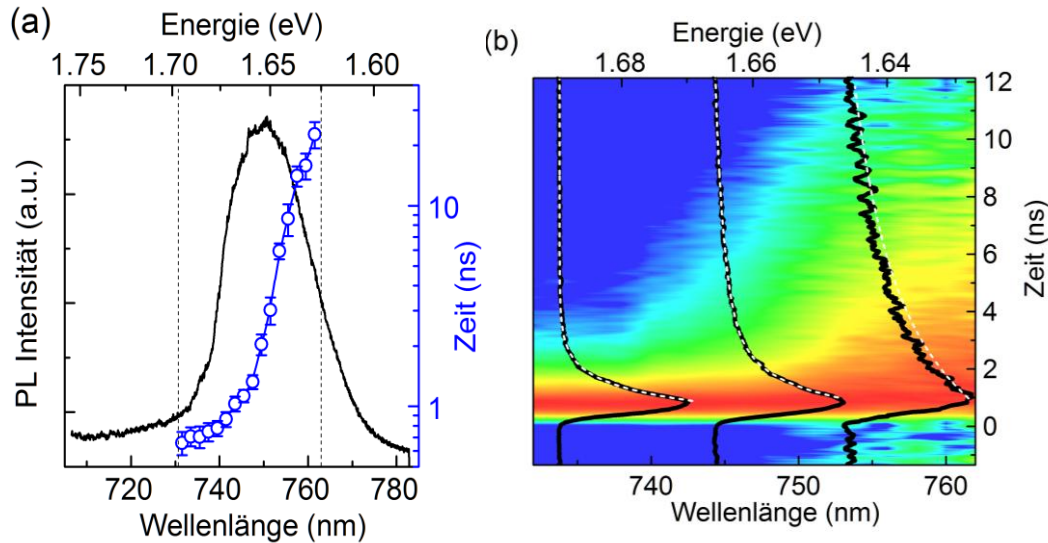
---

#### 4.2.2 Zeitaufgelöste Ensemble-Messungen

---

Für die Charakterisierung von dynamischen Prozessen der QP wurden zusätzlich zu den zeitintegrierten auch zeitaufgelöste Messungen am QP Ensemble durchgeführt. An der Probe mit 25 Wachstumszyklen wurden dafür die Zerfallszeiten in Abhängigkeit der Emissionswellenlänge gemessen.

Zur Orientierung ist in Abbildung 4-8 (a) zunächst das PL Spektrum der Probe dargestellt (schwarze Linie). Für Wellenlängen im Bereich von 730 nm bis 765 nm wurde die dynamische Entwicklung des PL Signals gemessen. Der gesamte Zusammenhang ist als Energie-Zeit-Diagramm in Abbildung 4-8 (b) wiedergegeben. Dabei stellen blaue Bereiche eine geringe Intensität und rote Bereiche eine hohe Intensität dar. Zusätzlich sind in Abbildung 4-8 (b) drei experimentell bestimmte Zerfallkurven (schwarz) und die zugehörigen exponentiellen Anpassungen (weiß, gestrichelt) gezeigt. Wie aus der Farbcodierung ersichtlich, ist für kleine Wellenlängen zwischen 730 nm und 745 nm die Rekombinationszeit der QP klein und nimmt für Wellenlängen  $> 745$  nm deutlich zu. Die aus den Anpassungen gewonnenen Rekombinationszeiten sind als Funktion der Emissionswellenlänge ebenfalls in Abbildung 4-8 (a) als blaue Punkte mit logarithmischer Skalierung aufgetragen.



**Abbildung 4-8:** (a) PL Spektrum (schwarz) und ermittelte Zerfallszeiten (blau) für die Probe hergestellt mit 25 Wachstumszyklen. (b) Konturdarstellung der QP Dynamik für verschiedene Wellenlängen. Mit steigender Wellenlänge nimmt die Zerfallszeit deutlich zu. Schwarze Linien entsprechen experimentellen Zerfallskurven der jeweiligen Wellenlänge. Zusätzlich sind die zugehörigen exponentiellen Anpassungen (weiß, gestrichelt) gezeigt.

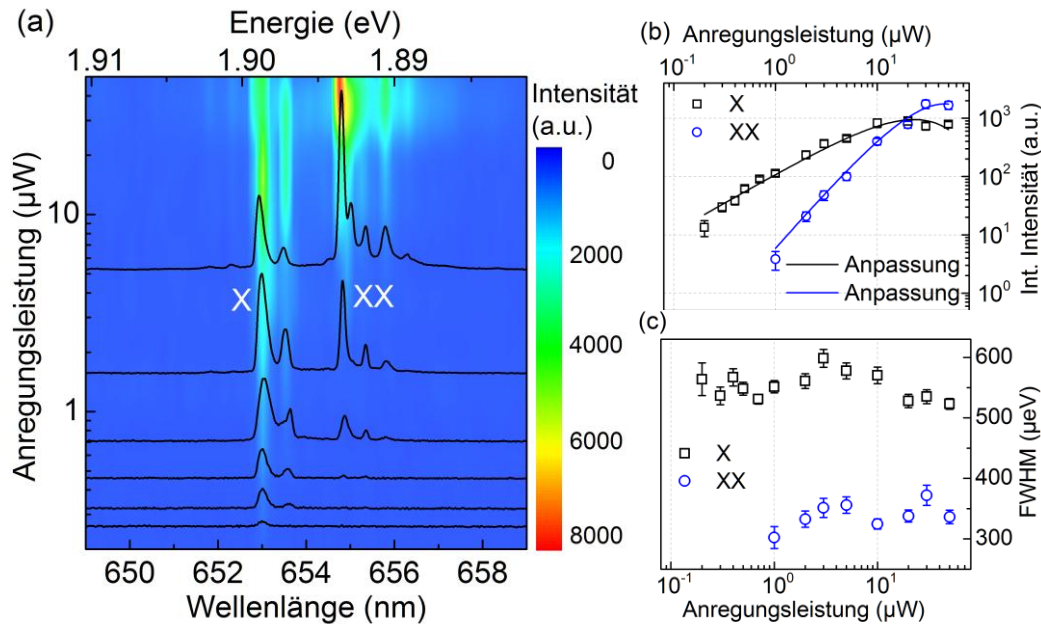
Da die Messungen bei einer niedrigen Antriebsleistung von nur  $3 \mu\text{W}$  durchgeführt wurden, ist keine Emission von höher angeregten Zuständen zu erwarten und die Emissionswellenlänge hängt nur von der Größe der QP ab. Besonders bei Typ-II QP nimmt die räumliche Separation von Elektron- und Lochwellenfunktion mit größerer geometrischer Ausdehnung zu, was eine Abnahme der Oszillatorstärke und daraus eine Zunahme der Zerfallszeit bewirkt. Dies bestätigt die bimodale Verteilung der QP, wobei für Wellenlängen  $< 745 \text{ nm}$  ein Typ-I Bandverlauf und für Wellenlängen  $> 745 \text{ nm}$  ein Typ-II Bandverlauf vorherrscht. Für die Proben mit weniger als 10 Wachstumszyklen und nur Typ-I Bandverlauf ändert sich die Zerfallszeit nur wenig zwischen  $1.1 \text{ ns}$  bis  $1.3 \text{ ns}$  für den vergleichbaren Bereich der QP-Emission. Dies ist konsistent mit den antriebsleistungsabhängigen Messungen aus dem vorangegangenen Abschnitt.

#### 4.2.3 $\mu\text{PL}$ versus Antriebsleistung

Nun wird der Fokus wieder auf einzelne, isolierte QP gelegt. Aufgrund von Elektronen-Akkumulation haben große QP typischerweise eine Linienbreite von mehr als  $1 \text{ meV}$  [73]. Deshalb wurden die Untersuchungen von einzelnen QP an der Probe mit 25 Zyklen für Wellenlängen  $\ll 745 \text{ nm}$  durchgeführt, was kleinen QP mit

einem Typ-I Bandverlauf entspricht. Zusätzlich besitzt die Probe mit 25 Zyklen die geringste QP-Dichte, was die räumliche Selektion vereinfacht. Im Gegensatz zu den zuvor untersuchten InP QP, welche mit ultralangsamem Wachstumsraten hergestellt wurden und eine äußerst geringe Dichte von nur  $1 \text{ QD}/\mu\text{m}^2$  haben, lag die QP-Dichte in diesem Fall etwa bei etwa  $20 \text{ QP}/\text{cm}^2$ . Dies ist im Vergleich zu „normal“ gewachsenen InP QP, welche typisch eine QP-Dichte von  $100 \text{ QD}/\mu\text{m}^2$  haben, immer noch deutlich geringer, aber für Untersuchung einzelner QP nur mittels Nahfeld- $\mu\text{PL}$  zu hoch. Deshalb wurde Mesaen zwischen  $100 \text{ nm}$  und  $1 \mu\text{m}$  Durchmesser in die Probe strukturiert, um einzelne QP spektral isoliert analysieren zu können.

Abbildung 4-9 (a) zeigt eine Serie für steigende Anregungsleistung eines einzelnen QP in Konturdarstellung. Blaue Bereiche entsprechen wenig PL Intensität und rote Bereiche hoher Intensität. Die Messung wurde an einer Mesa mit einem Durchmesser von  $300 \text{ nm}$  durchgeführt. Zur Verdeutlichung sind in Abbildung 4-9 (a) zusätzlich mehrere  $\mu\text{PL}$ -Spektren für verschiedene Anregungsleistungen gezeigt. Für eine geringe Anregungsleistung  $< 1 \mu\text{W}$  ist zunächst nur eine Emissionslinie bei einer Wellenlänge von  $653 \text{ nm}$  zu erkennen, welche dem Exziton (X) zugeordnet wird. Die Halbwertsbreite dieser Emissionslinie beträgt  $560 \mu\text{eV}$ . Im Gegensatz zu den QP mit ultralangsamem Wachstumsraten, wo mit steigender Anregungsleistung die Linienbreite zunimmt, ist die FWHM von X über den gesamten Bereich der variierenden Anregungsleistung nahezu konstant. Abbildung 4-9 (c) verdeutlicht dies, in dem die ermittelten Werte der FWHM gegenüber der Anregungsleistung aufgetragen sind. Außerdem ist die Lumineszenzlinien verglichen mit den ultralangsam gewachsenen QP mit einer FWHM von nur  $\sim 75 \mu\text{eV}$  merklich breiter.



**Abbildung 4-9:** (a)  $\mu$ PL Serie in Abhängigkeit der Anregungsleistung eines einzelnen QP in Konturdarstellung. Blaue Bereiche entsprechen geringe PL Intensität und rote Bereiche hohe PL Intensität. Zusätzlich sind sechs Spektren für verschiedene Anregungsleistungen dargestellt. Integrierte Intensität (b) und FWHM (c) von Exziton (X, schwarz) und Biexziton (XX, blau) als Funktion der Anregungsleistung. Die Linien in (b) entsprechen Anpassungen mit den Exponenten eins (X) und zwei (XX) nach dem Ratenmodell (50).

Mit zunehmender Anregungsleistung werden weitere Lumineszenzlinien bei größeren Wellenlängen sichtbar, zunächst bei 653.5 nm und mit weiter steigender Anregungsleistung auch bei 655 nm, 655.3 nm und 655.8 nm. Interessant ist die Linie bei 655 nm, bei der die Intensität mit steigender Anregungsleistung offensichtlich stärker zunimmt und für hohe Anregungsleistungen  $> 10 \mu\text{W}$  die deutlich intensivste Lumineszenz zeigt. Diese hat eine Halbwertsbreite von  $305 \mu\text{eV}$ , was nur etwa halb so breit ist wie die Exziton-Emissionslinie. Diese kann dem Biexziton (XX) zugeordnet werden. Auch hier ist die Halbwertsbreite über den gesamten Bereich annähernd konstant, wie in Abbildung 4-9 (c) zu erkennen ist.

Um die Zuordnung der jeweiligen Lumineszenz-Linien zu verifizieren, ist die integrierte Intensität von X und XX als Funktion der Anregungsleistung in Abbildung 4-9 (b) in doppellogarithmische Darstellung aufgetragen. Wie zu erwarten, zeigt das Exziton zunächst einen nahezu linearen Anstieg der Intensität mit steigender Anregungsleistung und geht für große Leistungen ab  $10 \mu\text{W}$  in Sättigung über. Das Biexziton dagegen hat einen etwa doppelt so starken Anstieg der Intensität mit zunehmender Anregungsleistung. Analog zu Abschnitt 4.1 kann der leistungsabhängige Intensitätsverlauf nach einem Ratenmodell und

entsprechenden Poisson-Verteilungen beschrieben werden. Die zugehörigen Anpassungen nach Gleichung ( 50 ) mit den Exponenten eins ( $X$ ) und zwei ( $XX$ ) sind ebenfalls in Abbildung 4-9 (b) als Linien gezeichnet.

Interessant ist, dass die Linienbreite von  $XX$  etwa doppelt so breit ist wie von  $X$ . Dies wurde auch von Zwiller et al. an InP QP mittels Fourier-Spektroskopie beobachtet [74]. Im Vergleich zu den InP QP aus Abschnitt 4.1 mit Linienbreiten um  $75 \mu\text{eV}$  sind die Linienbreiten hier deutlich breiter. Eine mögliche Ursache liegt in der Größe der QP. Aufgrund von mehr Elektronen in den QP führt dies zu kürzeren Dephasierungszeiten und zu einer stärkeren Verbreiterung der Emissionslinien [73].

Die weiteren Linien im  $\mu\text{PL}$ -Spektrum können entweder geladene Exziton-Zustände oder die Lumineszenz von weiteren QP sein. Persson et al. beobachteten einen deutlichen Unterschied im spektralen Verlauf für verschiedene InP QP anhand der Lage der Fermi-Energie zu Elektronen-Grundzustandsenergie [49]. Liegt die Fermi-Energie unterhalb der Grundzustandsenergie so sind die QP geladen und mit steigender Anregungsleistung nehmen die Anzahl der Lumineszenzlinien deutlich zu. Diese QP haben einen ähnlichen spektralen Verlauf wie die hier untersuchten QP. Dies lässt vermuten, dass es sich hier um geladene Zustände handelt.

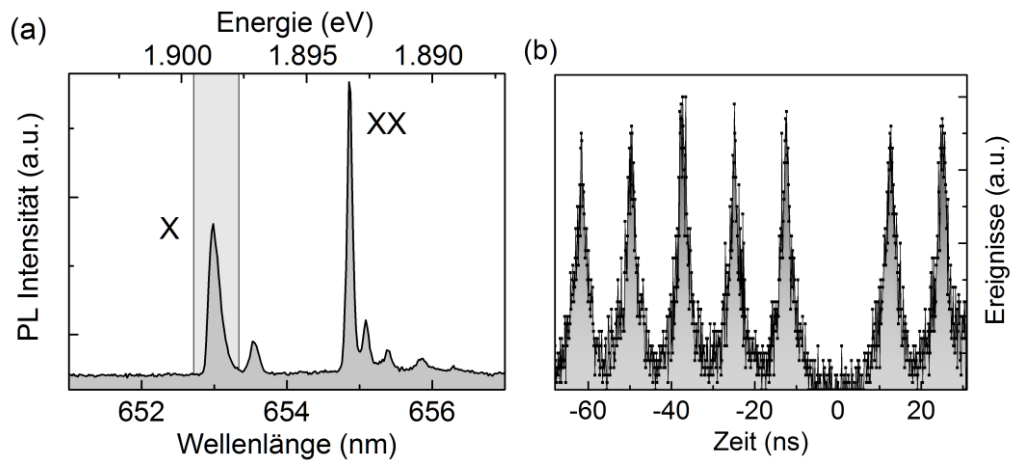
---

#### 4.2.4 Autokorrelation eines einzelnen QP

---

Abschließend wird auch hier die zeitliche Emissionscharakteristik einzelner QP näher betrachtet, in dem Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung angestellt wurden. In Abbildung 4-10 (a) ist das  $\mu\text{PL}$  Spektrum des zuvor charakterisierten QP unter gepulster Anregung dargestellt. Der hellgrau unterlegte Bereich deutet die spektrale Filterung für die Korrelationsmessung an. Abbildung 4-10 (b) zeigt das zugehörige Histogramm der Autokorrelationsmessung. Es ist eine signifikante Unterdrückung der Koinzidenz-Ereignisse bei  $t = 0 \text{ ns}$  zu erkennen. Allerdings sind die Peaks in dem Histogramm breiter als die Repetitionsrate von  $80 \text{ MHz}$  und überlagern sich zum Teil. Die Auswertung erfolgt analog zu Abschnitt 4.1 durch Zählen der Ereignisse im Zeitintervall von  $12.5 \text{ ns}$  ( $1/80 \text{ MHz}$ ) um den jeweiligen Peak. Man errechnet daraus einen Wert für  $g^{(2)}(0)$  von  $0.11 \pm 0.09$ . Dieser kleine  $g^{(2)}(0)$ -Wert deutet auf eine hohen Qualität und Isolation des QP hin.

Analog zu Abschnitt 4.1 wird auch hier die Effizienz der Einzelphotonenemission mit den Gleichungen ( 57 ) und ( 58 ) abgeschätzt. Während der Autokorrelationsmessung betrug die Zählrate an jeder APD jeweils  $n_{\text{APD}} = 4.6 \cdot 10^3 \text{ Photonen/s}$ , woraus man eine Einzelphotonenemissionsrate von  $2.97 \text{ MHz}$  errechnet. Berücksichtigt man die Anregungsfrequenz des Lasers von  $80 \text{ MHz}$ , so liegt die Effizienz für die Emission von einzelnen Photonen bei  $3.7 \%$ .



**Abbildung 4-10:** (a)  $\mu$ PL Spektrum eines QP mit zugehörigen Exziton (X) und Biexziton (XX) Emissionslinien. Der hellgrau unterlegte Bereich stellt die spektrale Filterung während der Autokorrelationsmessung dar. (b) Histogramm der Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung unter gepulster Anregung. Es ist eine deutliche Unterdrückung der Ereignisse bei 0 ns zu erkennen.

In Abschnitt 4.1 wurde für planare Proben unter der Annahme, dass die Probe unendlich ausgedehnt ist und es zu keinen Reflexion an der Rückseite kommt, eine maximale Auskoppelleffizienz von  $\sim 2\%$  abgeschätzt. Bei dieser Probe hingegen wurden kleine Türmchen für eine räumliche Selektion der QP in die Struktur geätzt. So kommt es, ähnlich wie bei Mikrosäulenresonatoren, an den Seitenwänden und der Rückseite zu internen (Total-)Reflexionen, wodurch mehr Photonen an die Oberfläche reflektiert werden. Somit steigt die Auskoppelleffizienz an und kann  $2\%$  überschreiten.



## 5 Spektroskopie von Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren

*Für eine bessere Lichtauskopplung verbunden mit der Untersuchung von Licht-Materie-Wechselwirkungseffekten wurden sequentiell gewachsene QP in Mikrosäulenresonatorstrukturen eingebettet.*

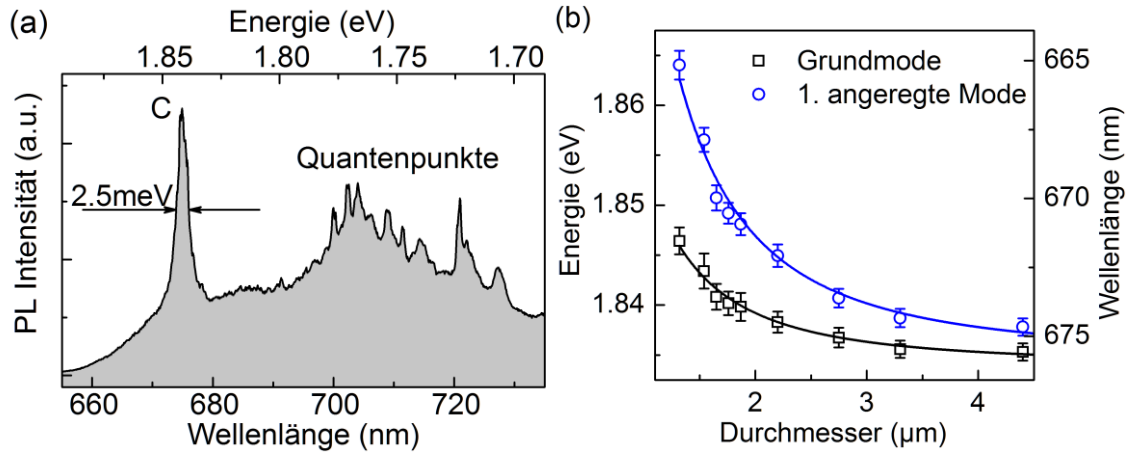
*In Abschnitt 5.1 werden zunächst grundlegende Charakterisierungen der integrierten QP unter optischer Anregung präsentiert. Dabei wird die Emissionsenergie in Abhängigkeit der Geometrie der Mikrosäulenresonatoren näher untersucht. Anschließend wird im Regime der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung eine Erhöhung der Lumineszenz-Intensität basierend auf dem Purcell-Effekt nachgewiesen. Zusätzlich wird im Regime der schwachen Kopplung die Emission einzelner Photonen anhand von Autokorrelationsmessungen bestätigt.*

*Darauf folgend werden in Abschnitt 5.2 die Untersuchungen berichtet, in denen QP in den Mikrosäulenresonatoren elektrisch angeregt und charakterisiert wurden. Zunächst wird die Emission eines Exziton-Biexziton Paares unter elektrischer Anregung untersucht, bevor durch Temperaturverstimmung die schwache Wechselwirkung verbunden mit einer Überhöhung der Lumineszenz aufgrund des Purcell-Effektes demonstriert wird. Den Abschluss bilden Autokorrelationsmessungen für den Nachweis von Einzelphotonenemission unter elektrischer Anregung.*

### 5.1 Optische Charakterisierung

Nun folgend werden fertig prozessierte Mikrotürmchen zunächst mittels Photolumineszenz und anschließend auch Elektrolumineszenz-Techniken charakterisiert. Die relevanten Schritte für Wachstum und Prozessierung von Mikrosäulenresonatoren mit InP QP in einer GaInP Kavität sind im Anhang aufgeführt.

Abbildung 5-1 zeigt exemplarisch ein  $\mu$ PL-Spektrum eines Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von 1.8  $\mu\text{m}$ . Für die Anregung wurde ein frequenzverdoppelter Nd:YAG Festkörperlaser mit einer Wellenlänge von 532 nm verwendet, da die Absorption der DBRs für die zuvor verwendete 375 nm GaN-Laserdiode zu groß war und keine Anregung der QP möglich war. Im Spektrum kann bei einer Wellenlänge von 675 nm ( $\cong 1.84$  eV) die Grundmode der GaInP-



**Abbildung 5-1:** (a)  $\mu$ PL Spektrum eines Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $1.8 \mu\text{m}$ . Bei einer Wellenlänge von  $675 \text{ nm}$  ist die Kavitätsmode mit einer Halbwertsbreite von  $2.5 \text{ meV}$  zu erkennen. Im langwelligen Bereich zwischen  $690 \text{ nm}$  und  $730 \text{ nm}$  liegt die Lumineszenz der QP. (b) Modenenergie der Grundmode (schwarz) und der ersten angeregten Mode (blau) in Abhängigkeit des Durchmessers. Die Linien sind entsprechende Simulationen nach Gleichung ( 15 ).

Kavität mit einer Halbwertsbreite von  $\sim 2.5 \text{ meV}$  erkannt werden. Nach Gleichung ( 16 ) entspricht dies einem Q-Faktor von etwa 740. Reflexionsmessungen an der planaren Struktur ergaben für den Q-Faktor Werte von etwa 770. Dies deutet darauf hin, dass die intrinsischen und extrinsischen Verluste dominanter sind als die Verluste durch Streuung an den geätzten Seitenwänden.

Auf der langwelligen Seite des Spektrums zwischen  $690 \text{ nm}$  und  $730 \text{ nm}$  liegt die Lumineszenz der InP QP. Aufgrund der relativ großen Anregungsleistung treten weniger scharfe und spektral getrennte Linien der QP sondern vielmehr eine Überlagerung zu einem Ensemble auf.

Insgesamt wurden mehrere Mikroresonatoren mit verschiedenen Durchmessern gemessen, um den Einfluss der Geometrie auf die Emissionsenergie zu bestimmen. Die gemessenen Modenenergien von Grundmode und erster angeregter Mode sind in Abhängigkeit vom Durchmesser in Abbildung 5-1 (b) als Punkte aufgetragen. Aufgrund der Reduzierung des lateralen photonischen Einschlusses steigt die Emissionsenergie mit kleiner werdenden Durchmessern an. Zusätzlich wurden nach Gleichung ( 15 ) die theoretisch zu erwartenden Kurven berechnet und als Linien im Graph mit eingezeichnet. Für die Berechnung wurde eine dielektrische Konstante  $\epsilon_r = 11.8$  gewählt, für die Grundmode die erste Nullstelle der Besselfunktion sowie für die erste angeregte Mode die zweite Nullstelle der Besselfunktion. Die experimentell gewonnenen Daten zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit der berechneten Modenenergie.

---

### 5.1.1 Schwache Licht-Materie-Wechselwirkung unter optischer Anregung

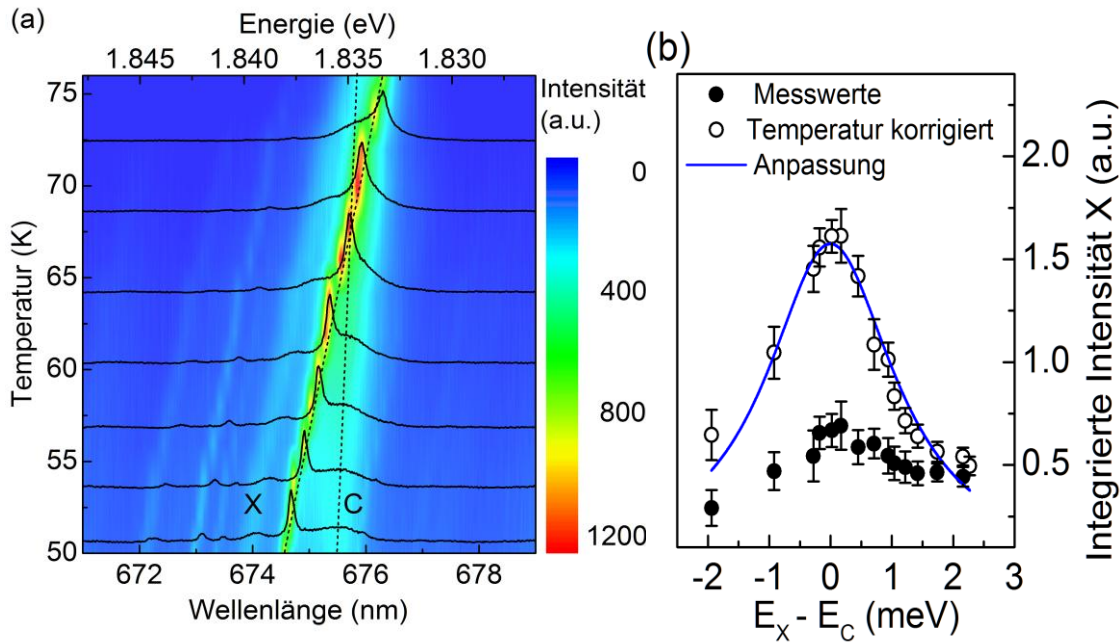
---

In der Resonatorstruktur kommt es aufgrund der veränderten Modendichte zusätzlich zu Wechselwirkungseffekten zwischen QP Emission und den Resonatormoden. Für die Untersuchung von Licht-Materie-Wechselwirkungen ist es von Vorteil, wenn die QP-Emission nahe der Kavitätsmode liegt. Um die Exziton-Emission in Resonanz mit der Kavitätsmode zu bringen, gibt es verschiedene Ansätze. Eine Möglichkeit zur energetischen Verstimmung ist das Anlegen von äußeren Feldern. Dies kann z. B. ein elektrisches Feld und der damit verbundenen Energieverschiebung durch den Stark-Effekt (QCSE) [75] oder über ein Magnetfeld und der diamagnetischen Verschiebung der Exziton-Emission sein [76].

Ein weiterer Parameter zur Manipulation der Energieverstimmung ist die Temperatur. Die Emissionsenergie eines Exzitons sinkt aufgrund der Verkleinerung der Bandlücke mit steigenden Temperaturen. Des Weiteren verschiebt die Emission der Kavitätsmode ebenfalls zu kleineren Energien aufgrund der Änderung des Brechungsindex mit zunehmenden Temperaturen. Allerdings ist die temperaturbedingte Energieverschiebung der Kavitätsmode geringer, so dass Exziton und Kavität relativ zueinander verstimmt werden können. Befindet sich die Exziton-Emission auf der kurzwelligen Seite der Kavitätsmode, so ist es möglich durch Erhöhung der Temperatur beide Linien in Resonanz zu schieben.

Im Fall der Resonanz wird, abhängig von der Kopplungsstärke, zwischen dem Regime der starken und schwachen Wechselwirkung unterschieden. Für die schwache Kopplung erhöht sich die spontane Emissionsrate des Exzitons durch das diskrete Modenspektrum, wie in Kapitel 2.3 theoretisch beschrieben. Daraus resultiert eine Überhöhung der Exziton-Intensität im Resonanzfall, was als Purcell-Effekt bekannt ist.

In Abbildung 5-2 (a) ist eine Temperaturserie der PL eines Mikrotürmchens mit einem Durchmesser von  $1.3 \mu\text{m}$  als Konturdiagramm dargestellt. Blaue Bereiche bedeuten geringe PL Intensität und rote Bereiche entsprechend hohe PL Intensität. Zusätzlich sind ausgewählte  $\mu\text{PL}$ -Spektren eingezeichnet um die Energieverstimmung von Exziton-Energie und Kavitätsmode zu verdeutlichen. Beginnend bei einer Temperatur von 50 K emittiert das Exziton bei einer Wellenlänge von 674.64 nm mit einer Halbwertsbreite von 300  $\mu\text{eV}$ . Die Emission der Kavitätsmode liegt bei einer Wellenlänge von 675.28 nm mit einer Halbwertsbreite von 1.8 meV, woraus ein  $Q$ -Faktor von etwa 1000 resultiert. Mit Erhöhung der Temperatur ist die Rotverschiebung der Exziton-Emission stärker als die der Resonatormode, wie die beiden gestrichelten Linien in Abbildung 5-2 (a) andeuten. Bei einer Temperatur von etwa 68 K wird der Resonanzfall erreicht. Exziton-Emission und Kavitätsmode haben die gleiche Emissionswellenlänge von 675.82 nm. Mit weiterer Erhöhung der



**Abbildung 5-2:** (a) Konturdarstellung der schwachen Wechselwirkung von QP-Exziton (X) und Kavitätsmode (C). Blaue Bereiche reflektieren geringe Intensität und rote Bereiche hohe Intensität. Mit zunehmender Temperatur schiebt X stärker rot als C und im Resonanzfall kommt es zu einer Intensitätsüberhöhung. (b) Integrierte Intensität von X in Abhängigkeit der energetischen Verstimmung zum Resonanzfall. Die blaue Linie stellt eine Anpassung nach dem Purcell-Modell ( 63 ) mit einem Purcell-Faktor von  $F_p = 1.25 \pm 0.25$  dar.

Temperatur wird die Exziton-Emission langwelliger und erreicht für 76 K eine Wellenlänge von 676.8 nm, wohingegen die Kavitätsmode bei 675.84 nm liegt. Betrachtet man die experimentell ermittelten Intensitäten der Exziton-Emission, so beobachtet man eine leichte Überhöhung im Resonanzfall. Die Intensitäten sind in Abbildung 5-2 (b) gegenüber der energetischen Verstimmung zwischen Exziton-Energie und Modenenergie als schwarze, ausgefüllte Punkte aufgetragen.

Bedingt durch den relativ hohen Temperaturbereich zwischen 50 K und 75 K kommt es gleichzeitig zu einer Abnahme der Intensität aufgrund thermischer Anregungen von Ladungsträgern in die Benetzungsschicht bzw. die umgebende Matrix. Deshalb wurde für einen weiteren QP außerhalb der Resonanz die Änderung des Intensitätsverlaufs in diesem Temperaturbereich bestimmt. Damit kann die Intensität des Exzitons, welches in Resonanz mit der Kavitätsmode ist, korrigiert werden. Die revidierten Intensitätswerte sind als offene Kreise zusätzlich in Abbildung 5-2 (b) dargestellt. So wird die Intensitätsüberhöhung im Resonanzfall aufgrund des Purcell-Effekts deutlich sichtbar.

Munsch et al. lieferten eine Beschreibung, wodurch der Purcell-Faktor aus zeitintegrierten Messungen unter Dauerstrichanregung bestimmt werden kann [77].

Für niedrige Anregungsleistungen, d. h. unterhalb der Sättigung, ist die Intensitätsüberhöhung und damit der Purcell-Faktor gegeben durch:

$$I_X^{cav}(\Delta) \propto \frac{F_P \mathcal{L}(\Delta)}{1 + F_P \mathcal{L}(\Delta)} \quad (63)$$

wobei  $\mathcal{L}(\Delta) = 1/(1 + \Delta^2/\gamma_c^2)$  mit  $\Delta = E_X - E_c$  die Verstimmung und  $\gamma_c$  die halbe Halbwertsbreite der Kavitätsmode ist. Eine Anpassung an die Messdaten liefert den zugehörigen Purcell-Faktor von  $F_P = 1.25 \pm 0.25$ , was die blaue Linie in Abbildung 5-2 (b) widerspiegelt.

Der maximal zu erwartende Purcell-Faktor für einen Mikrosäulenresonator mit einem Q-Faktor von 1000 kann mit Gleichung ( 21 ) aus Kapitel 2.3 abgeschätzt werden. Mit einem Brechungsindex von  $n_1 = 3.5$ , der Wellenlänge der Mode von 675 nm und erster Näherung für das Modenvolumen von  $V_m \approx 0.53r^2$  [78], wobei  $r = 0.65 \mu\text{m}$  der Radius der Mikrotürmchens ist, errechnet sich ein max. Purcell-Faktor von  $F_{P,max} = 2.43$ . Der experimentell beobachtete Wert ist um die Hälfte kleiner als der theoretisch zu erwartende Maximalwert. Eine mögliche Ursache liegt darin, dass der QP nicht zentral im Maximum des elektrischen Feldes der Mode liegt, was zu einer reduzierten Kopplung verbunden mit einem verringertem Purcell-Faktor führt.

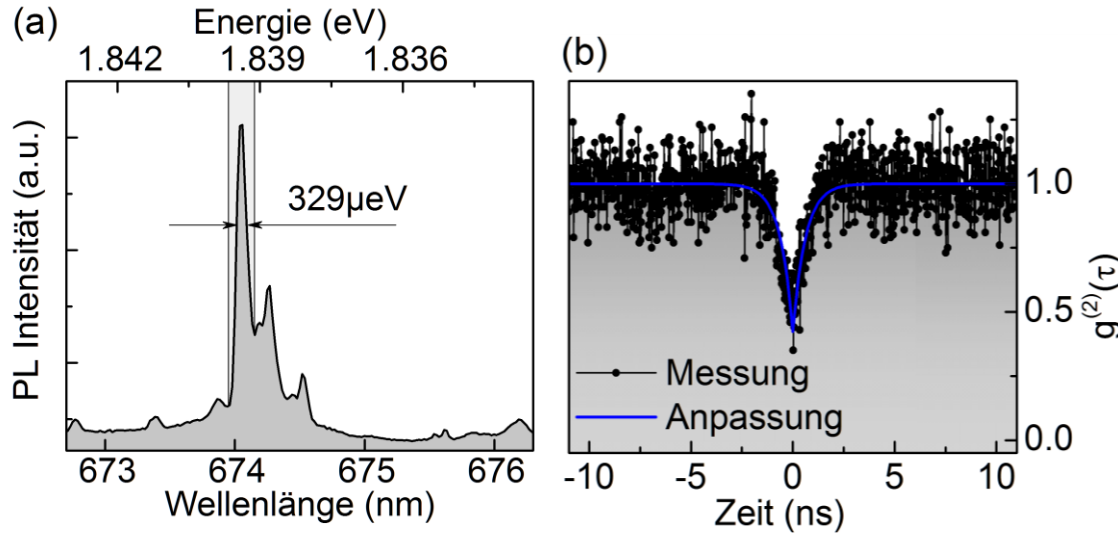
---

### 5.1.2 Autokorrelation eines einzelnen QP

---

Wie im vorangegangenen Kapitel demonstriert, können QP einzelne Photonen aussenden. Eine Integration in Mikrosäulenresonatoren verspricht zum einen die Auskoppelleffizienz gegenüber planaren Strukturen zu erhöhen und durch Ausnutzung von CQED-Effekten (z. B. Purcell-Effekte) die Emissionsrate und damit die Effizienz der QP als Einzelphotonenquellen zu steigern.

Für die Untersuchung der zeitlichen Emissionscharakteristik wurde darauf geachtet, dass die Resonanz schon bei tieferen Temperaturen eintritt, so dass es zu keinen wahrnehmbaren Intensitätsverlusten aufgrund von Thermalisierungseffekten kommt. Abbildung 5-3 (a) zeigt das  $\mu\text{PL}$ -Spektrum eines Mikrosäulenresonator mit einem Durchmesser von 1.5  $\mu\text{m}$ , aufgenommen bei einer Temperatur von 25 K. Bei einer Wellenlänge von 674.05 nm ist die Exziton-Emission in Resonanz mit der Kavitätsmode und hat eine Halbwertsbreite von 329  $\mu\text{eV}$ . In dem Spektrum sind neben der Hauptlinie für die Resonanz noch weitere Emissionslinien zu erkennen, welche weiteren QP zugeordnet werden. Der hellgrau unterlegte Bereich deutet die spektrale Filterung für die Autokorrelationsmessung an.



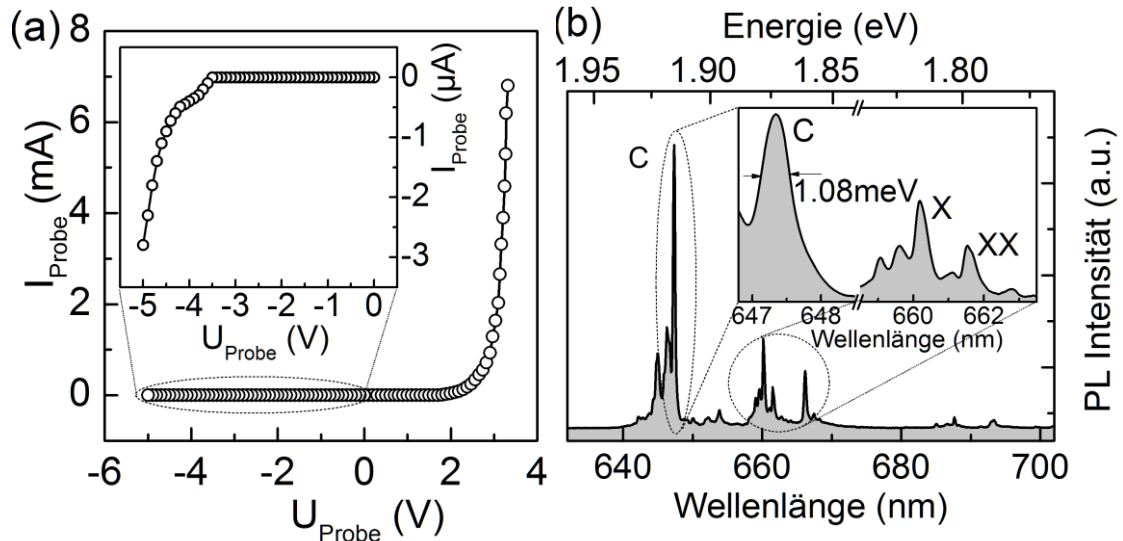
**Abbildung 5-3:** (a)  $\mu$ PL Spektrum eines QP-Exzitons in Resonanz mit der Kavitätsmode bei einer Wellenlänge von 674.05nm. Der hellgrau unterlegte Bereich zeigt die spektrale Filterung durch den Monochromator. (b) Zugehöriges Histogramm der Messdaten mit einer Anpassung nach Gleichung ( 61 ) (blaue Linie). Daraus erhält man einen Wert für  $g^{(2)}(0) = 0.4 \pm 0.03$ .

Das zugehörige Histogramm der Autokorrelationsmessung unter Dauerstrichanregung ist in Abbildung 5-3 (b) dargestellt. Im Bereich um 0 ns tritt eine deutliche Unterdrückung der Koinzidenz-Ereignisse auf. Für die Quantifizierung des  $g^{(2)}(0)$ -Wertes können die Messdaten mit Gleichung ( 61 ) beschrieben werden. Daraus erhält man einen Wert von  $g^{(2)}(0) = 0.42 \pm 0.03$  welcher kleiner ist als 0.5 und die Einzelphotonenemission bestätigt. Für einen reinen Quantenemitter erwartet man einen Wert für  $g^{(2)}(0)$  von 0.

Der hier ermittelte Wert von 0.42 kann verschiedene Ursachen haben. Diese können z. B. nichtresonante Einkopplungen von Photonen anderer Emitter in der Mode sein oder auch Hintergrundemission durch die Umgebung. Die Funktion kann um die Hintergrundemission korrigiert werden [79]:

$$g_H^{(2)}(0) = (g^{(2)}(0) - 1 + \rho^2) / \rho^2 \quad (64)$$

Dabei ist  $\rho = S / (S + B)$  mit  $S$  der Signalintensität und  $B$  der Hintergrundintensität. Durch Bereinigen der Hintergrundemission anhand Gleichung ( 64 ) verbessert sich der Wert auf  $g^{(2)}(0) = 0.34$ .



**Abbildung 5-4:** (a) Strom-Spannung-Kennlinie eines Mikrosäulenresonators. Der Bereich für negative Spannungen ist im Einsatz vergrößert dargestellt. (b) EL-Übersichtsspektrum eines Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $2.5 \mu\text{m}$ . Bei  $647.3 \text{ nm}$  ist die Grundmode der Kavität (C), bei  $660.2 \text{ nm}$  ein Exziton (X) und bei  $661.5 \text{ nm}$  das zugehörige Biexziton (XX) zu erkennen.

## 5.2 Elektrische Charakterisierung

Für Anwendungen von QP in optoelektronischen Bauteilen ist es von entscheidendem Vorteil, wenn diese elektrisch betrieben werden können. Deshalb wurden die Proben mit elektrischen Kontakten versehen und mittels  $\mu\text{EL}$ -Methoden charakterisiert.

Für die Bestimmung des Arbeitspunktes wurde zunächst die Strom-Spannung-Kennlinie aufgenommen, was in Abbildung 5-4 (a) dargestellt ist. Der Bereich für negative Spannungen ist zusätzlich vergrößert hervorgehoben. Ein  $R = 1 \text{ k}\Omega$  Widerstand wurde mit der Probe in Reihe geschaltet und die Spannung variiert. Aus dem gemessenen Spannungsabfall am Widerstand wurde der Strom berechnet. Die Strom-Spannung-Charakteristik zeigt den typischen Verlauf einer Dioden-Kennlinie mit einer Schwellspannung bei ca.  $+2.9 \text{ V}$  und einer Durchbruchspannung bei etwa  $-3.5 \text{ V}$ . In Durchlassrichtung fließt ein deutlich größerer Strom in der Größenordnung von mA verglichen mit der Sperrichtung von wenigen  $\mu\text{A}$ .

Ein  $\mu\text{EL}$ -Emissionsspektrum eines Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $2.5 \mu\text{m}$  für eine Vorwärtsspannung von  $U_{\text{Probe}} = 4.5 \text{ V}$  ist in Abbildung 5-4 (b) gezeigt. Das Spektrum besteht aus mehreren scharfen Lumineszenzlinien. Bei einer Wellenlänge von  $647.3 \text{ nm}$  liegt die Kavitätsgrundmode (C) mit einer Halbwertsbreite von  $1.08 \text{ meV}$ , was im Ausschnitt vergrößert ist. Dies entspricht einem Qualitätsfaktor von  $Q = 1770$ . Bei kleineren

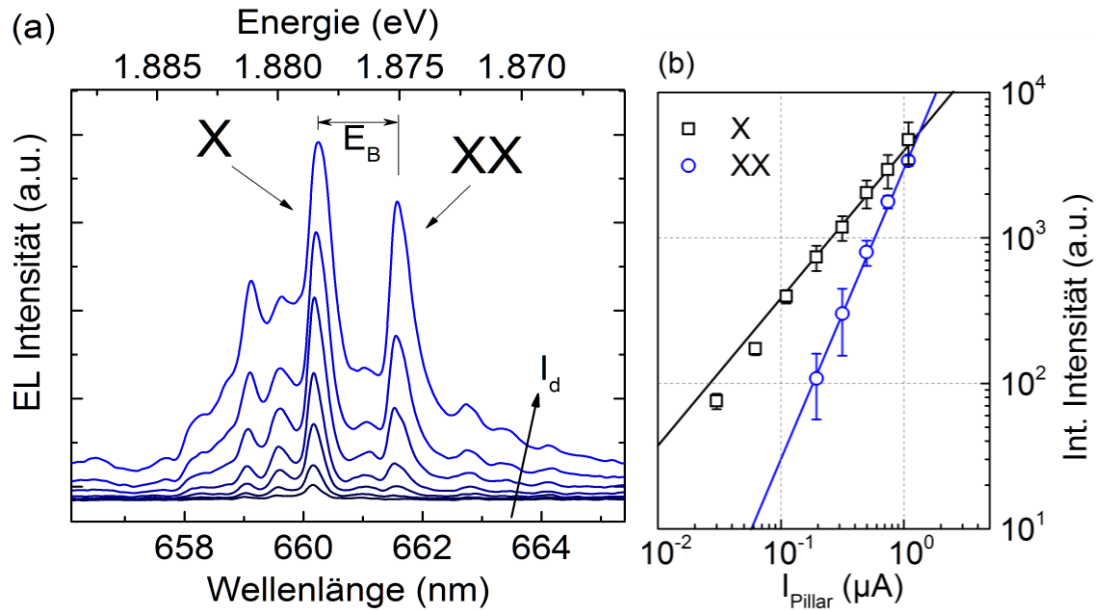


Abbildung 5-5: (a) Leistungsserie eines QP Exziton (X) und Biexziton (XX). Für kleine Ströme ist zunächst nur X bei 660.2 nm zu erkennen und mit steigendem Injektionsstrom zusätzlich XX bei 661.5 nm. (b) Integrierte Intensität von X (schwarz) und XX (blau) als Funktion des Injektionsstromes. Die Linien sind Geraden mit der Steigung eins (X) und zwei (XX).

Wellenlängen sind zusätzlich noch höhere Kavitätsmoden zu erkennen. Die scharfen Lumineszenzlinien im Bereich größerer Wellenlängen bei etwa 660 nm werden QP zugeordnet. Speziell die Lumineszenzlinie bei 660.2 nm wird einem Exziton (X) und bei 661.5 nm dem zugehörigen Biexziton (XX) zugewiesen.

Eine Serie in Abhängigkeit der Anregungsleistung bestätigt die Zuordnung des X-XX-Paares. Abbildung 5-5 (a) zeigt  $\mu$ PL-Spektren für zunehmende Injektionsströme. Aus Gründen einer besseren Übersicht ist nur der Bereich zwischen 656 nm und 665 nm dargestellt. Für kleine Injektionsströme  $< 0.2 \mu\text{A}$  ist nur die schwach ausgeprägte Lumineszenzlinie von X bei 660.2 nm mit einer Linienbreite von 797  $\mu\text{eV}$  zu erkennen. Mit zunehmendem Injektionsstrom werden weitere Lumineszenzlinien im Spektrum sichtbar, wobei die Peaks auf der kurzwelligen Seite, ähnlich wie bei den planaren Proben in Abschnitt 4.2, verschiedenen geladenen Zuständen zugeordnet werden. Interessant ist jedoch die Linie bei 661.5 nm und einer Linienbreite von 1.02 meV, bei der die Intensität mit steigendem Strom offensichtlich stärker zunimmt als bei anderen Linien, was auf ein Biexziton (XX) hindeutet. Aus dem Abstand errechnet sich eine Bindungsenergie des Biexzitons von  $E_B = -3.7 \text{ meV}$ . In Abbildung 5-5 (b) sind die integrierten Intensitäten von X und XX als Funktion des Injektionsstromes aufgetragen. Punkte repräsentieren die experimentelle gewonnenen Daten und die beiden Linien sind Geraden mit der Steigung eins (schwarz, X) und zwei (blau, XX). Die lineare und



superlineare Intensitätsabhängigkeit der EL vom Injektionsstrom bestätigt, dass es sich hier um ein Exziton-Biexziton-Paar handelt.

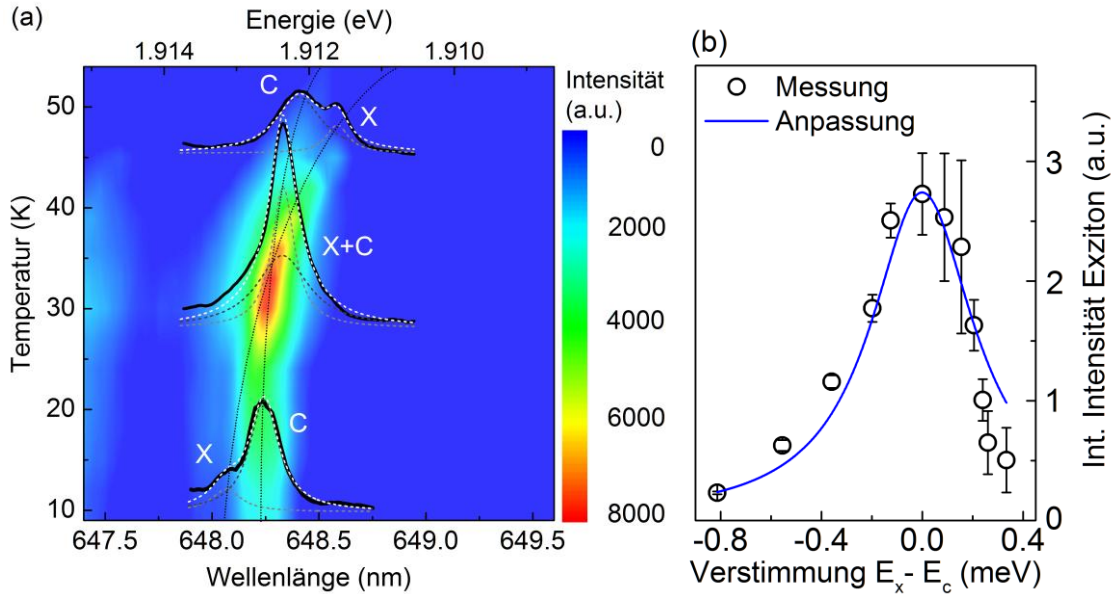
---

### 5.2.1 Schwache Licht-Materie-Wechselwirkung unter elektrischer Anregung

---

Bei den bisher analysierten Mikrosäulenresonatoren lag die Exziton-Lumineszenz jedoch relativ weit von der Kavitätsmode entfernt. Für die Beobachtung von ausgeprägten Licht-Materie-Wechselwirkungseffekten müssen die Energien von Exziton und Kavitätsmode zueinander in Resonanz gebracht werden. Deshalb wurde ein Mikrosäulenresonator ausgewählt, wo die Exziton-Energie näher bei der Kavitätsmode liegt, um mittels Temperaturverschiebung den Resonanzfall zu erreichen.

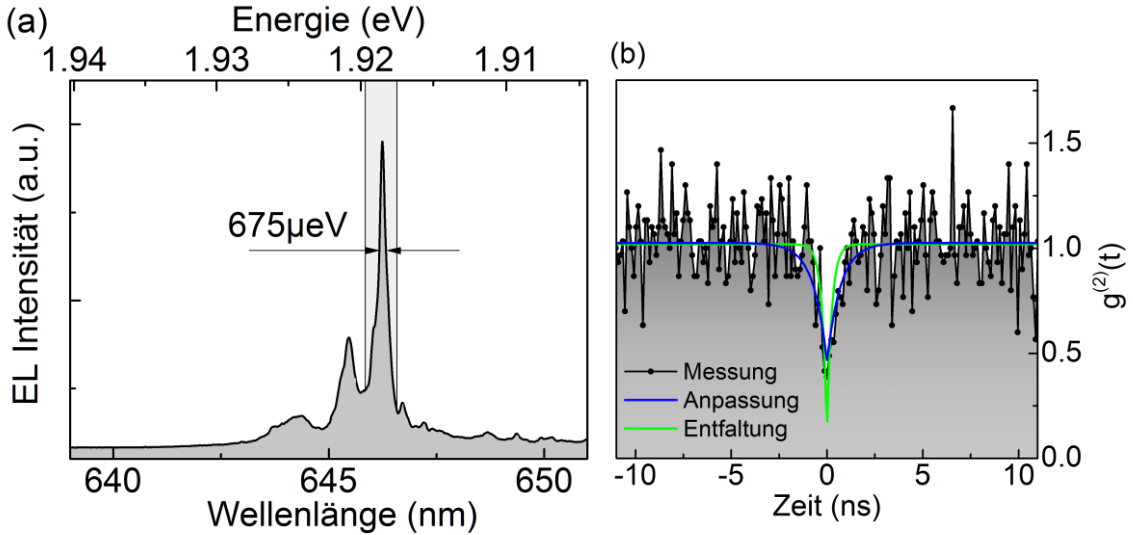
Abbildung 5-6 (a) zeigt das Temperatortuning der EL eines Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $2.0 \mu\text{m}$  in Konturdarstellung, wobei blaue Bereiche wenig EL Intensität und rote Bereiche entsprechend hohe EL Intensität bedeuten. Zusätzlich sind drei ausgewählte  $\mu\text{EL}$  Spektren für 18 K, 33 K und 45 K als schwarze Linie abgebildet. Für kleine Temperaturen ( $< 30 \text{ K}$ ) liegt die Exziton-Emission (X) auf der kurzwelligen Seite von der Kavitätsmode (C). Lorentz-Anpassungen liefern für das Exziton eine Wellenlänge von  $648.29 \text{ nm}$  mit einer Halbwertsbreite von  $350 \mu\text{eV}$  und für die Kavitätsmode  $648.37 \text{ nm}$  mit einer Halbwertsbreite von  $900 \mu\text{eV}$ . Dies entspricht einem  $Q$ -Faktor von 2125. Mit Erhöhung der Temperatur verschiebt die Exzitonenergie stärker rot als die Kavitätsmode, was durch gepunktete Linien angedeutet ist. Für  $T = 32 \text{ K}$  ist der Resonanzfall erreicht, wo Exziton-Emission und Kavitätsmode die gleiche Wellenlänge von  $648.38 \text{ nm}$  haben. Im Regime der schwachen Wechselwirkung kommt es aufgrund des Purcell-Effekts zu einer Intensitätsüberhöhung der Lumineszenz von X, wie anhand der roten Farbcodierung klar erkennbar ist. Lorentzförmige Anpassungen für X und C (gestrichelte Linien in Abbildung 5-6 (a)) beschreiben die Überhöhung der Intensität auch quantitativ.



**Abbildung 5-6:** (a) Konturdarstellung der Energieposition von Exziton (X) und Kavitätsmode (C) in Abhängigkeit der Temperatur. Zusätzlich sind drei ausgewählte Spektren vor der Resonanz (18 K), in Resonanz (33 K) und nach der Resonanz (45 K) mit den jeweiligen Anpassungen für X und C gezeigt. Im Resonanzfall ist eine deutliche Überhöhung der Intensität zu beobachten. (b) Integrierte Intensität von X in Abhängigkeit der energetischen Verstimmung zum Resonanzfall. Die blaue Linie stellt eine Anpassung nach Gleichung ( 63 ) mit einem Purcell-Faktor von  $F_P = 1.85 \pm 0.18$  dar.

Die so ermittelte integrierte Intensität des Exzitons ist als Funktion gegenüber der Energieverstimmung zwischen X und C in Abbildung 5-6 (b) aufgetragen. Den Purcell-Faktor erhält man, analog zu den optischen Messungen im vorangegangenen Abschnitt, aus einer Anpassung von Gleichung ( 63 ) an die experimentellen Daten. In diesem Fall entspricht die Überhöhung einem Purcell-Faktor von  $F_P = 1.85 \pm 0.18$ .

Der maximal zu erwartende Purcell-Faktor für ein 2  $\mu\text{m}$  Mikrosäulenresonator mit einem Q-Faktor von 2125 kann mit Gleichung ( 21 ) aus Abschnitt 2.3 berechnet werden und ist  $F_{P,max} = 1.95$ . Der experimentell beobachtete Wert ist, wie bei den PL Untersuchungen, kleiner als der theoretisch zu erwartende Maximalwert und lässt darauf schließen, dass der QP nicht zentral im Maximum des elektrischen Feldes der Mode liegt. Um den Purcell-Faktor und damit die Überhöhung der Exziton-Lumineszenz weiter zu steigern, müsste der Q-Faktor der Kavität erhöht werden. So wurden z. B. unter elektrischer Anregung für InGaAs/GaAs QP schon Purcell-Faktoren von bis zu  $F_P = 10$  gemessen bei einem Q-Faktor von 13000 [80].



**Abbildung 5-7:** (a)  $\mu$ EL Spektrum eines Exzitons in Resonanz mit der Kavitätsmode bei 10 K. Der hellgrau unterlegte Bereich stellt die spektrale Filterung für die Autokorrelationsmessung dar. (b) Normiertes Histogramm mit der Anpassung nach Gleichung ( 61 ) (blau) und einer Entfaltung nach Gleichung ( 62 ) (grün).

### 5.2.2 Autokorrelation eines einzelnen QP unter elektrischer Anregung

Den Abschluss dieses Kapitels bilden Messungen zur Photonenzustatistik eines QP-Exzitons in Resonanz mit der Kavitätsmode unter elektrischer Anregung. Es wurde ein Mikrotürmchen gewählt, bei dem die Energie des Exzitons schon bei tiefer Temperatur in Resonanz mit der Kavitätsmode tritt. Das zugehörige EL Spektrum für  $T = 10$  K für ein Mikrotürmchen mit einem Durchmesser von  $2.0 \mu\text{m}$  ist in Abbildung 5-7 (a) dargestellt. Bei einer Wellenlänge von  $646.24 \text{ nm}$  ist das Exzitons in Resonanz mit der Kavitätsmode mit einer Halbwertsbreite von  $675 \mu\text{eV}$ . Der Peak bei einer kleineren Wellenlänge von  $645.42 \text{ nm}$  ist von der ersten angeregten Kavitätsmode. Die zusätzlichen Peaks auf der langwelligen Seite des Spektrums werden weiteren QP zugeordnet. Die spektrale Filterung für Autokorrelationsmessungen ist durch den hellgrau unterlegten Bereich angedeutet. Abbildung 5-7 (b) zeigt das zugehörige normierte Histogramm der Autokorrelationsmessung mit einer Unterdrückung der Ereignisse im Bereich um  $0 \text{ ns}$ . Eine Anpassung der Messdaten durch Gleichung ( 61 ) ist als blaue Linie in Abbildung 5-7 (b) eingezeichnet. Daraus bekommt man für  $g^{(2)}(0)$  einen Wert von  $0.45 \pm 0.08$ . Dieser Wert ist knapp unterhalb der Grenze von  $0.5$  und somit ein Indiz für die Emission von einzelnen Photonen.

Aufgrund des Purcell-Effektes ist die strahlende Lebensdauer des Exzitons kleiner als außerhalb der Resonanz. Deshalb kann die Funktion durch eine Entfaltung mit der begrenzten zeitlichen Auflösung der APDs korrigiert werden,

wie in Abschnitt 4.1 durch Gleichung ( 62 ) beschrieben. So erhält man einen korrigierten Wert von  $g^{(2)}(0) = 0.14 \pm 0.10$ . Die berechnete Funktion ist als grüne Linie ebenfalls in Abbildung 5-7 (b) dargestellt. Aufgrund nichtresonanter Einkopplungen von Photonen weiterer Emitter in die Grundmode sowie die spektrale Überlagerung angrenzender Linien ist der nichtklassische Emissionscharakter hier schwächer ausgeprägt als bei den planaren Proben ohne Resonator.

## 6 InGaN/GaN Quantenpunkte

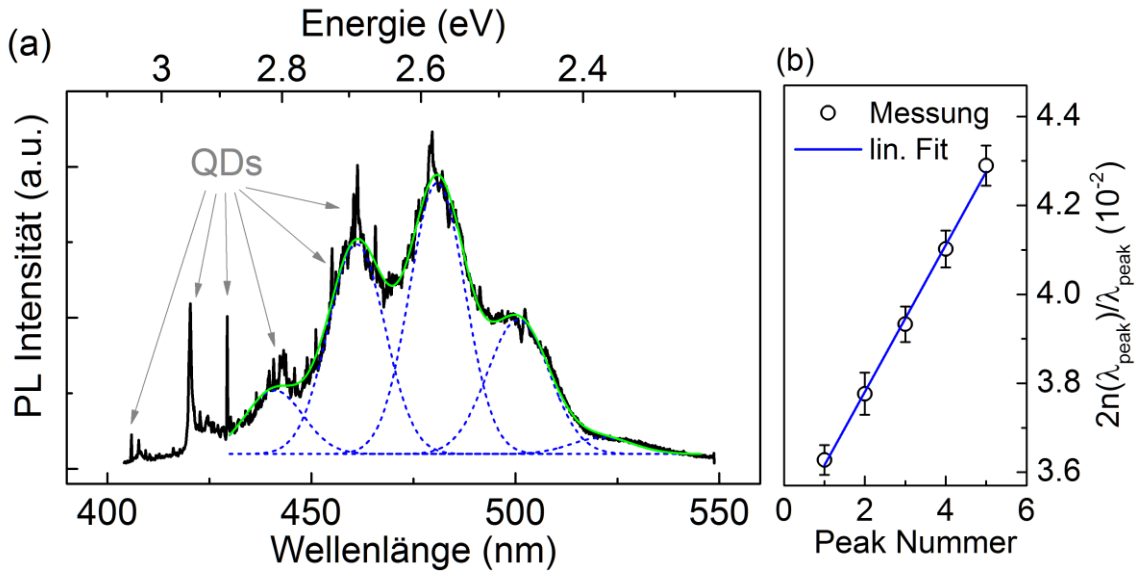
*Aufgrund der großen Energieunterschiede der Bandlücken von Nitrid-Halbleiterverbindungen besitzt dieses Materialsystem großes Potential auch bei höheren Temperaturen die Emission einzelner Photonen zu beobachten. Das folgende Kapitel beschreibt die spektroskopische Untersuchung von InGaN QP in einer GaN Matrix.*

*Zunächst werden in Abschnitt 6.1 anhand eines breitbandigen Spektrums einige Besonderheiten des Materialsystems verdeutlicht. Anschließend werden in Abschnitt 6.2 die Ergebnisse aus den  $\mu$ PL Messungen an spektral isolierten QP präsentiert. Eine Untersuchung in Abhängigkeit der Anregungsleistungsdichte ermöglicht die Diskussion der Emission von Exziton, Biexziton und geladenem Exziton. Im Folgenden wird die Lumineszenz in Abhängigkeit der Temperatur untersucht, bevor anschließend die speziellen Merkmale der Polarisation anhand von statistischen Messungen hervorgehoben werden. Den Abschluss bilden Messungen zur Statistik der emittierten Photonen einzelner QP. Erstmals wird die Einzelphotonenemission bis zu einer Temperatur von 50 K in diesem Materialsystem demonstriert.*

### 6.1 Spektral breitbandige Photolumineszenz

Abbildung 6-1 zeigt das gesamte Spektrum, aufgenommen für eine Apertur mit 1  $\mu\text{m}$  Durchmesser und einer Anregungsleistung von 100  $\mu\text{W}$ . Für alle Messungen wurde ausschließlich eine 375 nm GaN-Laserdiode (3.31 eV) zur Anregung der Probe verwendet. Da die Energie geringer ist als die der GaN-Barriere (> 3.51 eV) entspricht dies einer quasiresonanten Anregung in das InGaN.

Auf der hochenergetischen Flanke zwischen 2.6 eV und 3.1 eV ist die PL einzelner QP an spektral isolierten Linien zu erkennen. In diesem Fall zählt man etwa 8 einzelne QP Linien. Für weitere Aperturen mit 1  $\mu\text{m}$  Durchmesser wurde eine ähnliche Anzahl von QP-Linien bestimmt, woraus sich eine QP-Flächendichte von etwa  $2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$  abschätzen lässt. Die weite spektrale Verteilung von 500 meV der QP-Emission zwischen 2.6 eV und 3.1 eV hat verschiedene Ursachen. Zum einen spielt die Variation der Größe der QP eine Rolle, zum anderen aber auch die In-Konzentration in den QP. Aus Untersuchungen mittels hochauflösender Elektronen-



**Abbildung 6-1:** (a) Breitbandiges PL Spektrum der Probe. Auf der hochenergetischen Seite sind einzelne InGaN QP Emissionslinien zu erkennen. Das gesamte Spektrum ist mit einer periodischen Modulation überlagert. Die gestrichelten Linien zeigen die jeweiligen Gaußglocken für die Anpassung an, wobei die grüne Linie die Summe darstellt. (b) Fabry-Perot Peak-Positionen als Funktion der jeweiligen Peak-Nummer (Punkte) und eine lineare Anpassung zur Bestimmung der Schichtdicke.

Transmission-Mikroskopie (HRSTEM<sup>15</sup>) an vergleichbaren Proben konnte keine große Variation der QP-Größe festgestellt werden [21], weshalb der Ursprung in der Variation der In-Konzentration zu finden ist. Unter Annahme, dass Gitterverspannungen, QCSE sowie Ladungsträgereinschluss sich gegenseitig kompensieren, lässt sich die In-Konzentration für diesen Energiebereich nach Gleichung ( 72 ) auf  $0.25 < x < 0.46$  abschätzen. Aus den HRSTEM-Kontrast-Untersuchungen erwartet man eine minimale In-Konzentration von 20 %. Aufgrund des Wachstumsprozesse durch Phasenseparation entstehen Bereiche mit höherer und geringerer In-Konzentration, was zur QP-Bildung führt und zu einer merklichen Variation der In-Konzentration.

Zwischen 2.3 eV und 3.0 eV ist das Spektrum mit einer periodischen Modulation überlagert. Eine Anpassung von Gauß-Verteilungen mit jeweils einer Halbwertsbreite von 100 meV liefert eine Modulationsperiode von 113 meV (blaue, gestrichelte Linien in Abbildung 6-1 (a)). Die Summe der Gauß-Verteilungen gibt den Untergrund des gemessenen Spektrums sehr gut wieder (grüne Linie in Abbildung 6-1 (a)).

Unterschiede in den Brechungsindizes zwischen dem Saphir-Substrat und der ersten GaN-Schicht sowie an der Grenzfläche zwischen der GaN-Deckschicht und

<sup>15</sup> High Resolution Scanning Transmission Electron Microscopy

der umgebenden Luft führen zu den beobachteten Fabry-Perot-Oszillationen [81]. Aus den jeweiligen Peak-Positionen sowie der jeweiligen Peak-Nummer berechnet sich über  $2 \cdot n(\lambda_{peak})/\lambda_{peak}$  aus der Steigung einer linearen Anpassung die Dicke der Probe. Dabei ist  $n(\lambda_{peak})$  der wellenlängenabhängige Brechungsindex für die jeweilige Peak-Wellenlänge.

In Abbildung 6-1 (b) ist dies als Funktion der jeweiligen Peak-Nummer aufgetragen. Eine lineare Funktion liefert für die Steigung einen Wert von  $(1.65 \pm 0.05) \mu\text{m}$ , was der Gesamtdicke der Schichten zwischen Substrat-Oberfläche und dem Übergang zur Luft entspricht. Nach dem Wachstumsprotokoll wurden insgesamt Schichten mit einer Gesamtdicke von ca.  $1.66 \mu\text{m}$  abgeschieden (vgl. Anhang). Die periodische Überlagerung der Lumineszenz kann eindeutig Fabry-Perot-Oszillationen basierend auf der Reflexionen an den Grenzschichten zugeordnet werden. Für die weiteren Untersuchungen werden diese vernachlässigt.

## 6.2 $\mu$ - Photolumineszenz

Die folgenden Abschnitte konzentrieren sich wieder auf spektroskopischen Untersuchungen einzelner, spektral isolierter QP. Die Spektren wurden jeweils um den Untergrund korrigiert.

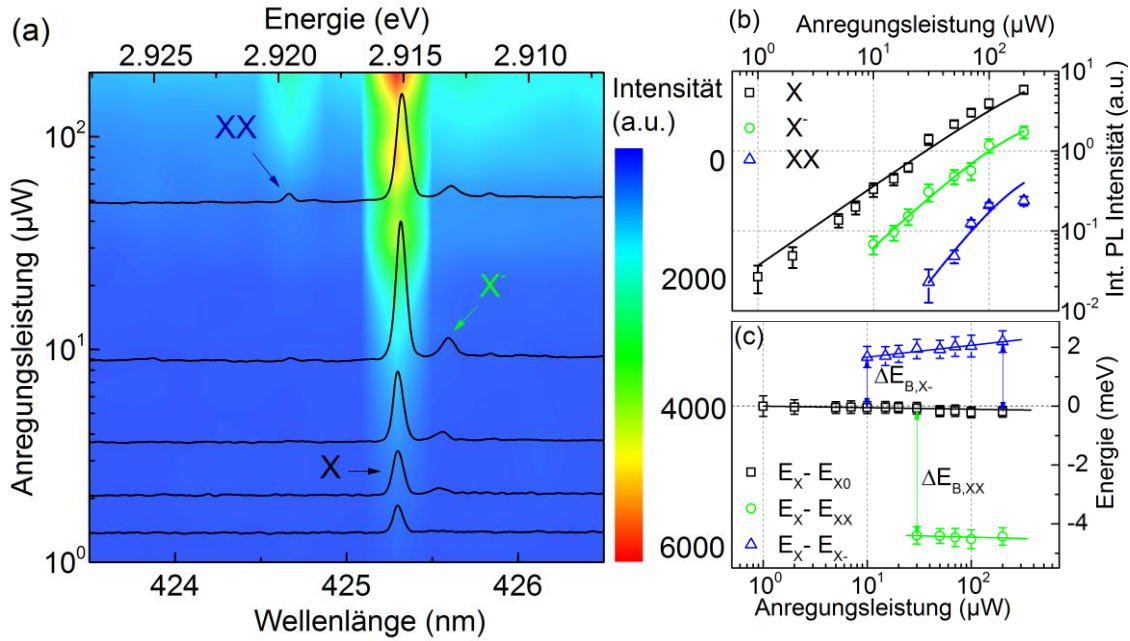
---

### 6.2.1 PL versus Anregungsleistung

---

Zunächst wurde die Anregungsleistung stetig erhöht. Abbildung 6-2 (a) zeigt eine Serie für einen einzelnen QP und Anregungsleistungen zwischen  $1 \mu\text{W}$  und  $200 \mu\text{W}$  als Konturdiagramm mit Farbcodierung. Dabei stellen blaue Bereiche geringe Intensität und rote Bereiche eine große Intensität dar. Zusätzlich sind fünf ausgewählte Spektren für Anregungsleistungen von  $5 \mu\text{W}$ ,  $10 \mu\text{W}$ ,  $20 \mu\text{W}$  und  $100 \mu\text{W}$  (von unten nach oben) gezeigt. Bei einer niedrigen Anregungsleistung bis  $10 \mu\text{W}$  ist lediglich eine Lumineszenz-Linie bei einer Wellenlänge von  $425.3 \text{ nm}$ , entspricht einer Energie von  $2.915 \text{ eV}$ , zu erkennen. Die Linie hat eine Halbwertsbreite von  $330 \mu\text{eV}$  und bleibt über den gesamten Bereich der Variation der Anregungsleistung nahezu konstant.

Mit Erhöhung der Anregungsleistung wird zunächst auf der niederenergetischen Seite bei einer Wellenlänge von  $425.6 \text{ nm}$  ( $\cong 2.913 \text{ eV}$ ) ein weiterer Lumineszenz-Peak mit einer Halbwertsbreite von  $650 \mu\text{eV}$  sichtbar. Ab einer Anregung mit Leistungen  $> 40 \mu\text{W}$  ist zusätzlich auf der hochenergetischen Seite bei  $425.7 \text{ nm}$



**Abbildung 6-2:** (a) Konturdarstellung und ausgewählte  $\mu$ PL Spektren eines einzelnen InGaN QP für variierende Anregungsleistungen. Blaue Bereiche stellen wenig PL Intensität und rote Bereiche hohe PL Intensität dar. Mit steigender Anregungsleistung ist neben dem Exziton (X) das negativ geladene Exziton ( $X^-$ ) und das Biexziton (XX) zu erkennen. (b) Integrierte Intensität von X,  $X^-$  und XX als Funktion der Anregungsleistung in doppellogarithmischer Auftragung. Die Linien sind Anpassungen nach dem Ratenmodell (50) mit den Exponenten  $N = 1.0$  (X),  $1.35$  ( $X^-$ ) und  $2.0$  (XX). (c) Energieposition von X sowie Bindungsenergien von XX und  $X^-$  als Funktion der Anregungsleistung in halblogarithmischer Darstellung.

( $\cong 2.919$  eV) eine dritte Lumineszenz-Linie mit einer Halbwertsbreite von  $320 \mu\text{eV}$  zu beobachten.

Um die verschiedenen Linien genauer zu untersuchen, werden die integrierten Intensitäten und Energiepositionen für alle Anregungsleistungen mit Hilfe von Lorentz-Profilen bestimmt. In Abbildung 6-2 (b) sind die Intensitäten in doppellogarithmischer Skalierung gegenüber der Anregungsleistung aufgetragen. Für den ersten Peak bei  $2.915$  eV (schwarze Punkte) erhöht sich die Intensität mit steigender Anregungsleistung nahezu linear, weshalb diese Lumineszenz-Linie dem Exziton (X) zugewiesen wird. Der zweite PL-Peak bei  $2.913$  eV (rote Kreise) zeigt einen annähernd gleichem leistungsabhängigen Intensitätsverlauf und wird dem negativ geladenen Exziton ( $X^-$ ) zugeordnet. Peak 3 bei der Energie von  $2.919$  eV (blaue Dreiecke) hingegen zeigt einen superlinearen Anstieg mit zunehmender Anregungsleistung, weshalb dies als Biexziton-Lumineszenz (XX) angenommen wird.

Analog zu der Auswertung an InP QP in den Abschnitten 4.1 und 4.2 stellen die durchgezogenen Linien entsprechende Anpassungen nach dem Ratenmodell dar.



Die Zunahme der Lumineszenzintensität von Exziton bzw. Biexziton kann durch Poisson-Verteilungen mit entsprechenden Exponenten nach Gleichung ( 50 ) beschrieben werden. Für die Anpassung von  $X$  wurde ein fester Exponent von  $N = 1$  und für  $XX$  entsprechend ein Exponent von  $N = 2$  gewählt. Für das geladene Exziton wird die Intensität durch einen Exponenten von  $N = 1.35$  am besten wiedergegeben.

Wie in Abschnitt 4.1 gezeigt wurde, ist eine Zuordnung durch leistungsabhängige Messungen alleine nicht eindeutig. Eine eindeutige Zuordnung wäre z. B. durch Kreuzkorrelationsmessungen zwischen den jeweiligen Lumineszenz-Linien möglich.

In diesem Fall gibt es aber noch ein weiteres Indiz, um die Linien den jeweiligen Exziton-Komplexen eindeutig zuzuordnen. Eine genauere Betrachtung der energetischen Positionen der jeweiligen Lumineszenz-Linien mit steigender Anregungsleistung zeigt einen differenzierten Verlauf von  $X/XX$  zu  $X^-$ , was in Abbildung 6-2 (c) dargestellt ist. Die Energiepositionen von  $X$  wurden auf die Position bei der minimalen Anregungsleistung normiert ( $E_X - E_{X,P0}$ ) und zeigen eine kontinuierliche, schwach ausgeprägte Rotverschiebung mit zunehmender Anregungsleistung (schwarzen Quadrate). Die maximale Anregungsleistung von  $200 \mu\text{W}$  führt zu einer Rotverschiebung von  $200 \mu\text{eV}$ . Dies wird auf lokale Temperaturerhöhung infolge der erhöhten Anregungsleistung und einer damit verbundenen Verkleinerung der Bandlücke zurückgeführt.

Der energetischen Abstand von  $XX$  zu  $X$  entspricht einer negativen Bindungsenergie von  $\Delta E_{B,XX} = -4.25 \text{ meV}$  mit einer konstanten Rotverschiebung analog zu  $X$  mit zunehmender Anregungsleistung. Die Bindungsenergie wird maßgeblich beeinflusst durch den Überlapp von Elektron- und Lochwellenfunktion und durch ein einfaches Modell beschrieben [82]:

$$E_X - E_{XX} = -(2J_{eh} + J_{ee} + J_{hh}) \quad (65)$$

Dabei ist  $J_{eh}$  die anziehende Elektron-Loch-Coulomb-Wechselwirkung und  $J_{ee(hh)}$  die abstoßende Elektron-Elektron bzw. Loch-Loch-Wechselwirkung. Aufgrund spontan auftretender piezoelektrischer Felder in Nitriden wird auch ohne ein äußeres Feld  $J_{eh}$  wegen der räumlichen Trennung von Elektron- und Loch-Wellenfunktion klein. Die repulsiven Wechselwirkungen  $J_{ee}$  und  $J_{hh}$  dominieren und führen zu einer negativen Bindungsenergie [83], wie z. B. auch an GaN/AlN QP beobachtet wurde [84].

Das geladene Exziton hingegen zeigt eine deutlich ausgeprägte Energieverschiebung mit Erhöhung der Anregungsleistung. Bei der maximalen Leistung von  $200 \mu\text{W}$  ist die Energieposition des geladenen Exzitons bereits um  $650 \mu\text{eV}$  in Richtung rot verschoben. Dementsprechend erhöht sich die Bindungsenergie des geladenen Exzitons in diesem Bereich von  $\Delta E_{B,X^-} = 1.75 \text{ meV}$  für  $P = 10 \mu\text{W}$  auf  $\Delta E_{B,X} = 2.4 \text{ meV}$  für die maximale Anregungsleistung von  $P = 200 \mu\text{W}$ .

Mit steigender Anregungsleistung werden zunehmend Ladungsträger im umgebenden Barrierenmaterial der QP generiert. Dies führt zu einer stärkeren Abschirmung des internen elektrischen Feldes und einer damit verbundenen Reduzierung des QCSE, was schließlich in einer stärkeren Rotverschiebung resultiert.

Eine weitere Ursache der Rotverschiebung von  $X^-$  liegt darin begründet, dass Elektronen- und Lochwellenfunktionen im QP nicht identisch sind [85]. Im Gegensatz zu  $X^-$  besteht das  $X^0$  aus zwei Elektronen und nur einem Loch. Die anziehende Wechselwirkung  $J_{eh}$  zwischen Elektron und Loch ist größer als die abstoßende Wechselwirkung  $J_{ee}$  zwischen den beiden Elektronen. Daraus folgt eine Absenkung der Emissionsenergie um den Betrag  $J_{eh} - J_{ee}$ , was zu einer Rotverschiebung führt.

---

### 6.2.2 $\mu$ PL in Abhängigkeit der Temperatur

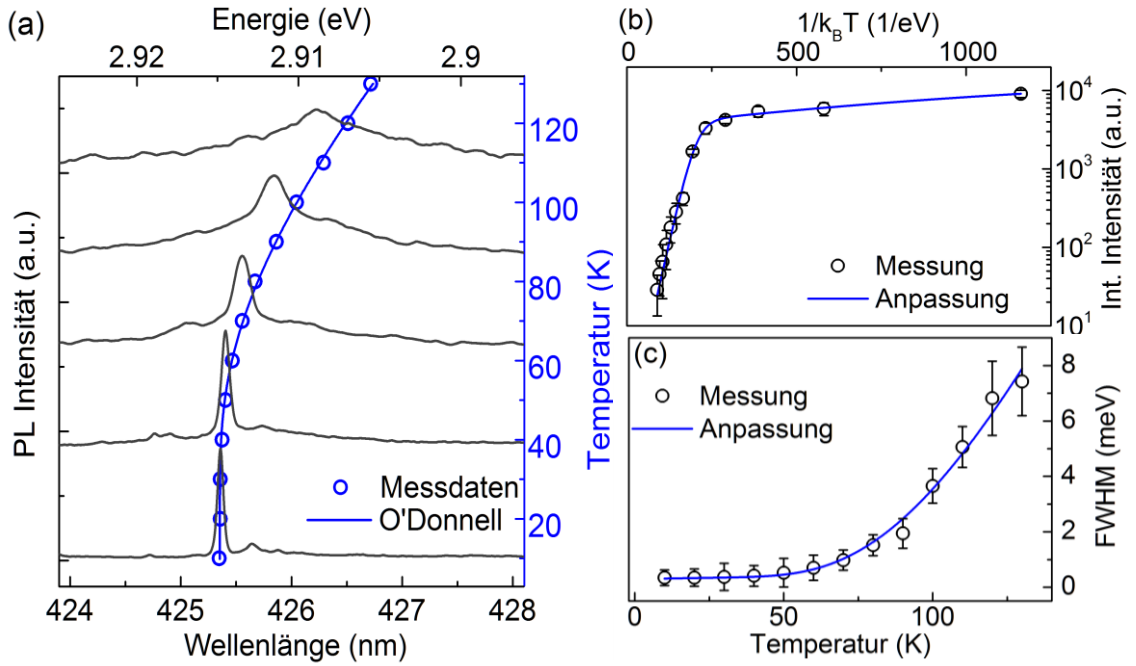
---

Große Energieunterschiede der Bandlücken verschiedener Nitrid-Halbleiterverbindungen versprechen Thermalisierungseffekte zu reduzieren und Lumineszenz einzelner QP auch bei höheren Temperaturen beobachten zu können.

Beginnend bei 10 K wurde die Temperatur stetig erhöht und die PL eines isolierten QP-Exzitons detektiert. Abbildung 6-3 (a) zeigt eine Temperaturserie für einen Bereich zwischen 10 K bis 130 K eines einzelnen QP-Exzitons. Es sind exemplarisch fünf einzelne Spektren für die Temperaturen von 20 K, 50 K, 70 K, 90 K und 110 K (von unten nach oben) dargestellt. Aus Gründen der besseren Übersicht wurden die Spektren jeweils normiert und entsprechend ihrer Temperatur vertikal zueinander versetzt. Mit steigender Temperatur sind folgende Eigenschaften zu beobachten:

- Die Lumineszenz-Energie schiebt mit zunehmender Temperatur rot, wobei im Bereich zwischen 10 K und 40 K die Energiepositionen noch annähernd konstant bleiben.
- Mit steigender Temperatur bilden sich Phononen-Seitenbanden aus und die Halbwertsbreite (FWHM) der Exziton-Linie nimmt zu.
- Die Intensität des Lumineszenzsignals nimmt mit steigender Temperatur ab.

Für die temperaturbedingte Energieverschiebung existieren verschiedene Beschreibungen. Varshni postulierte für die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke eine empirische Gleichung [86]. Eine alternative Beschreibung lieferte O'Donnell et al., wo Anhand eines empirischen Ansatzes die Änderung der Bandlücke mit steigender Temperatur durch intrinsische Elektron-Phonon-Wechselwirkungen beschrieben wird [87]:



**Abbildung 6-3:** (a) Temperaturserie eines einzelnen InGaN QP – Exzitons. Für eine bessere Übersicht sind die Spektren normiert und vertikal verschoben. Zusätzlich sind die ermittelten Energiepositionen (Kreise) sowie eine Anpassung nach Gleichung ( 66 ) (Linie) eingezeichnet. (b) Arrhenius Graph der integrierten Intensität des Exzitons gegenüber der inversen thermischen Energie. Die blaue Linie stellt eine Anpassung nach Gleichung ( 67 ) mit zwei Aktivierungsenergien dar. (c) Halbwertsbreite als Funktion der Temperatur mit einer Anpassung nach ( 68 ).

$$E_G(T) = E_G(0) - S\langle\hbar\omega\rangle \left[ \coth \frac{\langle\hbar\omega\rangle}{2k_B T} - 1 \right] \quad (66)$$

$E_g(0)$  ist die Bandlücke bei einer Temperatur von 0 K,  $S$  eine dimensionslose Kopplungskonstante und  $\langle\hbar\omega\rangle$  ist eine mittlere Phononenenergie. In Abbildung 6-3 (a) sind die ermittelten Energiepositionen (blaue Punkte) sowie eine Anpassungen nach Gleichung ( 66 ) (blaue Linie) gezeigt. Die Anpassung liefert eine mittlere Phononenenergie  $\langle\hbar\omega\rangle = (23.2 \pm 0.7)$  meV mit einer Anpassungskonstante von  $S = 1.41 \pm 0.10$ .

Die integrierten Intensitäten des QP-Exzitons sind in Abbildung 6-3 (b) in einer Arrhenius-Darstellung aufgetragen, d. h. die Intensität als Funktion der inversen thermischen Energie  $1/k_B T$ . Für die niedrigste Temperatur von 10 K (entsprechend einer großen inversen thermischen Energie von 1160 1/eV) ist die Intensität maximal und nimmt kontinuierlich mit steigender Temperatur ab. Ab 50 K ( $\cong 232$  1/eV) ist die Abnahme der Intensität deutlich stärker ausgeprägt und ab 130 K ( $\cong 89$  1/eV) verschwindet diese komplett. Mit steigender Temperatur wird die thermische Aktivierung der dominierende Effekt, d. h. immer mehr Ladungsträger werden

thermisch in das 2D-Kontinuum außerhalb des QP-Einschlusspotentials angeregt. Dies kann für ein  $n$ -Niveau-System wie folgt beschrieben werden [88]:

$$I(T) = I_0 \left( 1 + \sum_n B_n \exp\left(-\frac{E_{a,n}}{k_B T}\right) \right)^{-1} \quad (67)$$

Dabei sind  $I_0$  die Intensität bei  $T = 0$  K,  $n$  die Anzahl der Zustände und  $E_{a,n}$  die Aktivierungsenergie vom Grundzustand in den  $n$ -ten angeregten Zustand. Die Parameter  $B_n$  beschreiben das Verhältnis von strahlender Lebensdauer des Exziton  $\tau$  zu einer effektiven Phonon-Streuzeit der Ladungsträgeraktivierung  $\tau_0$  [89]. Eine Anpassung der Funktion auf die Messdaten liefert eine Abschätzung für die Aktivierungsenergien der Exzitonen in angeregte Zustände. Häufig wird das einfache Modell mit nur einem angeregten Zustand und einer Aktivierungsenergie verwendet. In diesem Fall ist für eine adäquate Beschreibung der Messdaten die Verwendung von zwei angeregten Zuständen mit entsprechend zwei Aktivierungsenergien nötig. Die Anpassung von Gleichung ( 67 ) ist durch die blaue Linie in Abbildung 6-3 (b) mit den Aktivierungsenergien  $E_{a,1} = (1.5 \pm 0.7)$  meV und  $E_{a,2} = (44.3 \pm 6.4)$  meV wiedergegeben.

Die hier ermittelten Werte der Aktivierungsenergien sind kleiner als die Energien der optischen Phononen für InN von  $\sim 73$  meV und für GaN von  $\sim 91$  meV [90]. Daraus lässt sich schließen, dass die thermische Aktivierung der dominierende Mechanismus für die Intensitätsabnahme ist.

Abbildung 6-3 (c) zeigt die Entwicklung der Halbwertsbreite als Funktion der Temperatur. Für  $T < 40$  K ist nur ein geringer Anstieg der Halbwertsbreite von  $340 \mu\text{eV}$  auf  $410 \mu\text{eV}$  zu beobachten. Mit steigenden Temperaturen nimmt die Phononenkopplung zu. Bei  $T = 130$  K erreicht die FWHM ihren Maximalwert von  $7.4$  meV. Ursache der Verbreiterung liegt in der Dephasierung des Exziton-Zustandes. Dies wird maßgeblich bestimmt durch strahlende Rekombination, thermische Aktivierung und elastische Phononenstreuung. Prinzipiell ist die Exziton-Phonon-Streuung aufgrund der diskreten Zustandsdichte und der damit verbundenen reduzierten Anzahl von möglichen Endzuständen limitiert. Auger-Prozesse ermöglichen trotzdem eine Kopplung an akustische Phononen, was in einer temperaturabhängigen Verbreiterung der Emission resultiert. Folgender Ansatz beschreibt die Linienbreite als Funktion der Temperatur [91]:

$$\Gamma(T) = \Gamma_0 + \gamma_{ac} T + \gamma_a \exp\left(-\frac{E_a \Gamma}{k_B T}\right) \quad (68)$$

$\Gamma_0$  ist die homogene Linienbreite. Der zweite Term berücksichtigt eine lineare Verbreiterung bei kleinen Temperaturen durch akustische Phononen und der dritte Term beschreibt die Dephasierung aufgrund der Anregung von Ladungsträgern in

das umgebende Material. Eine Anpassung der Funktion an die Messdaten liefert für  $\Gamma_0 = (297 \pm 31) \mu\text{eV}$ ,  $\gamma_{ac} = (1.74 \pm 0.8) \mu\text{eV/K}$ ,  $\gamma_a = (135 \pm 47.8) \text{ meV}$  und für die Aktivierungsenergie  $E_{act} = (32.6 \pm 5.5) \text{ meV}$ .

Die Aktivierungsenergie erlaubt eine Abschätzung für die Tiefe der lokalisierten Zustände. Der ermittelte Wert aus der integrierten Intensität von 44.3 meV liegt in der Größenordnung mit der Aktivierungsenergie von 32.6 meV aus der Entwicklung der Halbwertsbreite. Die Werte sind vergleichbar mit bisher bekannten Literaturwerten anderer InGaN QP, welche z. B. einer Aktivierungsenergie von 31 meV berichteten [91].

---

### 6.2.3 Polarisations-eigenschaften

---

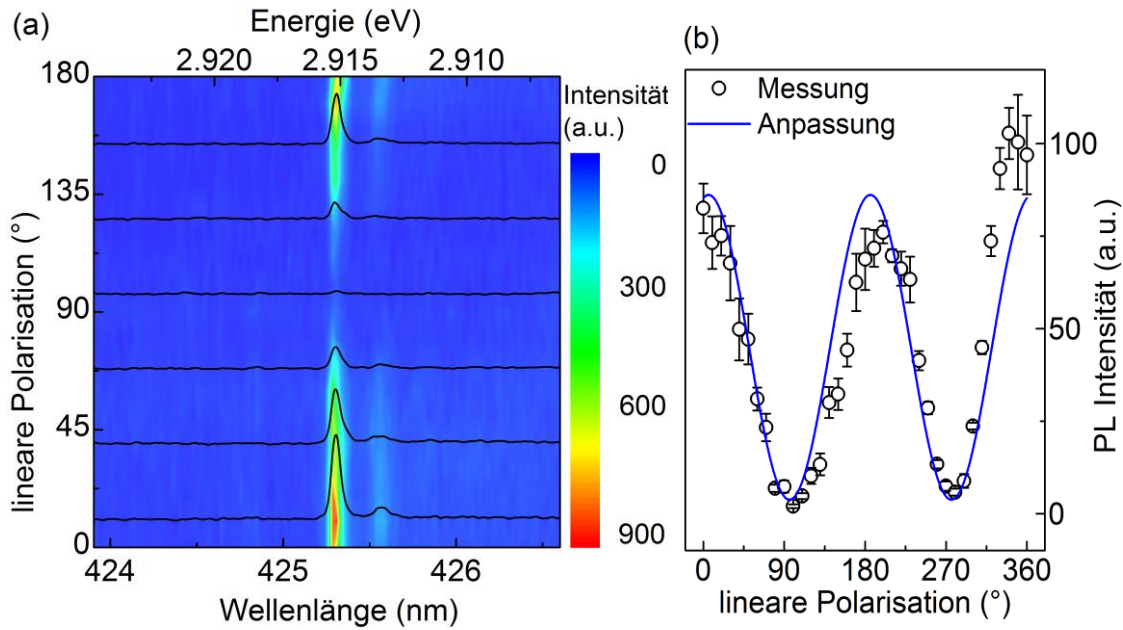
Polarisationsanalysen erlauben Rückschlüsse auf Symmetrie und Kristalleigenschaften der Probe. Dazu wurde zunächst für ein einzelnes InGaN QP-Exziton eine Serie von Spektren mit verschiedenen linearen Polarisations-einstellungen aufgenommen. Zwischen Linearpolarisator und Eingangsspalt des Monochromators wurde zusätzlich ein  $\lambda/4$ -Plättchen mit konstanter Phase von  $45^\circ$  zum Linearpolarisator platziert um Einflüsse des Beugungsgitters zu unterdrücken.

Abbildung 6-4 (a) zeigt eine Serie eines QP-Exzitons in Konturdarstellung bei einer Wellenlänge von 425.31 nm ( $\cong 2.915 \text{ eV}$ ) aufgenommen für lineare Polarisations-einstellungen zwischen  $0^\circ$  bis  $180^\circ$ . Blaue Bereiche bedeuten geringe PL Intensität und rote Bereiche hohe Intensität. Die Polarisator-Einstellung von  $0^\circ$  wurde frei gewählt. Zusätzlich sind einzelne Spektren für lineare Polarisations-einstellungen von  $10^\circ$ ,  $40^\circ$ ,  $70^\circ$ ,  $100^\circ$ ,  $130^\circ$  und  $160^\circ$  eingezeichnet. Es ist klar ersichtlich, dass im Bereich um  $100^\circ$  die Lumineszenz fast komplett verschwindet. Dies wird verdeutlicht, in dem man die integrierte Intensität als Funktion der linearen Polarisations-einstellung betrachtet, dargestellt in Abbildung 6-4 (b).

Für  $0^\circ$  hat die PL-Intensität des Exzitons ein lokales Maximum und nimmt mit weiter drehender linearer Polarisationsrichtung ab bis bei ca.  $100^\circ$  ein lokales Minimum herrscht. Anschließend nimmt diese wieder zu, bis schließlich bei ca.  $200^\circ$  erneut ein lokales Maximum erreicht ist. Der periodische Verlauf der Intensität setzt sich fort und lässt sich durch eine Sinus-Funktion beschreiben:

$$I(\theta) = a + b \cdot \sin^2(\theta - \theta_0) \quad (69)$$

Dabei sind  $a$  und  $b$  das Minimum bzw. Maximum der PL-Intensität. Eine Anpassung der Messdaten mit einer Periode von  $90^\circ$  und einer Phasenverschiebung von  $\Theta_0 =$



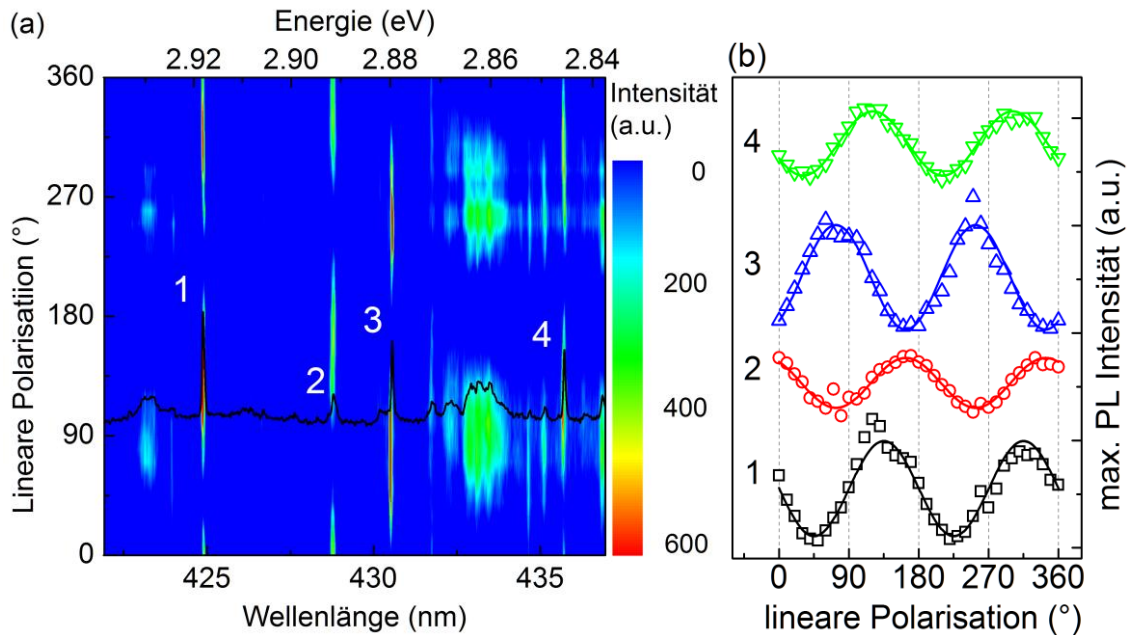
**Abbildung 6-4:** (a) Lineare Polarisationsserie eines QP – Exzitons in Konturdarstellung. Blaue Bereiche spiegeln geringe PL Intensität und rote Bereiche hohe Intensität wieder. (b) Ermittelte PL Intensität als Funktion der linearen Polarisation. Die blaue Linie ist eine Anpassung nach Gleichung ( 69 ) mit einem linearen Polarisationsgrad von 95.8 %.

140° ist zusätzlich als blaue Linie in Abbildung 6-4 (b) gezeigt. Aus den Maxima und Minima lässt sich der Grad der linearen Polarisation (GLP) bestimmen:

$$GLP = \frac{a - b}{a + b} \quad (70)$$

Für dieses Exziton berechnet man einen Grad der linearen Polarisation von 95.8 %. Interessanterweise wurde keine Feinstrukturaufspaltung beobachtet und die Energieposition ist im Rahmen des Auflösungsvermögens von  $\sim 80 \mu\text{eV}$  nahezu konstant. Statistische Untersuchungen sollen klären, ob die starke lineare Polarisation der Exziton-Linie typisch für diese InGaN QP ist.

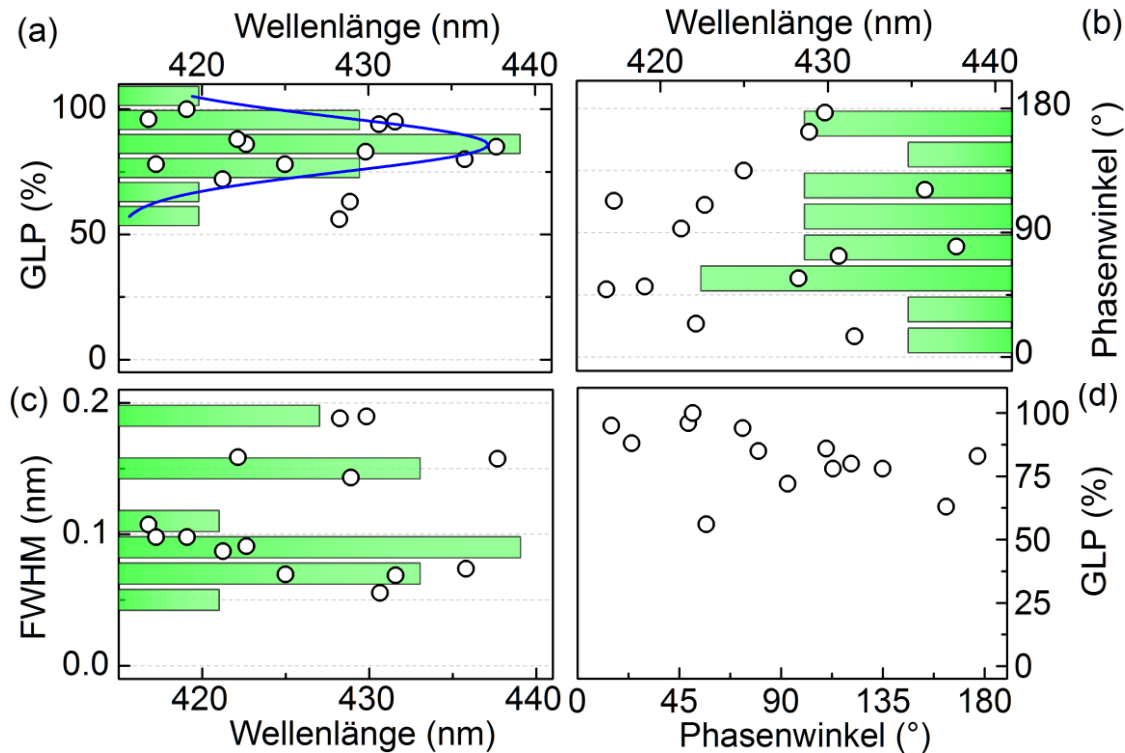
Exemplarisch ist die gesamte Polarisationsserie von 0° bis 360° mit einer Schrittweite von 5° für eine Mesa mit einem Durchmesser von 1  $\mu\text{m}$  in Abbildung 6-5 (a) in Konturdarstellung abgebildet. Blaue Bereiche spiegeln geringe PL Intensität und rote Bereiche entsprechend hohe Intensität wieder. Zusätzlich ist das Spektrum für eine Polarisator-Einstellung von 100° eingezeichnet (schwarze Linie). Für die Auswertung wurden hier vier Exziton-Peaks ausgewählt, welche entsprechend gekennzeichnet sind.



**Abbildung 6-5:** (a) Konturdarstellung der linearen Polarisation einer Mesa mit 1  $\mu\text{m}$  Durchmesser. Blaue Bereiche stellen geringe Intensität und rote Bereiche entsprechend hohe Intensität dar. Zusätzlich ist das Spektrum für  $100^\circ$  eingezeichnet. (b) Intensitäten der vier gekennzeichneten Peaks mit jeweils einer Sinus-Anpassung nach ( 69 ).

Die integrierten Intensitäten dieser Peaks sind in Abbildung 6-5 (b) als Funktion der Polarisierungseinstellung aufgetragen und vertikal zueinander verschoben. Alle Emissionslinien haben bei einer kompletten Umdrehung des Polarisators je zwei Maxima und zwei Minima mit einer Periode von  $180^\circ$ . Deutlich zu erkennen ist die unterschiedliche Phasen für jeden Exziton-Peak. Anpassungen nach Gleichung ( 69 ) liefern für Exziton 1 =  $90.3^\circ$ , für Exziton 2 =  $118.6^\circ$ , Exziton 3 =  $28.4^\circ$  und Exziton 4 =  $76.3^\circ$ . Die Intensitäten und damit auch der Grad der Polarisierung variieren hier zwischen 84.6 % für Exziton 2 bis zu 96.9 % für Exziton 3.

Ursache der ausgeprägten linearen Polarisation ist die anisotrope Austauschwechselwirkung von eingeschlossenen Elektronen und Löchern. Das GaN Barrierenmaterial hat eine kleinere Gitterkonstante als die InGaN QP und führt zu vornehmlich kompressiven, hydrostatischen und biaxialen Verspannungen. Dies würde bei Zinkblenden-Strukturen die Entartung von Schwerloch- und Leichtlochband aufheben. Bei Wurtzit-Strukturen hingegen ist das oberste Band bereits in ein A- und B-Band aufgespalten. Die Verspannung beeinflusst die Aufspaltung in diesem Fall nur gering. So konnte gezeigt werden, dass eingeschlossene Lochzustände hauptsächlich A-artig sind und erst angeregte Zustände B-artig. Dies führt zu einer starken linearen Polarisation von Exziton-Grundzuständen [92].



*Abbildung 6-6: Punkte entsprechen Messdaten, Balken den relativen Häufigkeiten. (a) Grad der linearen Polarisation (GLP), (b) Phasenwinkel und (c) Halbwertsbreite als Funktion der Lumineszenzwellenlänge. (d) GLP als Funktion des Phasenwinkels.*

Weiterhin stellt sich die Frage, ob es einen Zusammenhang zwischen der Emissionswellenlänge bzw. -energie und den Polarisationsseigenschaften gibt? Dafür wurde die Statistik der Polarisationsseigenschaften von weiteren Exziton-Linien näher betrachtet. Die Emissionswellenlänge ist zum einen abhängig von der Größe der QP und zum anderen von der In-Konzentration. In Abbildung 6-6 (a) ist der GLP als Funktion der Emissionswellenlänge dargestellt. Dieser variiert zwischen 56 % bei 428.3 nm und 100 % bei 419.1 nm. Der GLP ist willkürlich verteilt und es konnte keine systematische Abhängigkeit zur PL-Wellenlänge bzw. Energie beobachtet werden. Betrachtet man die relativen Häufigkeiten des GLP, so sind diese normalverteilt, was das Balkendiagramm in Abbildung 6-6 (a) widerspiegelt. Die Normalverteilung (Gausskurve, blaue Linie) liefert einen mittleren GLP von 84.8 % mit einer Halbwertsbreite von 22.4 %.

Interessant ist nun, ob die Phase und somit die Richtung der Polarisation eine Vorzugsrichtung besitzt. In anderen Materialsystemen, wie z. B. bei InP/GaInP QDs wurde beobachtet, dass Polarisationsseffekte proportional zu einer oder mehreren Kristallachsen des Substrates sind. Dies ist der Fall, wenn z. B. die QP nicht symmetrisch sind sondern entlang einer Kristallachse elongiert sind. Bei InP QP in



GaInP tritt häufig eine Elongation entlang der [-110] und [110]-Kristallachsen auf, was zu einer lineare Polarisation entlang dieser Richtungen führt [93].

Dafür wurde der Phasenwinkel als Funktion der PL-Wellenlänge in Abbildung 6-6 (b) aufgetragen. Dieser variiert zwischen  $15^\circ$  für 431.6 nm und  $175^\circ$  für 429.8 nm. Es ist weder eine eindeutige Abhängigkeit von der Emissionswellenlänge noch eine Häufung für einen bestimmten Phasenwinkel zu erkennen. Somit herrscht also keine Vorzugsrichtung der Polarisation entlang einer bestimmten Kristallorientierung. Dies ist insofern ungewöhnlich, da z. B. Wikelnkemper et al. bei InGaN QP lineare Polarisation entlang der [11-20] und [-1100] Kristallachsen beobachtet haben. Allerdings zeigen die QP dort auch bis zu fünf PL-Linien, was hier nicht der Fall ist [94]. Bardoux et al. untersuchten die Polarisationseigenschaften von GaN QP in AlN. Diese zeigen, wie auch hier beobachtet wurde, eine stark ausgeprägte lineare Polarisation mit einem mittleren Polarisationsgrad von 65 % und zufällig verteilten Polarisationsrichtungen [95].

Abbildung 6-6 (c) stellt die FWHM als Funktion der Emissionswellenlänge dar. Diese variiert zwischen 0.055 nm bei einer Wellenlänge von 430.6 nm (was einer FWHM von  $370 \mu\text{eV}$  bei einer Energie von 2.879 eV entspricht) und 0.185 nm bei einer Wellenlänge von 429.8 nm (entspricht 1.27 meV bei 2.884 eV). Ebenfalls wurden die relativen Häufigkeiten bestimmt, was zusätzlich als Balkendiagramm eingezeichnet ist. Aus den Messdaten wurde eine mittlere Halbwertsbreite von  $(772 \pm 303) \mu\text{eV}$  bei einer mittleren Emissionsenergie von  $(2.910 \pm 0.045) \text{eV}$  bestimmt. Vergleichbare Werte wurden von z. B. Sebald et al. auch an InGaN QP beobachtet [96]. Insgesamt konnte kein signifikanter Zusammenhang zwischen Emissionswellenlänge und Halbwertsbreite sowie zwischen Halbwertsbreite, GLP und Phase festgestellt werden.

Eine mögliche Ursache der im Vergleich zu anderen Materialsystemen relativ spektral breiten Emissionslinien können zum einen Dephasierungsprozesse durch akustische Phononen sein, wie im vorangegangenen Abschnitt beschrieben. Eine weitere Möglichkeit können Ladungsträgerfluktuationen sein, welche das innere elektrische Feld merklich beeinflussen und einer spektrale Verschiebung hervorrufen. Dies wurde theoretisch für Nitrid-QP postuliert [97].

Abschließend wird noch der Zusammenhang zwischen dem Phasenwinkel und dem GLP näher betrachtet (Abbildung 6-6 (d)). Hier ist ein leichter Trend zu erkennen, dass bei kleinem Phasenwinkel ein größerer linearer Polarisationsgrad herrscht.

Aufgrund der Polarisationseigenschaften sind diese Nitrid-QP für Experimente mit verschränkten Photonen ungeeignet, da keine polarisationsverschränkten Photonenpaare mithilfe der Biexziton-Kaskade realisiert werden können, wie z. B. für InAs/GaAs QP gezeigt wurde [98]. Andererseits kann die Eigenschaft der

linearen Polarisierung aber für Experimente zur Quantenkryptographie verwendet werden [99], wo mittels  $\lambda/2$ - und  $\lambda/4$ -Plättchen alle nötigen Polarisierungen erzeugt werden können.

---

#### 6.2.4 Autokorrelation eines einzelnen InGaN QP

---

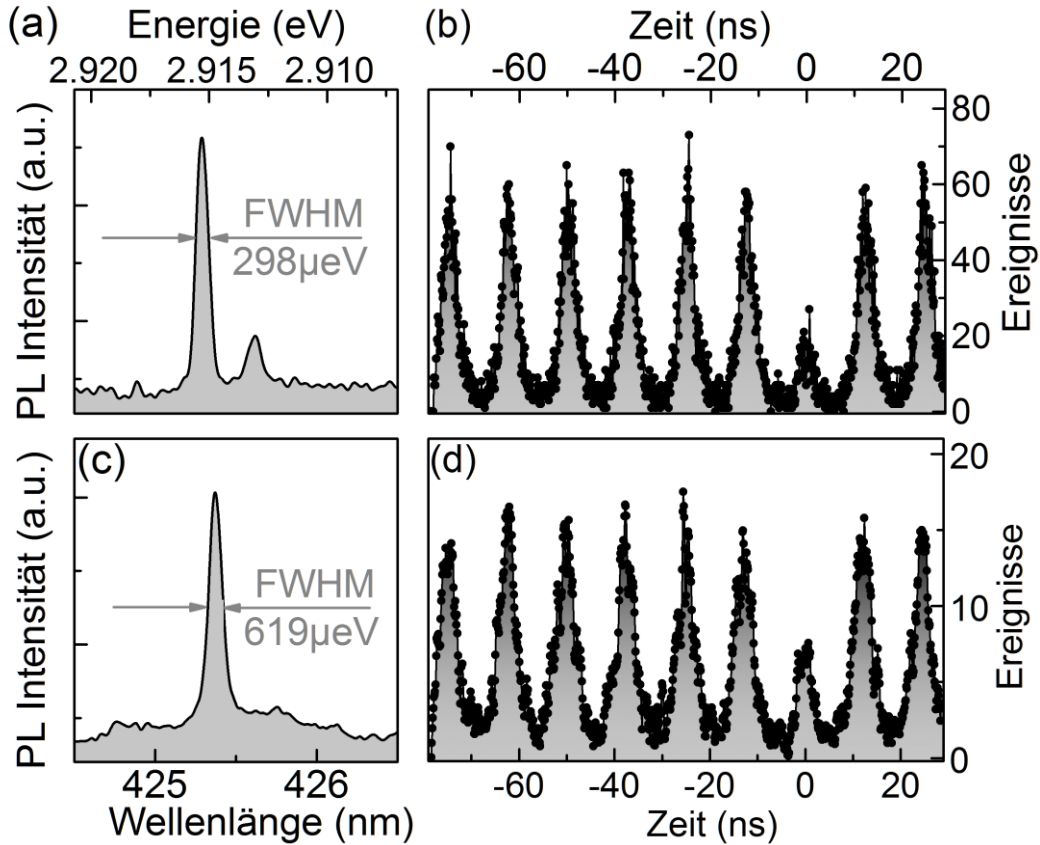
Den Abschluss bilden, wie in den vorangegangenen Kapiteln auch, Untersuchungen der Photonenstatistik einzelner QP-Exzitonen. Dazu wurden Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung bei variierenden Temperaturen durchgeführt.

Abbildung 6-7 (a) zeigt ein  $\mu$ PL-Spektrum eines einzelnen InGaN Exzitons bei einer Temperatur von  $T = 10$  K. Aus der Anpassung einer Lorentz-Funktion konnte eine FWHM von  $298 \mu\text{eV}$  bestimmt werden. Über einen Klappspiegel im Monochromator wird die Emissionslinie auf ein HBT-Messaufbau projiziert. Da die Emission im blauen Spektralbereich um  $425 \text{ nm}$  liegt, wurden spezielle APDs eingesetzt, welche eine interne Effizienz von  $60 \%$  in diesem Bereich haben. Im Vergleich dazu haben Standard Si-APDs bei gleicher Wellenlänge lediglich eine interne Effizienz von  $16 \%$ .

In Abbildung 6-7 (b) ist das Histogramm der zugehörigen Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung unter gepulster Anregung mit einer Frequenz von  $80 \text{ MHz}$  dargestellt. Bei  $t = 0 \text{ ns}$  ist eine deutliche Unterdrückung der Ereignisse zu beobachten. Während für alle anderen Pulse im Mittel ca.  $60$  Ereignisse gezählt wurden, so sind es bei  $0 \text{ ns}$  weniger als  $20$  Ereignisse. Um den  $g^{(2)}(0)$ -Wert zu bestimmen, werden die Ereignisse für jeweils ein Zeitintervall von  $\pm 6.25 \text{ ns}$  um jedes Peak-Maximum gezählt und miteinander verglichen. In diesem Fall errechnet man daraus einen Wert von  $g^{(2)}(0) = 0.22 \pm 0.03$ . Dieser ist deutlich kleiner als eins und ein klares Indiz für Einzelphotonenemission. Eine reine Einzelphotonenquelle hat einen Wert von  $g^{(2)}(0) = 0$ . Der hier gemessene endliche Wert kann verschiedene Ursachen haben.

Zum einen unterliegt dem Spektrum ein konstanter Untergrund. Eine weitere Ursache liegt darin, dass neben der Hauptemissionslinie bei  $425.3 \text{ nm}$  eine weitere Linie bei  $425.6 \text{ nm}$  zu sehen ist, welcher dem geladenen Exziton zugeordnet werden konnte (siehe  $\mu$ PL in Abhängigkeit der Anregungsleistung). Gestreute Lumineszenz von diesem Peak kann zu Multiphotonendetektion führen und damit zu einem endlichen  $g^{(2)}(0)$ -Wert.

Aus dem  $g^{(2)}(0)$ -Wert lässt sich die Einzelphotonen-Emissionsrate analog zu Abschnitt 4.1 abschätzen. Die Gesamteffizienz des Messaufbaus wurde experimentell bestimmt und beträgt in diesem Fall  $\eta_s = 1.41 \cdot 10^{-3}$ . Während der



**Abbildung 6-7:** (a)  $\mu$ PL Spektrum eines einzelnen InGaN Exzitons mit einer Halbwertsbreite von 298  $\mu$ eV bei 10 K. (b) Zugehöriges Histogramm der Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung für 10 K unter gepulster Anregung. (c)  $\mu$ PL Spektrum des gleichen Exzitons bei einer Temperatur von 50 K und einer Halbwertsbreite von 619  $\mu$ eV. (d) Zugehöriges Histogramm der Autokorrelationsmessung bei 50 K unter gepulster Anregung

Autokorrelationsmessung betrug die Zählrate an den APDs je  $n_{APD} = 3.3 \cdot 10^3$  Photonen/s. Daraus errechnet sich nach Gleichung ( 57 ) eine Einzelphotonenemissionsrate von 2.36 MHz. Berücksichtigt man die Anregungsfrequenz des Lasers von 80 MHz, so erhält man nach Gleichung ( 58 ) eine Einzelphotoneneffizienz von 2.9 %. Die maximale Auskoppelleffizienz von Photonen am Übergang von GaN/Luft kann mit Gleichung ( 60 ) zu 3.7 % abgeschätzt werden für einen Brechungsindex von GaN = 2.5.

Nun stellt sich die Frage, bis zu welchen Temperaturen die Emission einzelner Photonen beobachtet werden kann bzw. ob sich der  $g^{(2)}(0)$ -Wert ändert? Dafür wurde in Schritten von 10 K die Autokorrelation bis zu einer Temperatur von 50 K gemessen. Das Spektrum für  $T = 50$  K ist in Abbildung 6-7 (c) und das zugehörige Histogramm der Autokorrelationsmessung in Abbildung 6-7 (d) dargestellt. Aufgrund bereits diskutierter Mechanismen kommt es zu einer Verbreiterung der Exziton-Linie auf 619  $\mu$ eV mit Erhöhung der Temperatur. Außerdem nimmt die

Untergrundemission zu, welche das Signal-zu-Rausch Verhältnis verschlechtert. Im zugehörigen Histogramm haben die Pulse im Durchschnitt eine Höhe von ca. 15 Ereignissen und bei 0 ns eine Höhe von 6 Ereignissen. Durch zählen aller Ereignisse in den jeweiligen Zeitintervallen berechnet sich ein Wert von  $g^{(2)}(0) = 0.33 \pm 0.04$ . Dieser ist zwar um 50 % schlechter als bei 10 K, aber immer noch kleiner als 0.5, was der Grenze für Einzelphotonenemission entspricht.

Leider konnten keine weiteren Autokorrelationsmessungen für Temperaturen  $> 50$  K durchgeführt und somit keine Einzelphotonenemission nachgewiesen werden. Die Lumineszenz-Intensität nimmt ab 50 K stark ab (siehe Abbildung 6-3, Arrhenius-Plot aus Temperaturserie) und die Zählraten der APDs werden zu gering. Bei anderen Nitrid-Verbindungshalbleitern wurde für GaN QP in AlN Barrieren bereits Einzelphotonenemission bis zu einer Temperatur von 200 K demonstriert [100]. Es konnte auch kein systematischer Zusammenhang zwischen der Temperatur und dem  $g^{(2)}(0)$ -Wert im Bereich zwischen 10 K und 50 K festgestellt werden.

## 7 Quantenpunkt-Solarzellen

*In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse der optischen, elektronischen und spektralen Messungen an Solarzellen präsentiert, in denen AlGaInAs QP integriert wurden.*

*Zu Beginn wird in Abschnitt 7.1 das Konzept von Zwischenband-Solarzellen näher erläutert. Dieses verspricht eine Steigerung der Effizienz durch das Einbringen eines Zwischenbandes in die Bandlücke eines Halbleiters, um den spektralen Absorptionsbereich zu erweitern.*

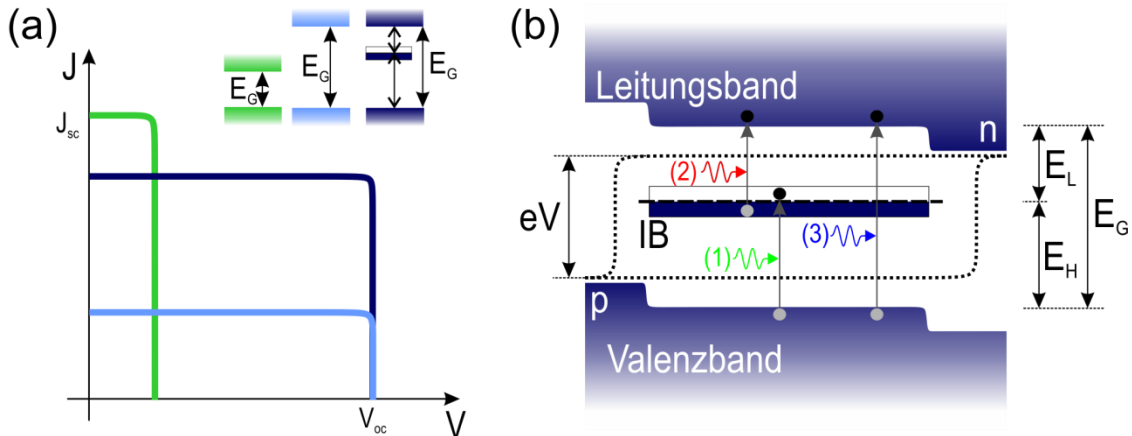
*In Abschnitt 7.2 werden anhand von Strom-Spannung-Kennlinien unter Beleuchtung wichtige Solarzellen-Parameter der Proben bestimmt. Die Photolumineszenz der QP wird in Abschnitt 7.3 dargestellt und diskutiert. In Abschnitt 7.4 wird auf die spektrale Empfindlichkeit bzw. die externe Quanteneffizienz näher eingegangen. Das Funktionsprinzip von Zwischenband-Solarzellen wird durch einen Zwei-Photonen-Absorptionsprozess in Abschnitt 7.5 demonstriert. Es wird gezeigt, dass die Absorption von zwei Photonen mit jeweils einer Energie kleiner der Bandlücke des Matrixmaterials einen zusätzlichen Anteil zum Photostrom beiträgt. Den Abschluss des Kapitels bilden Bandstrukturberechnungen in Abschnitt 7.6, welche die experimentellen Ergebnisse qualitativ beschreiben und einen Vorschlag für zukünftige Proben aufzeigen.*

### 7.1 Zwischenband Solarzellen

Das Funktionsprinzip von Solarzellen, Licht in elektrische Energie umzuwandeln, wird durch zwei Mechanismen besonders limitiert:

- Zum einen können Photonen mit einer Energie kleiner als die Bandlücke  $E_G$  nicht einfach absorbiert werden.
- Zum anderen führen Thermalisierungseffekte von Ladungsträgern dazu, dass bei der Absorption von Photonen mit einer Energie viel größer als die Bandlücke ( $E_{Ph} > E_G$ ) die Überschussenergie in Form von Phononen an das umgebende Material abgegeben wird.

Deshalb ist es wichtig bei Solarzellen bestehend aus einem Volumenhalbleiter für eine effektive Energieumwandlung von Photonen mit einer spezifischen Energiebande die Bandlücke passend zu wählen. Einerseits wäre nach dem oben erwähnten ersten Verlustmechanismus ein Halbleiter mit sehr kleiner Bandlücke zunächst ideal, wo viele Elektronen erzeugt werden können. Andererseits sollte für



**Abbildung 7-1:** (a) Idealisierte Strom-Spannung-Kennlinien für eine kleine Bandlücke (grün), eine große Bandlücke (hellblau) und mit einem Zwischenband (dunkelblau). (b) schematische Darstellung des Bandverlaufes einer IBSC. In der Bandlücke zwischen Leitungsband und Valenzband befindet sich ein Zwischenband (IB).

eine Reduzierung des oben genannten zweiten Verlustmechanismus ein Halbleiter mit einer großen Bandlücke verwendet werden, wodurch aber nur noch wenige Photonen des Sonnenspektrums für die Generierung freier Elektronen zur Verfügung stehen. Die resultierenden Strom-Spannung-Charakteristiken für beide Grenzfälle sind schematisch in Abbildung 7-1 (a) als grüne und hellblaue Linie skizziert. Im Jahre 1960 zeigten Shockley und Queisser aus thermodynamischen Überlegungen heraus, dass Solarzellen basierend auf einem Halbleiter p-n-Übergang nur einen maximalen Wirkungsgrad von 31 % unter nichtkonzentrierter bzw. 41 % unter maximal konzentrierter<sup>16</sup> Bestrahlung erreichen können [6]. Seither wurde eine Vielzahl von neuen Konzepten für Solarzellen vorgestellt, um dieses Limit zu überwinden. Das Ziel ist möglichst viele freie Ladungsträger mit einer großen Energie zu erzeugen. Die verschiedenen Konzepte sind auch bekannt als „Solarzellen der dritten Generation“ [7, 101]. Zum Beispiel kombiniert man in Mehrfachsolarzellen mehrere Halbleitermaterialien mit unterschiedlichen Bandlücken, wodurch Thermalisierungs- als auch Transmissionsverluste minimiert und dadurch der Wirkungsgrad signifikant gesteigert werden kann. Berechnungen haben gezeigt, dass für Mehrfachsolarzellen bestehend aus beliebig vielen Einzelzellen unter konzentrierter Bestrahlung theoretisch Wirkungsgrade von bis zu 87 % möglich sind [102]. Experimentell erreicht werden aktuell Wirkungsgrade bis zu 44 % [103].

<sup>16</sup> Unter Berücksichtigung der Sonnengeometrie und -entfernung trifft die Strahlung mit einem Raumwinkel von  $\Omega_{\text{Sonne}} \sim 7 \cdot 10^{-5}$  auf. Eine Solarzelle hingegen emittiert in den gesamten Halbraum, d. h.  $\Omega_{\text{Zelle}} = \pi$ . Eine Fokussierung der Strahlung vergrößert den Raumwinkel aus dem die Strahlung absorbiert werden kann auf maximal  $\Omega_{\text{Sonne}} = \pi$ , was einem Konzentrationsfaktor von  $\sim 46000$  entspricht.

Während der letzten Jahre wurde der Fokus der Solarzellenforschung vermehrt auf das Lichtmanagement der einfallenden Photonen gelegt, um deren Effizienz zu steigern. Ein Beispiel hierfür ist das Gebiet der Plasmonik, welches unter Verwendung von Strukturen und optischen Elementen mit einer Ausdehnung kleiner der Wellenlänge der einfallenden Photonen sowohl den Einfang als auch den Einschluss von Photonen erhöht [104, 105].

Als Alternative stellten im Jahre 1997 Antonio Luque und Antonio Marti das Konzept der Zwischenband-Solarzelle (IBSC<sup>17</sup>) vor [106]. Zwischen Leitungs- (LB) und Valenzband (VB) eines Halbleiters wird dabei ein Zwischenband (IB) eingebracht, wodurch über einen Zwei-Photonen-Absorptionsprozess auch Photonen mit Energien kleiner der Bandlücke ( $E_{Ph} < E_G$ ) absorbiert werden können. Dies ist schematisch in Abbildung 7-1 (b) skizziert. Der theoretisch erreichbare Wirkungsgrad einer IBSC beträgt unter konzentrierter Beleuchtung 63.2 % bei einer Bandlücke von  $E_G = 1.95$  eV und den Sub-Bandlücken zwischen VB und IB von  $E_H = 1.24$  eV sowie zwischen IB und LB von  $E_L = 0.71$  eV [106]. Aktuelle Berechnungen haben gezeigt, dass die Effizienz auf bis zu 80 % gesteigert werden kann, wenn mehrere Zwischenbänder eingebracht werden [107].

Das IB Material ist eingebettet zwischen n- und p-dotierten Halbleitern, welche als selektive Kontakte von VB und LB nach außen dienen. Es bildet sich somit ein elektronisches Band mit freien Zuständen aus, welches in der Bandlücke des umgebenden Materials liegt. So können Photonen mit einer kleineren Energie als die der Bandlücke ( $E_{Ph} < E_G$ ) zuerst Elektronen vom VB in das IB und anschließend vom IB ins LB anheben, was schematisch in Abbildung 7-1 (a) durch den grünen (1) und roten (2) Pfeil angedeutet ist. So tragen neben den Primär-Photonen mit  $E_{Ph} > E_G$  (3), welche direkt Elektronen vom VB ins LB anheben zusätzlich niederenergetische Photonen zur Erzeugung freier Ladungsträger bei. Es kommt zu einem erhöhten Photostrom und einer damit verbundenen Effizienzsteigerung, wobei die Ausgangsspannung aufgrund der großen Bandlücke nicht zurückgeht. Aus thermodynamischen Überlegungen folgt direkt, dass die hohe Ausgangsspannung nur über einem Zwei-Photonen-Absorptionsprozess gewährleistet ist. Die Ausgangsspannung ist gegeben als Differenz zwischen den Elektronen-Quasi-Fermi-Niveaus (QFN) und Löcher-QFN, welche durch die Bandlücke limitiert sind und als gepunktete Linie in Abbildung 7-1 (b) angedeutet sind. Somit wird klar, dass das IB ein eigenes QFN benötigt, welches elektronisch von Elektronen-QFN und Löcher-QFN isoliert sein muss um die Ausgangsspannung zu erhalten.

Für die Realisierung von IBSC gibt es prinzipiell verschiedene Möglichkeiten: Ein Ansatz nutzt die Synthese von Materialien aus, wodurch es bei einigen Mischkristallverbindungen zu einer Aufspaltung des Leitungsbandes kommt und

---

<sup>17</sup> Intermediate Band Solar Cell

sich dadurch ein Zwischenband ausbildet. Dies wurde für GaNAsP Halbleiterverbindungen [108] als auch für einige II-VI-Verbindungen [109] mittels Photoreflexionsmessungen demonstriert. Ein anderer Ansatz nutzt Quantisierungseffekte von Nanostrukturen aus. Durch Einbringen von niederdimensionalen Strukturen, wie z. B. tiefe Störstellen [110] oder QP [111], können die Wellenfunktionen der zugehörigen Grundzustandsenergien überlappen und ein Zwischenband ausbilden, welches energetisch tiefer liegt als die Bandkante des LB. Das Prinzip der IBSC mit der Absorption von zwei Photonen mit einer Energie kleiner der Bandlücke wurde 2004 erstmals experimentell an InAs QP in GaAs gezeigt [112]. In den letzten Jahren haben weitere Gruppen einen erweiterten spektralen Absorptionsbereich im nahen Infrarotbereich durch Integration von QP beobachtet, allerdings nicht die Absorption von zwei Photonen mit einer Energie kleiner der Bandlücke [113-116].

Um einen möglichst großen Zwei-Photonen-Photostrom zu generieren ist es von entscheidender Bedeutung, dass die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen VB-IB sowie IB-LB maximal ist [117]. Für einen QP ist die Absorptionswahrscheinlichkeit proportional zum Übergangsmatrixelement, die nach Fermi's Goldene Regel in Dipol-Näherung durch

$$M_{i,f} = \langle \psi_i | -e\vec{r} \cdot \vec{E} | \psi_f \rangle \quad (71)$$

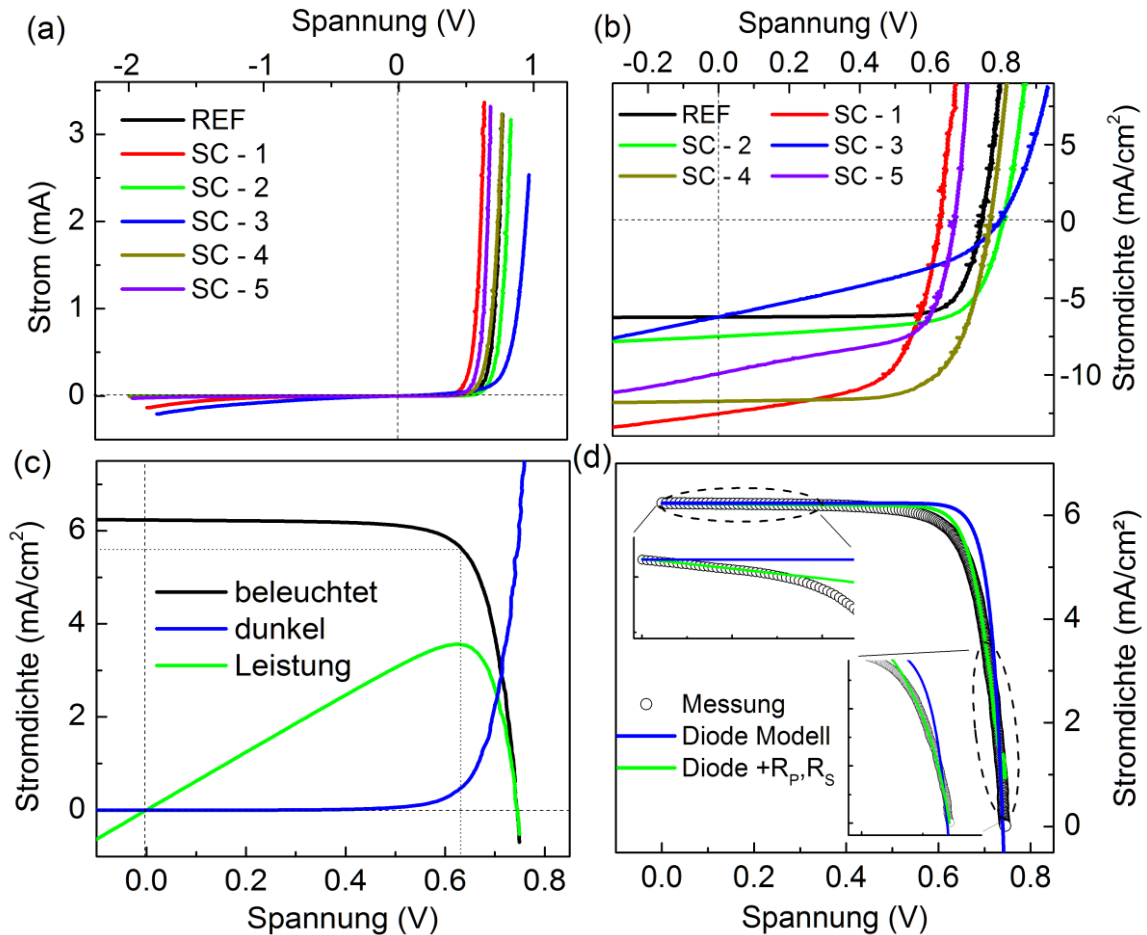
gegeben ist, wobei  $\psi_i$  und  $\psi_f$  die Elektronen-Wellenfunktionen von Anfangs- und Endzustand und  $\vec{r}$  die Position sowie  $E$  das elektrische Feld der einfallenden Strahlung sind [117]. Demzufolge ist das Matrixelement klein, wenn die Wellenfunktionen an verschiedenen Orten lokalisiert sind und groß wenn die Orte gleich sind bzw. ein großer Überlapp der Wellenfunktionen gegeben ist. Für den Fall von isolierten QP ist die Übergangswahrscheinlichkeit vom IB in das LB sehr gering, da die Wellenfunktionen im QP stark lokalisiert und im LB stark delokalisiert sind.

An diesem Punkt setzt der in dieser Arbeit gewählte Ansatz für die Realisierung von IBSC an, in dem durch gezieltes Einstellen der Quantisierungsenergien der QP eine Delokalisierung der Elektronen-Wellenfunktion erreicht werden soll. Außerdem hat das hier verwendete AlGaAs als Matrixmaterial mit einer Bandlücke von etwa 2 eV die nahezu ideale Energie für die Realisierung von effizienten IBSC.

## 7.2 Strom-Spannung-Charakterisierung

Zunächst werden wichtige Kenndaten der Solarzellen, wie z. B. Kurzschlussstromdichte, offene Klemmspannung oder auch Wirkungsgrad, durch die Messung der Strom-Spannung-Kennlinien unter Beleuchtung bestimmt. Die hier gewonnenen Werte wurden mit einer Xe-Hochdruckdampfampe ermittelt und unter gleichen Bedingungen durchgeführt, d. h. bei gleicher Temperatur und gleicher





**Abbildung 7-2:** Strom-Spannung-Kennlinien der verschiedenen Solarzellen (a) ohne und (b) mit Beleuchtung. (c) Absolute Stromdichte (schwarz), Dunkelkennlinie (blau) und errechnete Leistung (grün) der Solarzelle REF. (d) Messung (Punkte), Simulation nach Ein-Dioden-Modell (blau) und nach Ein-Dioden-Modell mit parasitären Parallel- und Serienwiderständen (grün).

Bestrahlungsstärke bzw. -fläche, so dass die Proben untereinander verglichen werden können. Detaillierte Informationen zur Herstellung und Unterschieden zwischen den Proben sind im Anhang zu finden.

Für alle Solarzellenproben wurden zunächst Strom-Spannung-Kennlinien im Dunkeln aufgenommen. Beispiele dazu sind in Abbildung 7-2 (a) dargestellt. Alle Proben zeigten eine typische p-i-n Dioden-Kennlinie mit Durchlass- und Sperrrichtung. Die Kniespannung variiert zwischen 0.55 V für SC-1 und 0.84 V für SC-5. Weiterhin ist zu erkennen, dass bei den Proben SC-1 und SC-5 in Sperrrichtung der Stromfluss schon früher einsetzt.

Die Kennlinien unter Bestrahlung sind in Abbildung 7-2 (b) dargestellt, wobei nicht der absolute Strom, sondern die Stromdichte aufgetragen ist. Abbildung 7-2 (c) zeigt exemplarisch für Solarzelle REF die Dunkelkennlinie (blau), die absolute Stromdichte unter Bestrahlung (schwarz) sowie die daraus berechnete Leistung

(grün). Aus den Kennlinien aller Proben konnten die jeweiligen Solarzellenparameter  $V_{oc}$ ,  $j_{sc}$ ,  $V_{mpp}$  und  $j_{mpp}$  extrahiert werden, welche in Tabelle 2 zusammengefasst sind. Zusätzlich lässt sich aus den Werten der Füllfaktor nach Gleichung ( 43 ) sowie die Effizienz nach Gleichung ( 44 ) berechnen, welche ebenfalls in Tabelle 3 eingetragen sind. Für die Bestimmung der Effizienz wurde die einfallende Lichtleistung auf 200 mW abgeschätzt.

In Abbildung 7-2 (d) ist die experimentell bestimmte Hellkennlinie der Probe REF als Punkte sowie zusätzlich eine Anpassung nach dem Ein-Dioden-Modell mit Gleichung ( 40 ) als blaue Linie dargestellt. Bereiche für kleine Spannung und kleine Stromdichte sind zusätzlich hervorgehoben. Daraus wird ersichtlich, dass das Ein-Dioden-Modell die Messpunkte nur schlecht beschreibt. Berücksichtigt man zusätzlich noch mögliche Verlustkanäle durch parasitäre Serien- ( $R_s$ ) und Parallelwiderstände ( $R_p$ ) nach Gleichung ( 42 ), so werden die experimentellen Daten wesentlich besser wiedergegeben. Die aus den Anpassungen für alle Proben ermittelten Werte für die Verlustwiderstände sind ebenfalls der Tabelle 2 zu entnehmen.

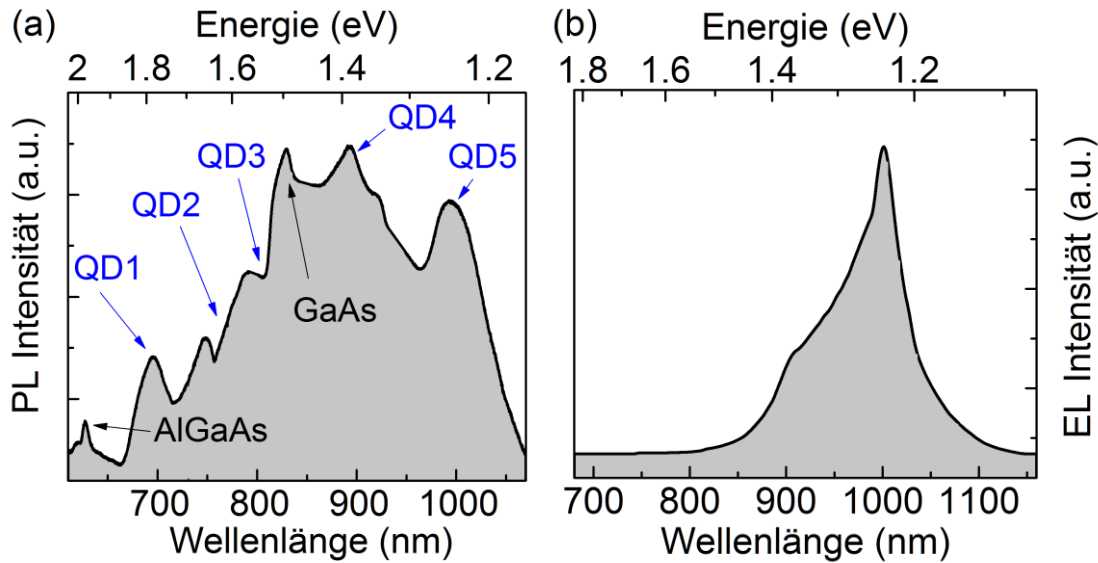
	$V_{oc}$ (V)	$j_{sc}$ (mA/cm <sup>2</sup> )	$V_{mpp}$ (V)	$j_{mpp}$ (mA/cm <sup>2</sup> )	FF	$\eta$ (%)	$R_p$ ( $\Omega$ cm <sup>2</sup> )	$R_s$ ( $\Omega$ cm <sup>2</sup> )
REF	0.744	6.234	0.647	5.571	0.777	6.31	12660	9.08
SC-1	0.627	12.54	0.488	9.771	0.606	8.34	862.1	9.65
SC-2	0.806	7.503	0.662	6.056	0.666	7.05	320.5	6.10
SC-3	0.797	6.220	0.534	3.457	0.372	3.23	212.3	12.9
SC-4	0.769	11.72	0.605	10.29	0.690	10.9	3562	6.92
SC-5	0.669	9.960	0.551	7.314	0.605	7.05	208.8	6.34

**Tabelle 2:** Offene Klemmspannung ( $V_{oc}$ ), Kurzschlussstromdichte ( $j_{sc}$ ), Spannung und Stromdichte am Punkt maximaler Leistung ( $V_{mpp}$ ,  $j_{mpp}$ ) sowie der jeweils daraus berechnete Füllfaktor (FF) und die zugehörige Effizienz ( $\eta$ ). Zusätzlich sind aus den Anpassungen die Parallelwiderstände  $R_p$  und Serienwiderstände  $R_s$  angegeben. Der jeweilige Bestwert ist grün unterlegt, der schlechteste Wert ist gelb unterlegt.

Aus den Werten in Tabelle 2 lassen sich folgende Schlussfolgerungen ziehen:

- Der parasitäre parallele Verlustwiderstand der Referenzprobe ist mit Abstand am größten. Dies deutet darauf hin, dass diese Probe die beste Kristallqualität aufweist. Da hier weder QP noch  $\delta$ -Dotierungen eingebracht wurden, kommt es zu wenig Verspannungen und Versetzungen, welche die Kristallqualität negativ beeinflussen könnten.

- Im Gegensatz dazu hat *SC-5* den kleinsten Wert des parallelen Verlustwiderstandes. Aufgrund der nur 10 nm dicken Schichten zwischen den QP kommt es vermehrt zu elastischen Verspannungen, welche beim Überwachsen zu Versetzungen führen und somit die Kristallqualität reduzieren. Ähnliche Beobachtungen wurden auch schon von anderen Gruppen berichtet [118, 119]. Durch Einbringen von verspannungskompensierenden Zwischenschichten kann dies zum Teil kompensiert werden [113, 119].
- Auch Probe *SC-3* mit insgesamt 25 QP Schichten hat einen verhältnismäßig geringen parallelen Verlustwiderstand. Aufgrund der zusätzlichen Anzahl von QP-Schichten kommt es auch hier vermehrt zu Verspannungen und Versetzungen. Ein Zusammenhang von zusätzlichen QP Schichten und verminderter Kristallqualität wurde ebenfalls von anderen Gruppen beobachtet und publiziert [120].
- Interessant ist, dass die Probe *SC-4* mit invertierter QP Reihenfolge einen größeren Wert für den parallelen Verlustwiderstand hat als die Proben mit „richtiger“ QP Reihenfolge. Dies kann dadurch erklärt werden, dass hier zuerst die InAs QP in GaAs gewachsen wurden, welche eine geringere Flächendichte haben. Dadurch entstehen beim Überwachsen weniger Gitterdeformationen und somit auch weniger Kristallfehler.
- Probe *SC-3* mit insgesamt 25 QP-Schichten hat den größten Wert für den seriellen Verlustwiderstand. Dieser spiegelt im Prinzip den Widerstand der gesamten Probe wider. Hier ist der intrinsische Bereich aufgrund der zusätzlichen QP-Schichten wesentlich größer als bei den anderen Proben und führt somit zu einem größeren Gesamtwiderstand der Probe.
- Auch bei den Proben *REF* und *SC-1* ist der Wert des seriellen Widerstandes geringfügig größer, da hier keine zusätzlichen  $\delta$ -Dotierungen eingebracht wurden.
- Den größten Füllfaktor besitzt die Referenzprobe *REF*. Aufgrund des großen parallelen Verlustwiderstands ist die Diodenkennlinie dieser Probe nahezu ideal, was zu einem großen Füllfaktor führt.
- Im Gegensatz dazu hat Probe *SC-3* aufgrund des großen seriellen Widerstandes den kleinsten Füllfaktor und daraus resultierend auch die geringste Gesamteffizienz.
- Die größte Gesamteffizienz hingegen hat die Probe *SC-4* mit invertierter QP Reihenfolge. Dies kann damit begründet werden, dass aufgrund der hohen Kurzschlussstromdichte verbunden mit einem relativ großen Parallelwiderstandes die Kennlinie unter Beleuchtung der idealen Kennlinie am nächsten kommt.



**Abbildung 7-3** (a) PL-Spektrum der Solarzellen SC-2 bei einer Temperatur von 30 K. Neben den Barrieren (GaAs, AlGaAs) sind die fünf verschiedenen Arten von QP zu erkennen. (b) EL-Spektrum der Solarzelle SC-1 bei einer Temperatur von 300 K. Nur die langwelligen QP zeigen Lumineszenz.

### 7.3 Lumineszenz-Eigenschaften

Im folgenden Abschnitt werden optische Eigenschaften der untersuchten Solarzellen näher betrachtet. In Abbildung 7-3 (a) ist das PL-Spektrum der Probe SC-1 für eine Temperatur von  $T = 30$  K gezeigt. Zum einen ist die Lumineszenz der beiden Barrierenmaterialien AlGaAs und GaAs zu erkennen. Während AlGaAs bei einer Wellenlänge von 627 nm ( $\cong 1.98$  eV) emittiert, liegt die Lumineszenz von GaAs bei einer Wellenlänge von 829 nm ( $\cong 1.49$  eV). Daneben sind noch fünf weitere Lumineszenz-Peaks zu erkennen, welche den jeweiligen QP-Ensembles zugeordnet werden können:

- Der erste Lumineszenzpeak QD-1 bei einer Wellenlänge von 695 nm ( $\cong 1.78$  eV) kann den  $\text{Al}_{0.30}\text{GaIn}_{0.43}\text{As}$  QP mit einer Aluminium-Konzentration von 30 % zugeordnet werden.
- Der Peak QD-2 bei 749 nm ( $\cong 1.66$  eV), kann den  $\text{Al}_{0.20}\text{GaIn}_{0.43}\text{As}$  QP zugewiesen werden.
- Der Peak QD-3 bei 791 nm ( $\cong 1.57$  eV) entspricht der Lumineszenz von  $\text{Al}_{0.10}\text{GaIn}_{0.43}\text{As}$  QP
- Auf der langwelligen Seite der GaAs-Barriere emittieren die  $\text{GaIn}_{0.43}\text{As}$  QP ohne Aluminium bei einer Wellenlänge von 894 nm ( $\cong 1.39$  eV).
- Die Emission QD-5 bei 996 nm ( $\cong 1.24$  eV) stammt von InAs QP, welche zwischen zwei GaAs Schichten eingebettet sind.

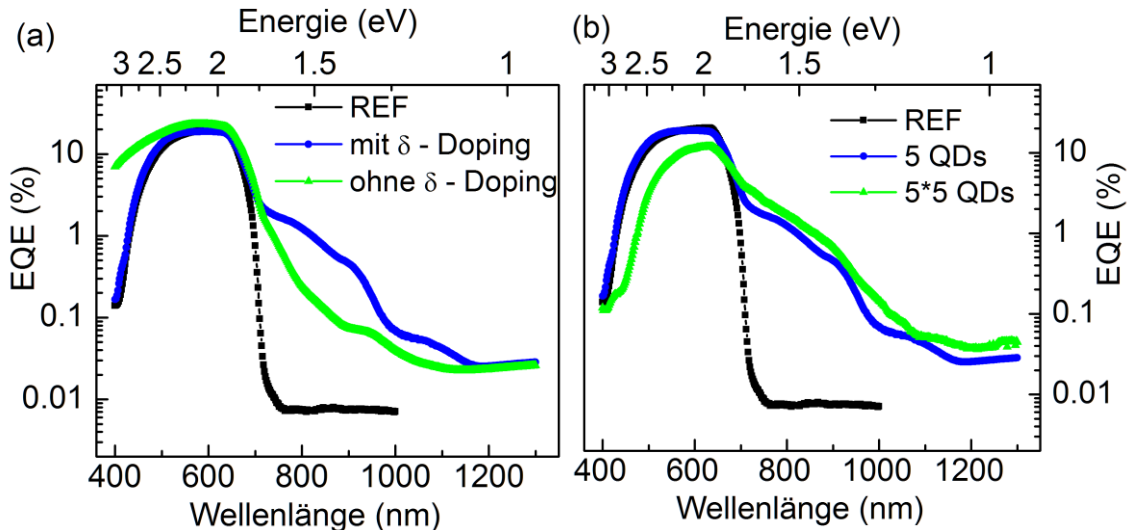
Die Zuordnung basiert auf Lumineszenz-Untersuchungen an planaren Strukturen ohne Dotierung [121] und STEM-Untersuchen dieser Probe (vgl. Abbildung A-7 (b) im Anhang). Des Weiteren sind die QP mit 30 % Al-Gehalt nominell am kleinsten und haben demzufolge die größte Lumineszenz-Energie. Das bedeutet, dass angefangen mit den  $\text{Al}_{0.30}\text{GaIn}_{0.43}\text{As}$  QP bei 695 nm bis zu den InAs/GaAs QP bei 996 nm die Lumineszenz einen breiten Spektralbereich von etwa 300 nm vom roten bis ins nahe infrarote Spektrum abdeckt. Im Umkehrschluss verspricht das breite Emissionsspektrum ein ebenso breites Absorptionsspektrum durch die QP.

Neben der Photolumineszenz wurde für die optische Charakterisierung auch die Elektrolumineszenz (EL) gemessen. Das EL-Spektrum für  $T = 300$  K ist in Abbildung 7-3 (b) dargestellt. Es ist eine ausgeprägte Lumineszenz im Bereich von 850 nm bis 1050 nm zu beobachten. Verglichen mit dem PL-Spektrum entspricht dies der Lumineszenz von QD-4 und QD-5. Es konnte keine EL für die kurzwelligeren QP beobachtet werden. Die EL-Messung wurden bei Raumtemperatur durchgeführt. Offensichtlich ist der elektronische Einschluss für die kurzwelligeren QP zu klein, so dass aufgrund von Thermalisierungseffekten die Ladungsträger in das Leitungsband angeregt werden und so nichtstrahlend rekombinieren können.

## 7.4 Spektrale Empfindlichkeit und Quanteneffizienz

Im folgenden Abschnitt werden die spektralen Eigenschaften und speziell die externen Quanteneffizienzen (EQE) der Solarzellenproben bestimmt und näher untersucht. Dazu wird die spektrale Kurzschlussstromdichte  $j_{sc}(\lambda)$  gemessen und zusammen mit der eingestrahelten spektralen Lichtleistung nach Gleichung ( 48 ) die EQE berechnet.

Zu Beginn wird der Fokus auf den Einfluss von zusätzlichen  $\delta$ -Dotierungen zwischen den einzelnen QP-Schichten gelegt. Dazu ist in Abbildung 7-4 (a) die EQE der AlGaAs Referenzprobe, sowie für die Proben SC-1 (ohne  $\delta$ -Dotierung) und SC-2 (identisch mit SC-1, jedoch mit zusätzlich  $\delta$ -Dotierungen) gezeigt. Die EQE der Referenzprobe REF ohne QP fällt für Energien kleiner der Bandlücke des AlGaAs ( $E_G < 1.85$  eV) abrupt ab. Für Photonen im Bereich der Energie der Bandlücke ist die EQE maximal. Auf der anderen Seite nimmt die EQE für Photonen mit einer viel größeren Energie als die Bandlücke ( $E \gg E_G$ ) erneut ab. Dies kann auf Verluste durch heiße Ladungsträger bzw. Phononenstreuung zurückgeführt werden [122], in dem die erzeugten Elektronen ihre überschüssige Energie ( $E - E_G$ ) in Form von Phononen an das Gitter abgeben. Für Solarzelle SC-1 ist die EQE für den Bereich zwischen 670 nm bis etwa 1000 nm erweitert. Im Gegensatz dazu zeigt die Probe SC-2 mit  $\delta$ -

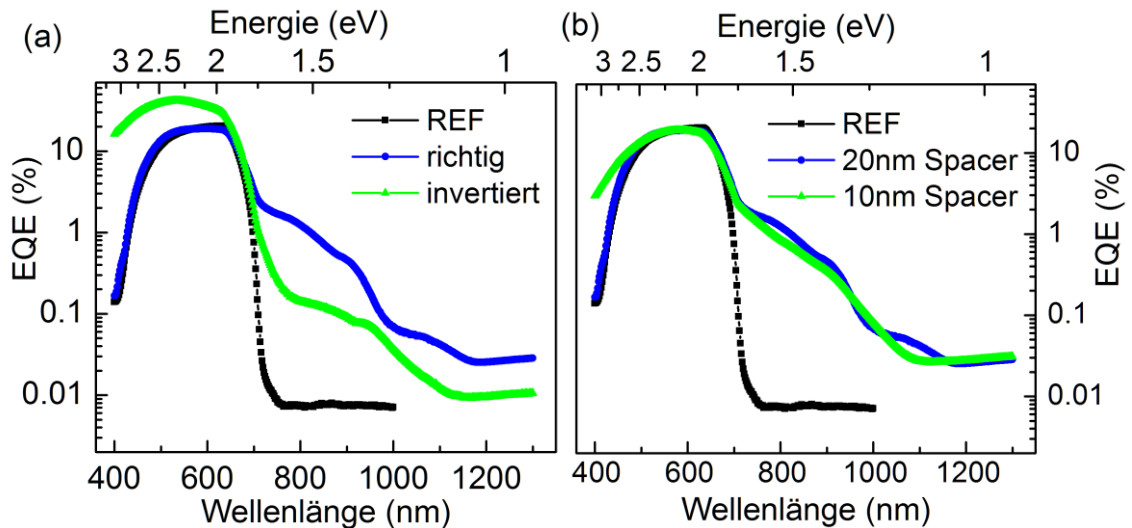


**Abbildung 7-4:** (a) EQE der AlGaAs Referenzprobe REF (schwarz), der Probe SC-1 (ohne  $\delta$ -Dotierung) und SC-2 (mit  $\delta$ -Dotierung). Mit Dotierung ist eine deutliche Erhöhung der EQE im Bereich der QP Absorption zu erkennen. (b) Vergleich der EQE der Proben SC-2 (5 QP Schichten) und SC-3 (5 x 5 QP Schichten) sowie der Referenzprobe REF. Bei der Probe mit insgesamt 25 QP Schichten ist unterhalb der AlGaAs Bandkante die EQE geringer.

Dotierungen zwischen den QP-Schichten eine zusätzliche Erhöhung der EQE im Bereich von 700 nm bis 1000 nm und eine spektrale Erweiterung bis 1150 nm. Das Einbringen zusätzlicher Ladungsträger kann die Fähigkeit zur Absorption von Photonen speziell aus tieferen QP-Zuständen erhöhen [123], ohne dass diese Zustände durch vorangegangene Absorption von Photonen mit Elektronen aus dem Valenzband bevölkert wurden. Darüber hinaus kann dabei die direkte Erhöhung der Stoßionisation und eine Unterdrückung von Auger-Rekombinationen eine entscheidende Rolle spielen [124].

Im nächsten Schritt wird untersucht, wie sich die Anzahl der QP bzw. der QP-Schichten auf die EQE auswirkt. Dazu ist in Abbildung 7-4 (b) die EQE der Proben SC-2 mit 5 QP-Schichten und Probe SC-3 mit 5 x 5 QP-Schichten gezeigt. Hier gilt es zwischen zwei Bereichen zu unterscheiden:

- Im Bereich der QP-Absorption, d. h. für Photonen mit  $E < E_G$  der AlGaAs Barriere ( $\lambda > 670$  nm) ist die EQE der Probe SC-3 um einen Faktor  $\sim 2$  größer als bei der Probe SC-1. Eine Korrelation der Anzahl der QP-Schichten mit der Quanteneffizienz wurde auch schon von anderen Gruppen beobachtet [116].
- Für Photonen mit einer Energie  $E > E_G$  der Bandlücke der AlGaAs Barriere ( $\lambda < 670$  nm) ist die EQE der Probe SC-3 kleiner als die EQE der Probe SC-2. Der hier erzeugte Photostrom wird hauptsächlich im Emitterbereich der Solarzelle generiert. Aufgrund der erhöhten Anzahl von QP-Schichten nehmen die Gitterdeformationen im intrinsischen Bereich der Probe zu. Beim Überwachsen



**Abbildung 7-5:** (a) EQE für die Referenzprobe REF, SC-2 ("richtige" QD Reihenfolge) und SC-4 ("invertierte" QD Reihenfolge). Oberhalb der AlGaAs Energie ist eine deutliche Abnahme der EQE durch eine invertierte QD Anordnung zu beobachten. (b) EQE der Solarzelle SC-2 (20 nm Zwischenschicht) und SC-5 (10 nm Zwischenschicht). Die EQE nimmt mit Verkleinerung der Zwischenschicht ab.

kommt es vermehrt zu Kristallfehlern bzw. Versetzungen im Emitterbereich. Dies führt zu einer Abnahme des Kurzschlussstromes und somit zu einer reduzierten Quanteneffizienz [118, 120].

Bei der Herstellung der Proben wurde die Reihenfolge der QP so gewählt, dass die Variation der QP-Größe aufgrund des Al-Gehaltes zwischen den QP-Schichten und der damit verbundenen Lage der Eigenenergien der jeweiligen QP das intrinsische Potential der Solarzelle kompensiert. Es stellt sich nun die Frage was passiert, wenn die Schichtfolge der QP umgekehrt wird und es zu einer Aufhebung der Entartung kommt?

Die Auswirkung der Reihenfolge der QP-Schichten auf die experimentell ermittelte EQE ist in Abbildung 7-5 (a) dargestellt. Auch hier muss zwischen den Bereichen der AlGaAs Absorption ( $E > E_G$ ) und der QP-Absorption unterschieden werden. Es ist eine signifikante Abnahme der EQE von Probe SC-4 mit invertierter Reihenfolge im Vergleich zu SC-2 mit „richtiger“ Reihenfolge im Bereich der QP-Absorption zu erkennen. Zusätzlich ist oberhalb von 1100 nm keine Quanteneffizienz mehr zu detektieren. Im Gegensatz dazu ist unterhalb der AlGaAs Bandkante ( $\lambda < 670\text{nm}$ ) die EQE deutlich erhöht von etwa 20 % auf 40 %.

Um die reduzierte EQE von SC-4 im Bereich der QP-Absorption qualitativ zu beschreiben, wurde der Verlauf des Valenzbandes mit *NextNano*® simuliert. In Abbildung 7-6 (a) ist der gesamte intrinsische Bereich mit dem jeweiligen n- und p-

dotierten Regionen dargestellt. Für die Simulation wurden folgende Annahmen und Parameter verwendet:

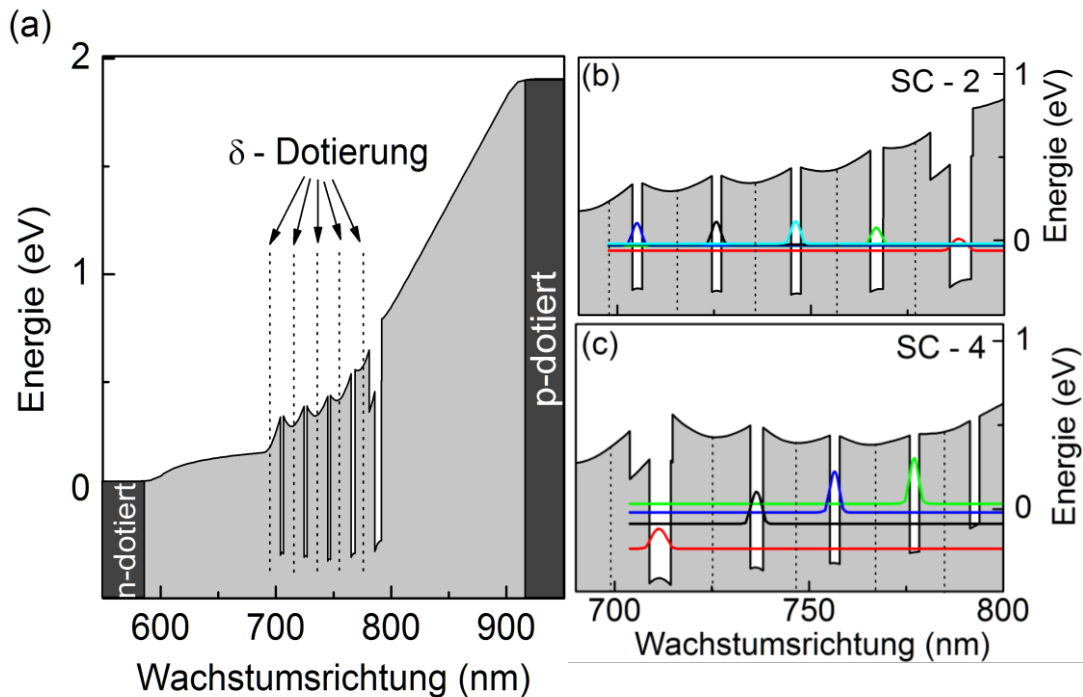
- Die QP befinden sich auf einer 0.5 nm dicken Benetzungsschicht (WL) aus dem jeweils gleichen Material wie die QP selbst.
- Für die Form der QP wurde ein Semiellipsoid mit einem Durchmesser von 20 nm mit konstanter Materialzusammensetzung gewählt.
- AlGaInAs QP haben eine Höhe von 2 nm, InGaAs QP von 2.8 nm und InAs/GaAs QP von 5 nm.

Diese Parameter sind nicht willkürlich gewählt, sondern basieren auf frühere Untersuchungen an ähnlichen Strukturen [121], auf den Daten der STEM Messungen (siehe Abbildung A-7 (b)) und durch den Vergleich der PL Energien mit den errechneten Werten aus den Simulationen.

Das intrinsische Potential erzeugt einen Gradienten im Leitungsbandverlauf zwischen n- und p-dotierten Bereichen der Solarzelle. Im Zentrum der intrinsischen Schicht befinden sich die jeweiligen QP-Schichten. Die  $\delta$ -Dotierschichten sind als gepunktete Linien angedeutet. In Abbildung 7-6 (b) und (c) ist der Bereich der QP vergrößert dargestellt. Zusätzlich wurden die Elektronen-Wellenfunktionen berechnet und sind als farbige Linien für die jeweiligen QP mit eingezeichnet. Für Solarzelle SC-2 mit der „richtigen“ Reihenfolge der QP-Schichten, d. h. auf der n-dotierten Seite beginnend mit den kleinsten  $\text{Al}_x\text{GaIn}_{0.43}\text{As}$  QP mit 30 % Aluminium über 20 % und 10 % nach 0 % und endend mit den InAs/GaAs QP auf der p-dotierten Seite, gleicht die Variation das Gefälle im Leitungsband partiell aus. Betrachtet man die Elektronen-Wellenfunktionen der jeweiligen QP-Schichten, so liegen diese energetisch gesehen auf annähernd gleichem Niveau. Aufgrund des relativ großen Abstandes von 20 nm zwischen den QP-Schichten und der nicht exakt gleichen Energie kommt es aber nicht zu einer Hybridisierung der Wellenfunktionen.

Für Solarzelle SC-4 hingegen ergibt sich ein deutlich anderes Bild. Aufgrund der invertierten Reihenfolge der QP-Schichten, d. h. beginnend mit den InAs/GaAs QP auf der n-dotierten Seite und endend mit den  $\text{Al}_{0.3}\text{GaIn}_{0.43}\text{As}$  QP auf der p-dotierten Seite, liegen die Energien der jeweiligen QP-Schichten energetisch gesehen auf verschiedenen Niveaus. Zusätzlich erzeugen die InAs/GaAs QP mit einem ungefähr doppelt so großen Elektron-Einschlusspotential eine Elektronensenke, was eine geringere Quanteneffizienz zur Folge hat.





**Abbildung 7-6:** (a) Simulation des Leitungsbandverlaufs des gesamten intrinsischen Bereichs. (b) Vergrößerung der QP-Region von SC-2 („richtige“ Reihenfolge). Die Grundzustandsenergien der jeweiligen QP sind annähernd gleich. (c) Vergrößerung der QP-Region von SC-4 („invertierte“ Reihenfolge). Es kommt zu einer signifikanten Aufspaltung der Grundzustandsenergien.

Abschließend wurde der Abstand zwischen den einzelnen QP-Schichten von 20 nm auf 10 nm reduziert. Der Verlauf der EQE für die beiden Proben mit 20 nm Zwischenschichten (SC-2) und 10 nm Zwischenschichten (SC-5) ist in Abbildung 7-5 (b) gegenüber gestellt. Der fast identische Verlauf über den gesamten Bereich deutet darauf hin, dass die Größe der Zwischenschicht hier kaum Einfluss auf die EQE hat.

## 7.5 Zwei-Photonen-Absorption

Das Prinzip von IBSC basiert darauf, auch Photonen mit einer Energie kleiner der Bandlücke über einen Zwei-Photonen-Prozess zu absorbieren und daraus zusätzlichen Photostrom zu generieren. Allerdings ist dieser Anteil im Vergleich zum primären Photostrom wesentlich geringer. Experimentell wurde die Absorption von zwei Photonen mit einer Energie kleiner der Bandlücke erstmals 2006 an InAs/GaAs QP demonstriert [125], indem mittels Lock-In Technologie der durch eine IR Lichtquelle erzeugte Anteil im Photostrom direkt gemessen wurde.

Der verwendete Messaufbau ist ähnlich wie bei der Messung der EQE und detailliert in Kapitel 3.5 beschrieben. Neben einer Primär-Lichtquelle, eine durch

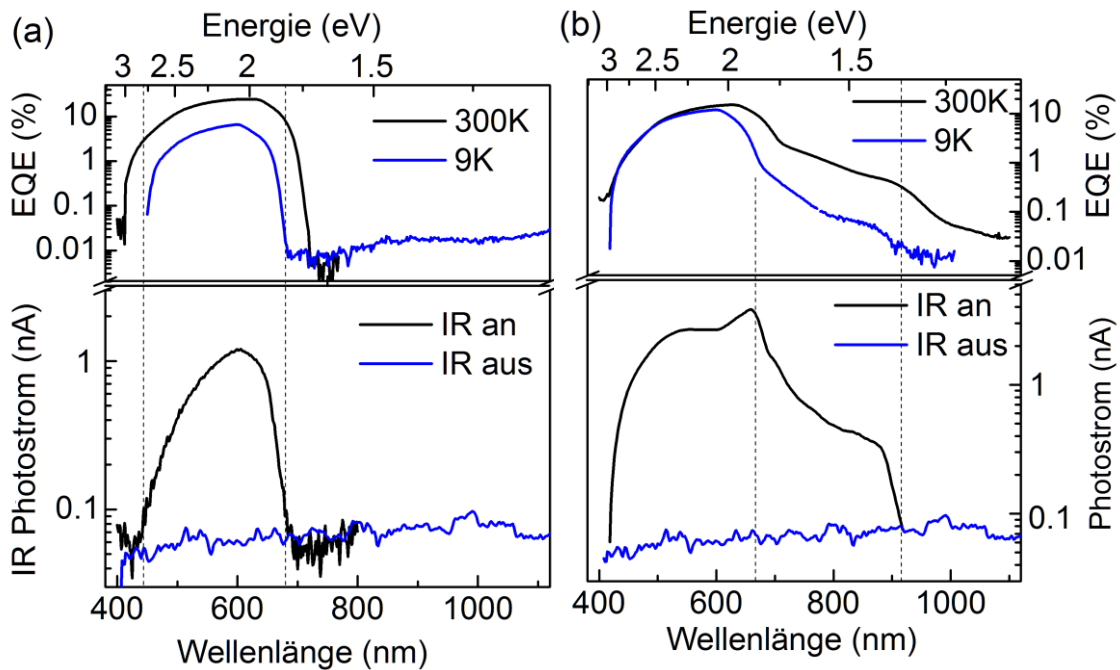
einen Monochromator spektral zerlegte Xe-Hochdruckdampfampe, wird zusätzlich eine Infrarot-Lichtquelle (IR) mit einer Energie kleiner der Bandlücke der verwendeten Materialien integriert. Dazu wurde hier eine  $1.3 \mu\text{m}$  ( $\cong 0.95 \text{ eV}$ ) Laserdiode über einen Funktionsgenerator mit einer Frequenz von 477 Hz moduliert und mit einem Lock-In Verstärker synchronisiert. Somit kann der durch die IR Lichtquelle erzeugte Anteil im Photostrom direkt gemessen werden.

Zunächst wurde die Zwei-Photonen-Absorption an der AlGaAs Referenzprobe untersucht. Im oberen Teilbild von Abbildung 7-7 (a) ist die EQE für Raumtemperatur (300 K) und für tiefe Temperatur (10 K) dargestellt. Zum einen wird deutlich, dass mit sinkender Temperatur die Effizienz von maximal 25 % auf nur noch 7 % abnimmt. Zusätzlich verschiebt sich die maximale Absorptionswellenlänge von 700 nm zu 680 nm. Diese ist durch die Bandlücke von AlGaAs begrenzt und kann auf die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke zurückgeführt werden [86].

Interessant ist nun der Anteil im Photostrom, welcher durch die IR Lichtquelle erzeugt wird. Dieser ist im unteren Teilbild von Abbildung 7-7 (a) aufgetragen. Da die Energie der IR Lichtquelle ( $E = 0.95 \text{ eV}$ ) deutlich kleiner ist als die Bandlücke von AlGaAs ( $E = 1.85 \text{ eV}$ ) sollte diese keinen Anteil zum Photostrom beitragen. Im Bereich zwischen 440 nm und 680 nm der Primär-Lichtquelle konnte jedoch ein zusätzlicher IR-Photostrom gemessen werden, was durch gestrichelte Linien eingegrenzt ist. Dass dieser Strom tatsächlich durch das IR Licht erzeugt wird, bestätigt eine Vergleichsmessung, in dem das IR Licht mechanisch abgeschirmt wurde und somit keinen Strom generieren konnte (blaue Linie).

Ursache dieses Photostroms können Defekte nahe der Bandkante sein oder aufgrund der Dotierung, wie schematisch in Abbildung 7-8 (a) skizziert. So ist es z. B. möglich, dass Photonen mit einer Energie größer der Bandlücke tiefer liegende Elektronen aus dem VB in Störstellen anregen und diese dann durch IR Photonen ins Leitungsbandkontinuum angehoben werden. Ein wichtiger Aspekt hier ist aber, dass kein Photostrom generiert wird, welcher durch zwei Photonen mit jeweils kleinerer Energie als die Bandlücke erzeugt wird, also für Photonen der Primär-Lichtquelle mit  $\lambda > 680 \text{ nm}$ .

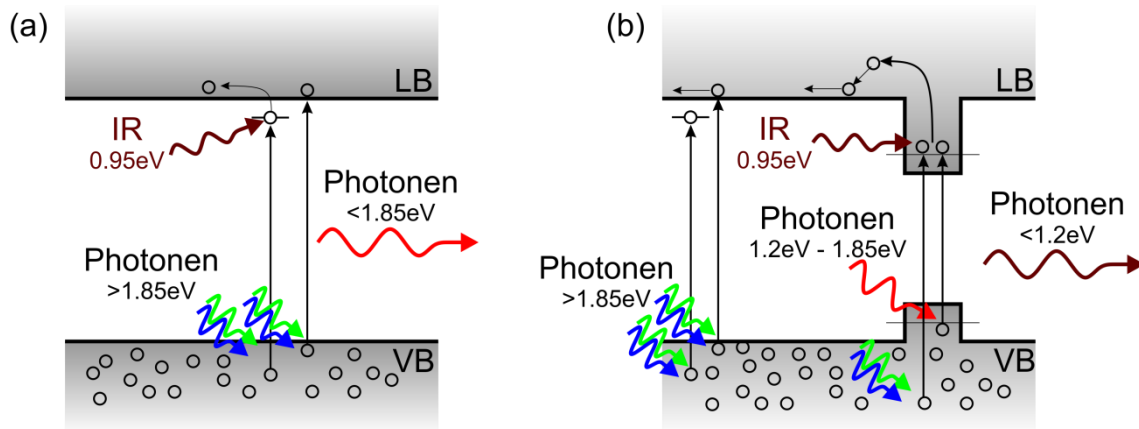
Die Zwei-Photonen-Absorptionsmessung an Probe SC-2 mit QP unterscheidet sich merklich von der Messung der Referenzprobe. Im oberen Teilbild von Abbildung 7-7 (b) sind die EQE für Raumtemperatur und tiefer Temperatur (10 K) dargestellt. Auch hier ist eine Abnahme der EQE von maximal 15 % auf 12 % mit sinkender Temperatur zu beobachten. Die Abnahme ist besonders ausgeprägt im Bereich der QP-Absorption, d. h. für Wellenlängen  $> 680 \text{ nm}$ . Zum Beispiel nimmt diese bei 700 nm von 2.5 % auf nur noch 0.2 % ab. Wird die Energie der Primär-Photonen kleiner als die Bandlücke des umgebenden Matrixmaterials, so können



**Abbildung 7-7:** (a) EQE für Raumtemperatur (300 K, schwarz) und für tiefe Temperatur (10 K, blau) der Referenzprobe ohne QP. Die max. Absorptionswellenlänge sinkt für niedrigere Temperaturen. Im unteren Teil ist der zusätzlich generierte Photostrom durch die IR Lichtquelle (schwarz) und die zugehörige Untergrundmessung ohne IR Lichtquelle (blau) dargestellt. (b) Analoge Messung wie in (a), jedoch an Probe SC-2 mit QP. Die IR Lichtquelle erzeugt auch für Primär-Photonen im Bereich zwischen 680 nm und 920 nm einen Photostrom.

Ladungsträger nur noch vom VB in gebundene QP-Zustände angehoben werden. Bei tiefen Temperaturen ist die thermische Energie zu gering, um die Ladungsträger aus den QP in das Leitungsband anzuregen, was zu einem Rückgang im Photostrom und zu einer reduzierten EQE führt. Zusätzliche Photonen mit einer Energie kleiner der Bandlücke können die gebundenen Elektronen aus den QP in das Leitungsband anheben und einen zusätzlichen Photostrom generieren.

Im unteren Teilbild von Abbildung 7-7 (b) ist der IR-Photostrom in Abhängigkeit der Wellenlänge der Primär-Photonen dargestellt. Wie bei der Referenzprobe erzeugen IR Photonen einen Strom unterhalb von 680 nm, der Bandlücke von AlGaAs. Dieser ist hier aber um einen Faktor  $\sim 3$  größer als bei der Probe ohne QP. Das liegt daran, dass tiefer liegende Elektronen auch in die QP und anschließend durch IR-Photonen in das Leitungsband angehoben werden können. Im Gegensatz zur Probe ohne QP wird hier aber auch ein IR-Photostrom erzeugt im Bereich für Primär-Photonen zwischen 680 nm und 920 nm. Hier ist deren Energie kleiner als die der Bandlücke von AlGaAs. Das bedeutet, dass hier nur Photonen mit einer Energie kleiner als der Bandlücke des Matrixmaterials AlGaAs auf die Probe treffen. Mögliche Absorptionsprozesse sind schematisch in Abbildung 7-8 (b)

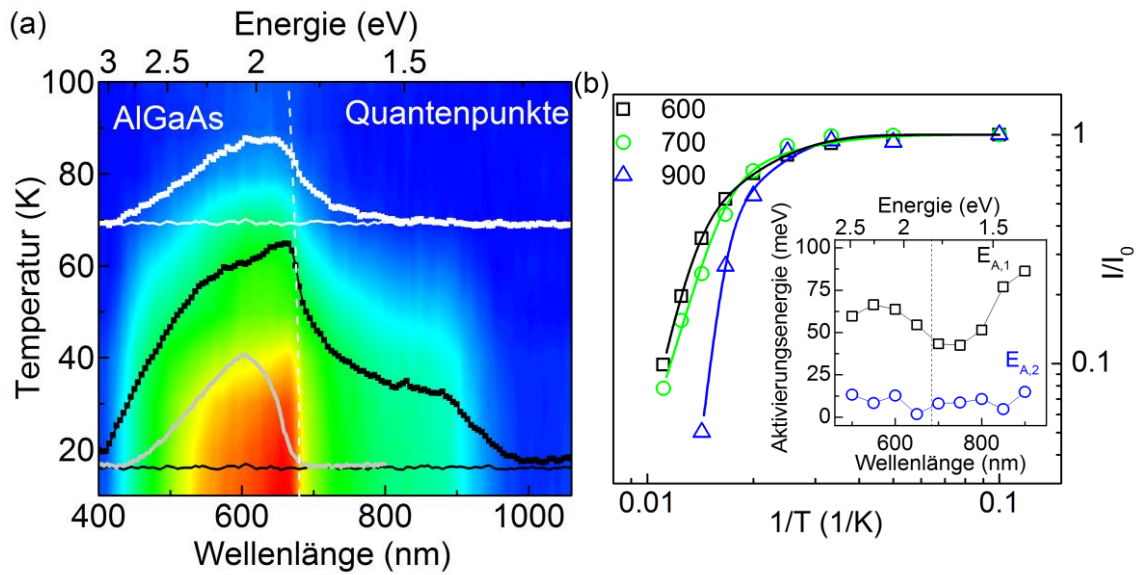


**Abbildung 7-8:** (a) ohne QP: Photonen mit einer Energie größer der Bandlücke von AlGaAs ( $> 1.85 \text{ eV}$ ) können Elektronen direkt ins Leitungsband oder über Störstellen mit zusätzlichen IR-Photonen anregen. Für Photonen  $< 1.85 \text{ eV}$  ist das AlGaAs transparent. (b) mit QP: Es können zusätzlich Photonen zwischen  $1.2 \text{ eV}$  und  $1.85 \text{ eV}$  absorbiert werden, welche mit einem zusätzlichen IR Photon Ladungsträger ins Leitungsband anheben können.

skizziert. Diese Messung bestätigt das Prinzip von IBSC, dass durch die Absorption von zwei Photonen mit einer Energie kleiner der Bandlücke zusätzlich Photostrom erzeugt werden kann.

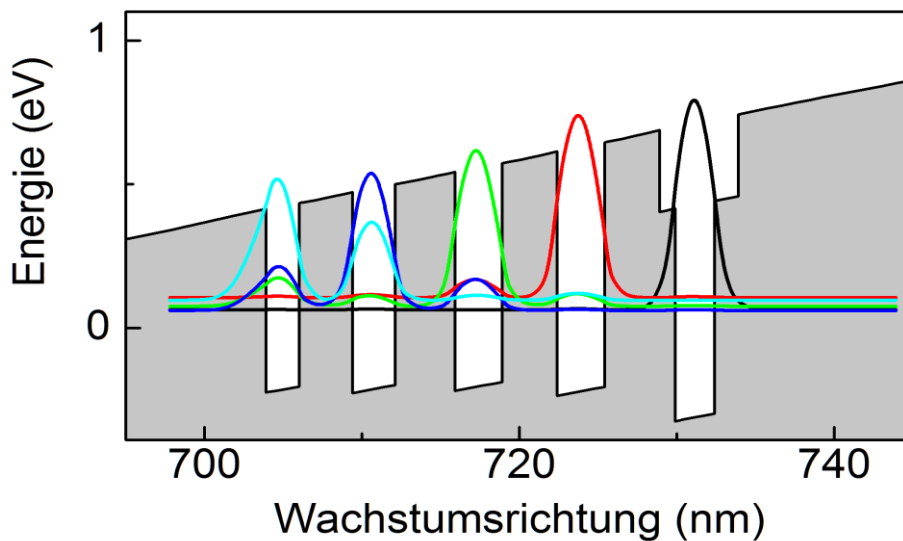
Allerdings wurden diese Messungen bisher nur bei tiefen Temperaturen gezeigt. So stellt sich nun die Frage, bis zu welchen Temperaturen der Zwei-Photonen-Absorptionsprozess möglich ist bevor Thermalisierungseffekte überwiegen?

Dazu wurde die Zwei-Photonen-Absorption in Abhängigkeit der Temperatur gemessen, was in Abbildung 7-9 in einem Konturdiagramm dargestellt ist. Blaue Bereiche entsprechen einem geringen Photostrom und rote Bereiche einem hohen Photostrom. Zusätzlich sind zwei ausgewählte Messungen für  $10 \text{ K}$  (schwarze Kurve) und für  $70 \text{ K}$  (weiße Kurve) mit zugehörigen Untergrundmessungen dargestellt. Zum Vergleich ist die Messung der Referenzprobe für  $10 \text{ K}$  als graue Linie zusätzlich eingezeichnet. Interessant ist vor allem der Bereich für Wellenlängen  $> 680 \text{ nm}$ , d. h. der Bereich der QP-Absorption. So sinkt z. B. für Primär-Photonen von  $900 \text{ nm}$  der IR-Photostrom von  $0.8 \text{ nA}$  bei  $10 \text{ K}$  auf  $0.2 \text{ nA}$  bei  $50 \text{ K}$ . Hingegen ist bei einer Wellenlänge von beispielsweise  $700 \text{ nm}$  ein IR-Photostrom bis zu einer Temperatur von  $80 \text{ K}$  zu beobachten.



**Abbildung 7-9:** (a) Konturdarstellung der Zwei – Photonen - Absorptionsmessung in Abhängigkeit der Temperatur. Zusätzlich sind zwei Einzelmessungen für 10 K (schwarz) und für 70 K (weiß) mit jeweiliger Referenzmessung dargestellt. Zum Vergleich ist zudem die Zwei – Photonen – Messung der Referenzprobe als graue Linie dargestellt. Mit steigender Temperatur sinkt der IR Photostrom zunächst im Bereich der QP Absorption und ab etwa 100 K konnte kein IR Photostrom mehr detektiert werden. (b) Intensitäten für ausgewählte Wellenlängen 600 nm (schwarz), 700 nm (grün) und 900 nm (blau). Die Messdaten sind als Punkte und die Anpassungen mit Gleichung ( 67 ) als Linien dargestellt. Die daraus gewonnenen Daten für die Aktivierungsenergien sind im Einsatz aufgetragen.

Eine Quantifizierung der Aktivierungsenergien sind Anhand der normierten Intensitäten für verschiedene Primär-Wellenlängen möglich, was exemplarisch für 600 nm (schwarz), 700 nm (grün) und 900 nm (blau) in Abbildung 7-9 (b) in Arrhenius-Darstellung gegenüber der inversen Temperatur aufgetragen ist. Dabei verkörpern Punkte die extrahierten Messdaten und Linien die zugehörigen Anpassungen nach Gleichung ( 67 ). Alle Anpassungen der Daten wurden mit jeweils zwei Aktivierungsenergien berechnet. Diese sind für den gesamten Wellenlängenbereich im Einsatz von Abbildung 7-9 (b) aufgetragen. Die Aktivierungsenergie  $E_{A,1}$  ist über den gesamten Bereich nahezu konstant in der Größenordnung von 8 meV. Interessant aber ist die Aktivierungsenergie  $E_{A,2}$ , welche im Bereich der QP mit steigender Wellenlänge von 43 meV für 700 nm auf 86 meV für 900 nm zu nimmt. Dies ist konsistent mit der Annahme, dass die langwelligen QP größer sind und somit tiefer liegende Grundzustandsenergien besitzen. Es muss mehr Energie aufgebracht werden, um Ladungsträger in das LB anzuregen.



*Abbildung 7-10: Simulation des Leitungsbandverlaufes mit angepassten Parametern der QP und Zwischenschichten. Es kommt zur Delokalisierung der Elektronen-Wellenfunktionen über die verschiedenen Quantenpunkt-schichten.*

## 7.6 Hybridisierung der Elektronen Wellenfunktion

In den Simulationen aus Abbildung 7-6 konnte keine Hybridisierung der Elektronen-Wellenfunktionen zwischen den jeweiligen QP-Schichten ausgemacht werden. Die Frage ist nun, ob mit diesen QP und realen Wachstumsparametern eine Probe realisiert werden kann, in welcher die Elektronen-Wellenfunktionen delokalisieren und es somit zur Bildung eines Bandes kommt?

Dazu wurden weitere Simulationen mit *NextNano*® durchgeführt und dabei die Parameter der QP so variiert, bis es zu einer Delokalisierung der Elektronen-Wellenfunktionen aller QP-Schichten kommt. Die finale Simulation des Leitungsbandverlaufes sowie der Elektronen-Wellenfunktionen sind in Abbildung 7-10 dargestellt. Es ist klar ersichtlich, dass die Wellenfunktionen der jeweiligen QP-Schicht über andere QP-Schichten hinweg hybridisieren. So hat z. B. die Wellenfunktion der untersten QP-Schicht (türkis) das Maximum in der zugehörigen unteren QP-Schicht, aber es sind auch ausgeprägte Aufenthaltswahrscheinlichkeiten in den darauffolgenden QP-Schichten auszumachen. Bei den anderen QP-Schichten ist dies ähnlich.

Die Parameter der finalen Simulation wurden wie folgt gewählt:

- Für die Höhe der QP wurde 1.6 nm, 2.2 nm, 2.5 nm und 2.5 nm angenommen, beginnend bei 30% über 20%, 10% bis 0% Al-Gehalt. Für die abschließende InAs /GaAs QP wurde eine Höhe von 2.0 nm gewählt. Diese Werte sind im

Vergleich zu bisher hergestellten QP relativ gering, aber noch im Rahmen für eine experimentelle Realisierung.

- Der Abstand zwischen den jeweiligen QP-Schichten wurde ebenfalls modifiziert. Zwischen den ersten beiden Schichten (d. h. zwischen 30 % und 20 % Al-Gehalt der QP) wurde eine Zwischenschicht von 5 nm gewählt, während für alle anderen Zwischenschichten eine Dicke von 6 nm gewählt wurde. Diese Zwischenschichtdicken sind wachstumstechnisch realisierbar, jedoch kann es zu größeren Verspannungen und somit zu Gitterfehlern führen, was die Qualität der Solarzelle negativ beeinflusst.
- Schließlich wurden noch die Dicken der GaAs Schichten um die InAs QP auf 1 nm unterhalb und 3 nm oberhalb der QP gesetzt.





## Anhang: Materialsysteme und Probenherstellung

*Im Rahmen dieser Arbeit wurden Proben aus verschiedenen III-V-Halbleiterverbindungen untersucht. Im Anhang werden zunächst spezifische Eigenschaften von Phosphid-Verbindungshalbleitern kurz erläutert. Es wird näher auf das epitaktische Wachstum und die Prozessierung der verschiedenen Proben eingegangen. Zusätzlich werden relevante technologische Prozessschritte für die Herstellung von Mikrosäulenresonatoren beschrieben. Anschließend werden die Besonderheiten von Nitrid-Halbleiterverbindungen dargestellt, wobei näher auf die Unterschiede im Wachstum von QP eingegangen wird. Abschließend werden noch spezielle Eigenschaften von Arsenid-Verbindungshalbleitern beschrieben, welche für die Herstellung der Solarzellen-Proben relevant sind. Hier wird speziell der Schichtaufbau der verschiedenen Solarzellen-Proben explizit erläutert und die Besonderheiten bei der Implementierung eines Zwischenbandes durch Variation der QP-Größe über die Materialzusammensetzung werden dargestellt.*

### Phosphid-Verbindungshalbleiter

Wie ein Großteil der III-V-Halbleiter kristallisieren Phosphid-Verbindungen vorzugsweise in der Zinkblende-Struktur. Ein wichtiger Parameter für das Wachstum von Heterostrukturen ist die Gitterkonstante der jeweiligen Halbleiter. Abbildung A-1 zeigt die Energie der Bandlücke der verwendeten Phosphid-Verbindungshalbleiter in Abhängigkeit ihrer Gitterkonstanten für eine Temperatur von 0 K [65]. Es ist zu erkennen, dass GaAs und  $\text{Ga}_{0.51}\text{In}_{0.49}\text{P}$  nahezu identische Gitterkonstanten haben und somit verspannungsfrei aufeinander gewachsen werden können.

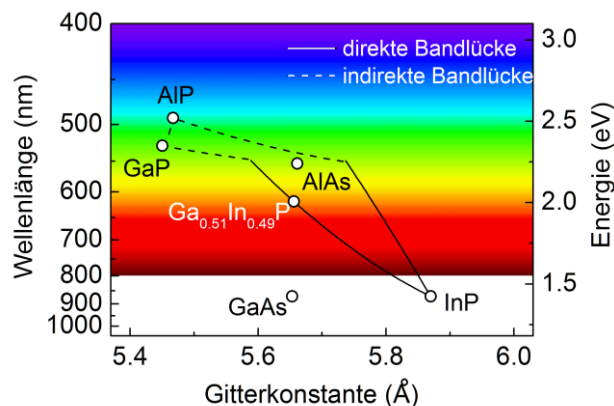
Zur Herstellung von QP gibt es eine Vielzahl an Methoden, wobei häufig epitaktisches Wachstum verwendet wird. Beim Abscheiden eines Materials mit einer größeren Gitterkonstante als das Substrat bildet sich beim Stranski-Krastanov (SK)-Wachstum [126] zunächst eine zweidimensionale Benetzungsschicht (WL<sup>18</sup>). Wird eine kritische Schichtdicke überschritten, so findet aufgrund der steigenden Verspannung ein zufällig verteiltes 3D-Inselwachstum statt. Allerdings ist die Kontrolle von Position und Größe von SK-QP nur begrenzt möglich, was eine statistische Größenverteilung zur Folge hat. Bei optischen Untersuchungen resultiert dies darin, dass durch einen Laserspot mit einem typischen Durchmesser von  $\sim 4 \mu\text{m}$

---

<sup>18</sup> Wetting Layer

**Abbildung A-1:**

Energie der Bandlücke und Emissionswellenlänge in Abhängigkeit der Gitterkonstanten für verschiedene Phosphid- und Arsenid-Halbleiterverbindungen ( $T = 0\text{ K}$ ).



sehr viele QP angeregt werden und deren homogene Emissionslinien sich in der Gesamtemission zu einer gaußartigen Form überlagert. Um Eigenschaften einzelner, spektral isolierter QP zu untersuchen, gibt es verschiedene Möglichkeiten:

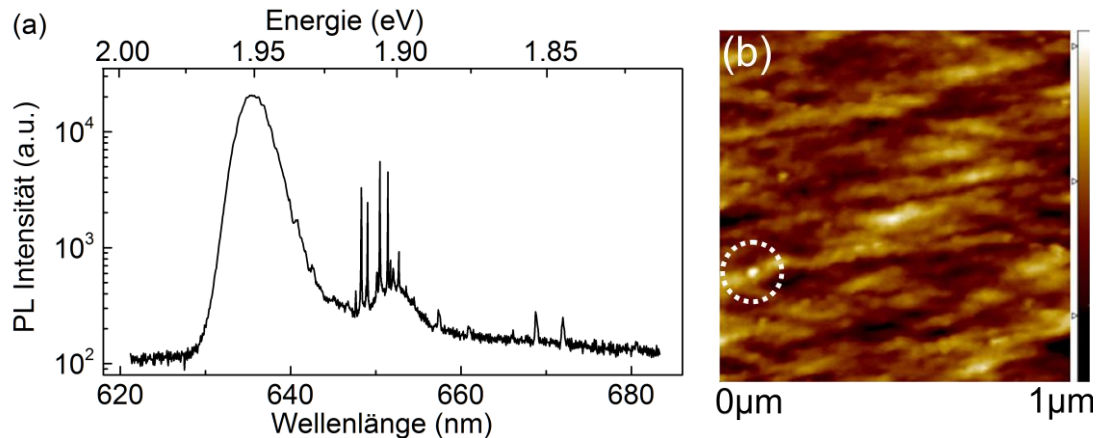
- Reduzierung der Flächendichte durch epitaktische Maßnahmen.
- Verkleinerung des Laserdurchmessers mit geeigneten Optiken, was aufgrund physikalischer Grenzen nur bedingt möglich ist.
- Verringern der angeregten Probenfläche durch Strukturierung von Mesen oder Aperturen. Es sind sehr kleine Strukturen realisierbar ( $< 100\text{ nm}$ ), aufgrund des Ätzschrittes jedoch häufig verbunden mit (Oberflächen-)Defekten.

#### Ultralangsame Wachstumsraten für InP Quantenpunkte

Die Proben wurden auf einer RIBER 2IT Gasquellen Molekularstrahlepitaxie-Anlage (GS-MBE<sup>19</sup>) an der Humboldt-Universität (HU) Berlin im Rahmen einer Kooperation gewachsen. Die wachstumsspezifischen und morphologischen Untersuchungen sind Teil der Dissertation von A. Ugur an der HU Berlin [127]. Es werden hier nur kurz die wichtigsten Schritte der Probenherstellung zur Nachvollziehbarkeit aufgeführt.

Das Probenwachstum basiert auf ultralangsame Depositionsraten während des QP-Wachstums [63]. Zunächst wurde die Oxid-Schicht vom GaAs Wafer entfernt. Anschließend wurde bei einer Temperatur von  $550\text{ °C}$  mit einer Rate von  $0.4\text{ Monolagen pro Sekunde (ML/s)}$  eine  $100\text{ nm}$  dicke GaAs Zwischenschicht gewachsen. Darauf wurde bei einer Temperatur von  $440\text{ °C}$  eine  $200\text{ nm}$  dicke  $\text{In}_{0.48}\text{Ga}_{0.52}\text{P}$  Schicht gitterangepasst abgeschieden. Die Temperatur wurde für das Wachstum der InP QP auf  $410\text{ °C}$  gesenkt. Aufgrund der Gitterfehlpassung von  $3.8\%$  zwischen dem InP und dem zuvor gewachsenen  $\text{In}_{0.48}\text{Ga}_{0.52}\text{P}$  kommt es zur spannungsinduzierten Formierung der QP im SK-Modus. Dabei wurde InP für insgesamt  $27\text{ s}$  mit einer Rate von nur  $0.01\text{ ML/s}$  abgeschieden, was insgesamt eine Abscheidemenge von  $0.27\text{ ML}$  ergibt. Die Probe wurde mit einer  $100\text{ nm}$  dicken

<sup>19</sup> Gas Source-Molecular Beam Epitaxy



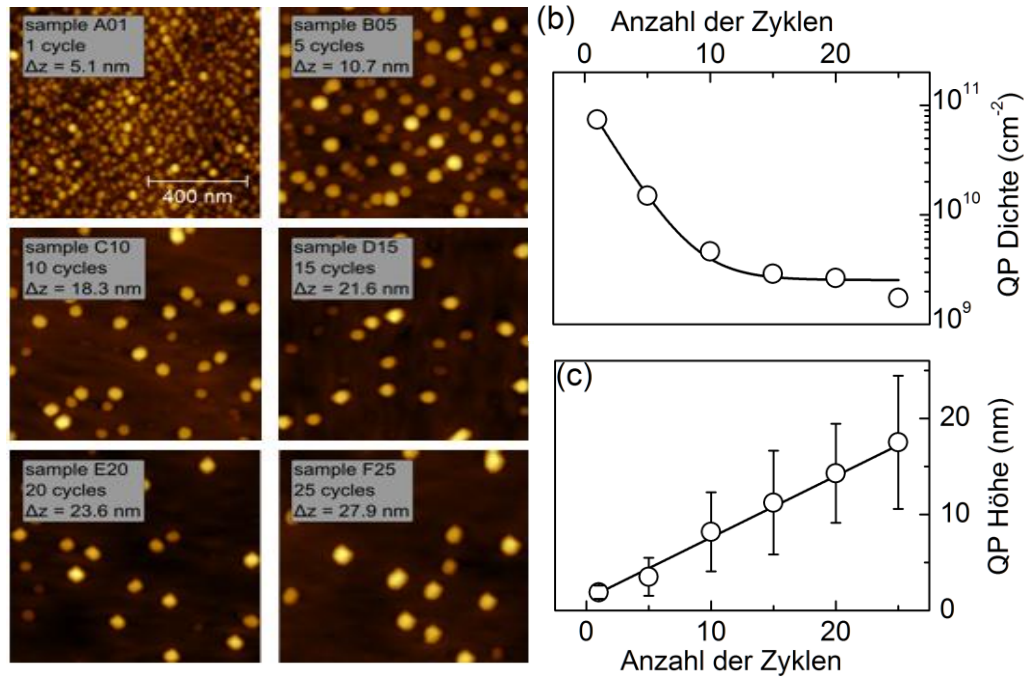
**Abbildung A-2:** (a) Breitbandiges PL Spektrum der Probe HU ohne Mikrostrukturierung. Bei 635 nm ist die Lumineszenz der GaInP Barriere und ab 645 nm die Lumineszenz der InP QP zu erkennen. (b) AFM Aufnahme der Probe HU der Größe  $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$  mit nur einem QP (weiß, gestrichelt)

$\text{In}_{0.48}\text{Ga}_{0.52}\text{P}$  Deckschicht überwachen. Aufgrund der äußerst geringen Abscheidungsrate des InP kommt es zu einer sehr geringen Quantenpunktdichte, im Mittel von nur einem QP pro  $\mu\text{m}^2$  bzw.  $10^8 \text{QP}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Abbildung A-2 (b) zeigt beispielhaft eine AFM-Aufnahme einer Referenzprobe ohne Deckschicht mit der Größe  $1 \mu\text{m} \cdot 1 \mu\text{m}$ . Mit Hilfe von ortsaufgelöster Spektroskopie ist es nun möglich, einzelne QP ohne Strukturierung der Probe zu untersuchen. Abbildung A-2 (a) zeigt ein spektral breitbandiges Spektrum der planaren Probe, angeregt durch einen Laserspot mit einem Durchmesser von  $\sim 4 \mu\text{m}$ . Im Bereich von 630 nm bis 645 nm ist die Lumineszenz des GaInP Barrierenmaterials in Form einer Gauß-Glocke zu sehen. Für den langwelligeren Bereich ab ca. 645 nm sind einzelne, scharfe und spektral isolierte Emissionslinien zu erkennen, welche einzelnen InP QP zugeordnet werden können.

### Sequentielles Wachstum von InP Quantenpunkten

Neben der eben vorgestellten Methode mittels ultralangsamem Abscheidungsrate gibt es noch weitere Ansätze die QP-Dichte zu reduzieren. So konnte beispielsweise die Flächendichte von InP QP durch eine InGaAs Keimschicht auf  $3 \cdot 10^9 \text{cm}^{-2}$  reduziert werden [128]. Allerdings sind in diesem Fall nur etwa 1 % der QP optisch aktiv und der Wachstumsprozess wird durch die zusätzliche Keimschicht deutlich erschwert.

Alternativ soll hier eine weitere Möglichkeit vorgestellt werden, wo durch sequenzielle Abscheidung des QP-Materials verbunden mit Wachstumspausen die Flächendichte reduziert werden kann. Gewachsen wurden die Proben von R. Rödel im Rahmen einer betreuten Diplomarbeit auf einer GS-MBE Anlage [129]. Grundlage aller Proben bildet ein (001) GaAs-Substrat. Nachdem das Oxid von der Oberfläche



**Abbildung A-3:** (a) AFM Oberflächenbilder von  $1.0 \cdot 1.0 \mu\text{m}^2$  großen Flächen der verschiedenen InP QP-Proben. Insgesamt wurden jeweils 2.4 ML InP abgeschieden, wobei zwischen einem Zyklus (A01) bis zu 25 Zyklen (F25) variiert wurde. In jedem Teilbild sind die zugehörige Anzahl von Zyklen sowie die Höhenskalierung  $\Delta z$  angegeben. (b) Flächendichte der QP in Abhängigkeit der Zyklenanzahl. (c) Höhe der QP als Funktion der Zyklenanzahl.

entfernt wurde, wird zunächst bei  $530 \text{ }^\circ\text{C}$  eine 150 nm dicke GaAs Zwischenschicht gewachsen. Darauf folgt eine 50 nm dicke  $\text{Ga}_{0.51}\text{In}_{0.49}\text{P}$  Schicht, welche bei einer Temperatur von  $470 \text{ }^\circ\text{C}$  gitterangepasst abgeschieden wurde. Anschließend wurden je nach Probe 2.4 ML InP in unterschiedlich vielen Sequenzen mit einer Wachstumsrate von  $0.2 \text{ ML/s}$  abgeschieden. Es wurden insgesamt sechs verschiedene Proben hergestellt, wobei die Anzahl der Zyklen zwischen eins und 25 variiert wurde. Nach jedem Zyklus wurde der InP-Fluss für 20 s unterbrochen um die Oberflächendiffusion zu erhöhen. Dies erlaubt die Reduzierung der effektiven Wachstumsrate ohne die Temperatur der In-Zelle zu reduzieren. Bei einer Abscheidung unter  $500 \text{ }^\circ\text{C}$  ist der Hauptmechanismus während der Wachstumspause die Oswald-Reifung, wobei die Anzahl der großen QP auf Kosten der kleinen QP zunimmt [130]. Abschließend wurden die QP mit einer 50 nm dicken  $\text{Ga}_{0.51}\text{In}_{0.49}\text{P}$  Schicht überwachsen. Auf die Oberflächen wurden die jeweils gleichen QP erneut gewachsen um zusätzlich zur Untersuchung der Lumineszenz auch bildgebende Verfahren, wie z. B. Rasterkraftmikroskopie (AFM<sup>20</sup>), an der gleichen Probe anwenden zu können.

<sup>20</sup> Atomic Force Microscope

In Abbildung A-3 (a) sind AFM Messungen der sechs verschiedenen Proben mit variierenden Sequenzen dargestellt. Die Bilder zeigen jeweils einen Ausschnitt von  $1.0 \cdot 1.0 \mu\text{m}^2$  der Probenoberfläche. Probe A01, wo die QP in nur einem Zyklus gewachsen wurden, ist die deutlich höchste QP-Dichte mit den vergleichsweise kleinsten QP zu erkennen. Mit zunehmender Anzahl von Wachstumszyklen nimmt die Migrationslänge der In-Atome zu. Dies resultiert in größer werdenden QP mit einer geringeren Flächendichte [131]. So nimmt die Dichte um mehr als eine Größenordnung von  $8 \cdot 10^{10} \text{cm}^{-2}$  auf  $2 \cdot 10^9 \text{cm}^{-2}$  ab, während die Höhe der QP von einem zu 25 Zyklen von 2 nm auf 17 nm zunimmt. Der Zusammenhang zwischen der Anzahl der Zyklen und der QP-Dichte bzw. QP-Höhe ist in Abbildung A-3 (b) und (c) dargestellt. Die Linie in Abbildung A-3 (b) stellt eine exponentiell abfallende Anpassung dar. Danach geht die QP-Dichte asymptotisch gegen  $2.5 \cdot 10^9 \text{cm}^{-2}$ . Dagegen ist in Abbildung A-3 (c) eine lineare Anpassung für die QP-Höhe gewählt. Aus der Steigung erhält man eine Zunahme von 0.65 nm/Zyklus. Der Effekt der reduzierten QP-Dichte ist beim Zyklenwachstum deutlich ausgeprägter als mit nur einer Wachstumspause nach dem Wachstum der QP. Convertino et al. konnten hier nur eine Abnahme um einen Faktor vier der Flächendichte für eine Wachstumspause von 300 s beobachten [132]. Dies kann damit begründet werden, dass die kleinen Inseln nach der Submonolagenabscheidung schneller dissipieren und somit nicht mehr als Nukleationszentren für weitere QP zur Verfügung stehen.

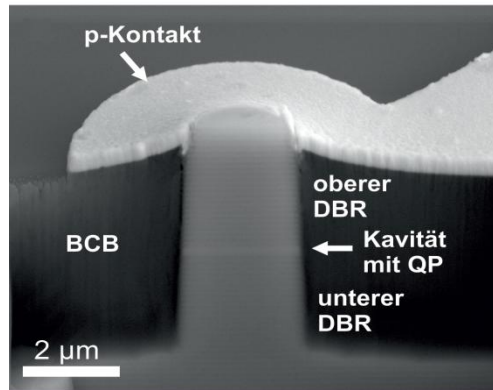
### InP Quantenpunkte in Mikrosäulenresonatoren

Die Lichtauskopplung von QP in planaren Strukturen ist sehr ineffizient und aufgrund des Brechungsindexunterschiedes vom Halbleiter zur umgebenden Luft auf einige Prozent limitiert. Häufig werden QP deshalb in Resonatoren eingebettet um deren volles Potential auszuschöpfen. Durch geeignete Resonatorgeometrie können die Photonen zusätzlich räumlich kanalisiert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Mikrosäulenresonatoren verwendet, da das Licht in einem gaußförmigen Strahlprofil senkrecht zu Oberfläche emittiert wird und die Moden mit dem Durchmesser der Mikrotürmchen kontrolliert werden können [37].

Solche Proben wurden ebenfalls von R. Rödel gewachsen. Auf einem Si-dotierten 3" GaAs-Substrat wurde zunächst die Oxidschicht von der Oberfläche entfernt und zur Glättung eine 400 nm dicke, Si-dotierte GaAs-Pufferschicht bei einer Temperatur von 530 °C abgeschieden. Darauf folgt das Wachstum des unteren DBR-Spiegels, welcher aus insgesamt 40 Spiegelpaaren der Dicke  $\lambda/(4n_{1,2})$  besteht. Im Gegensatz zu Resonatoren mit InAs QP, wo in der Regel AlAs/GaAs für die DBRs verwendet wird, ergibt für InP QP diese Kombination keinen Sinn, da GaAs eine hohe Absorption im roten Spektralbereich aufweist. Aus diesem Grund wird für die Spiegel eine Kombination aus AlAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As verwendet. Diese

**Abbildung A-4:**

*Elektrisch kontaktierter Mikrosäulenresonator nach Planarisieren mit BCB und aufbringen des Oberflächen-Goldkontaktes. Es sind deutlich die beiden DBRs und im Zentrum die Kavität mit den integrierten QP zu erkennen [133].*



Materialkombination bringt leider auch Nachteile mit sich. Beispielsweise ist der Brechungsindexunterschied geringer, weshalb mehr Spiegelpaare benötigt werden um die gleiche Reflektivität zu erreichen. Zusätzlich sind die Qualitäten der Schichten mit zunehmenden Al-Gehalt reduziert. AlAs wurde mit einer Rate von 428 nm/h und  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  mit 1428 nm/h bei konstanter Temperatur abgeschieden. Für das Wachstum der  $\lambda$ -Kavität aus  $\text{Ga}_{0.51}\text{In}_{0.49}\text{P}$  wurde die Temperatur auf 470°C gesenkt. Im Zentrum wurden die InP QP mit einer Rate von 0.2 ML/s gewachsen, wobei insgesamt 1.3 ML in 13 Zyklen abgeschieden wurden. Darauf wurde der obere DBR bestehend aus nur 20 Spiegelpaaren gewachsen, um die Auskopplung zur Probenoberfläche hin zu erhöhen. Abschließend folgt noch eine 15 nm dicke Deckschicht aus GaAs zur Unterdrückung von Oberflächenoxidation der Al-haltigen Spiegel.

Es ist vorgesehen die Proben auch mittels elektrischer Anregung zu betreiben. Dafür wurden die Proben zusätzlich dotiert um eine *p-i-n* Struktur zu realisieren. Der untere Spiegel wurde mit Silizium-Atomen (Si) *p*-dotiert. Allerdings wird die Materialabsorption durch Dotierung erhöht, weshalb die Dotierkonzentration sukzessive vom Substrat zur Kavität hin verringert wurde. Die Kavität selbst bleibt intrinsisch, d. h. undotiert. Der obere DBR-Spiegel wurde mit Beryllium-Atomen (Be) *n*-dotiert, wobei hier die Konzentration umgekehrt von der Kavität zur Oberfläche hin erhöht wurde.

Für einen dreidimensionalen photonischen Einschluss werden Mikrotürmchen mit Durchmessern zwischen 1  $\mu\text{m}$  und 8  $\mu\text{m}$  in die planare Struktur geätzt. Dazu wird zunächst mittels Elektronenstrahlolithographie das gewünschte Layout geschrieben und durch reaktives Ionenätzen (ECR-RIE<sup>21</sup>) die Türmchen prozessiert. Für eine zusätzliche elektrische Kontaktierung wird die Probe mit BCB planarisiert und durch einen zweiten Lithographieprozess die elektrischen Kontakte definiert, welche anschließend aus Gold aufgedampft werden.

<sup>21</sup> Electron Cyclotron Resonance Reactive Ion Etching

**Abbildung A-5:**  
Energie bzw. Wellenlänge als Funktion der Gitterkonstanten für Nitrid-Verbindungshalbleiter. AlN hat eine Bandlücke von 6.23 eV und InN eine Bandlücke von 0.78 eV. Dazwischen liegt GaN mit einer Bandlücke von 3.28 eV

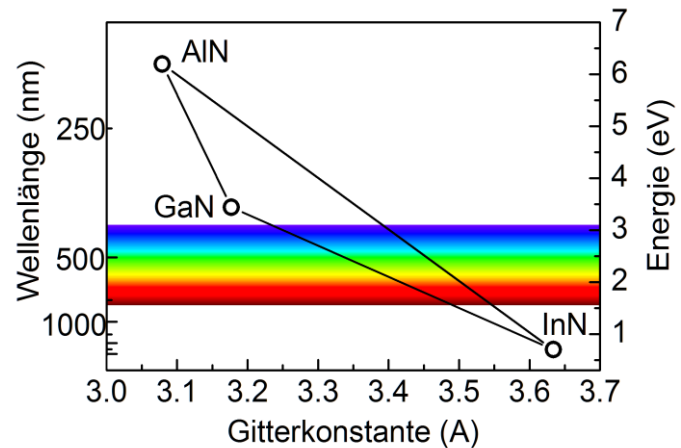


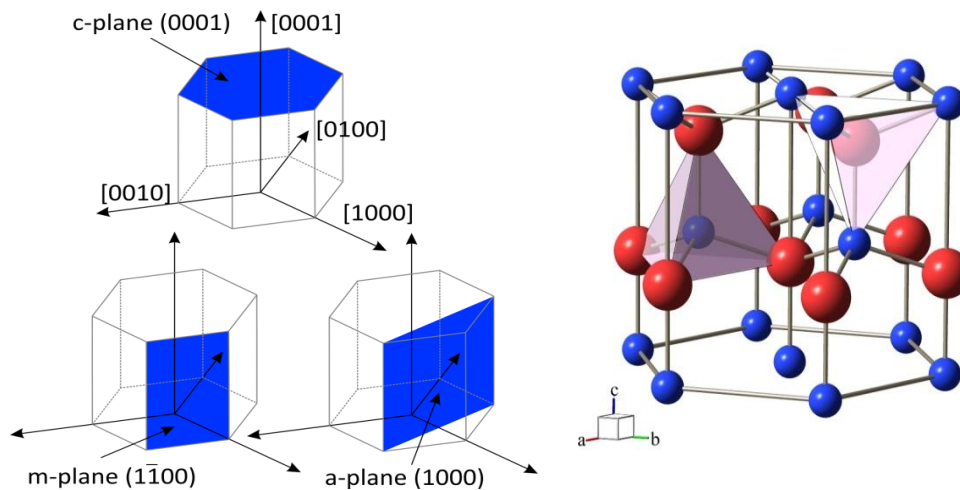
Abbildung A-4 (b) zeigt exemplarisch einen Querschnitt eines elektrisch kontaktierten AlAs/GaAs Mikrosäulenresonators mit einer GaAs Kavität und InAs QP, welcher unter gleichen Bedingungen hergestellt wurde [133]. Es sind deutlich die beiden DBRs, die Kavität mit eingebetteten QP, das umgebende BCB und der Gold-Oberflächenringkontakt zu erkennen.

## Nitrid-Verbindungshalbleiter

Im folgenden Abschnitt werden Unterschiede und Eigenschaften des Nitrid-Halbleitermaterialsystems zusammen mit den zugehörigen ternären Verbindungshalbleitern näher erläutert. Gallium-Nitrid (GaN) ist ein Halbleiter mit einer direkten Bandlücke von  $E_G = 3.503$  eV bei einer Temperatur von  $T = 1.6$  K [134], welcher vorzugsweise thermodynamisch stabil in der hexagonalen Wurtzit-Struktur kristallisiert. Ein zentrales Gruppe-III-Atom (Ga) ist von vier tetraedisch orientierten Gruppe-V-Atomen (N) umgeben, wie in Abbildung A-6 (b) dargestellt. Die Bindung zwischen den Atomen hat hauptsächlich kovalenten Charakter. Bei Raumtemperatur beträgt die Größe der Einheitszelle von GaN in der hexagonalen Ebene  $a = 3.189$  Å und senkrecht dazu in der Höhe  $c = 5.185$  Å [135].

Daraus ergeben sich für die Wurtzit-Struktur die beiden Symmetrieachsen  $a$  und  $c$ . Für die Beschreibung des GaN-Kristalls werden vier Einheitsvektoren definiert, drei in der hexagonalen Ebene und eine senkrecht dazu (parallel zur  $c$ -Achse). Man erhält für das hexagonale Gitter vier Millersche Indizes  $h, k, i, l$  mit der Nebenbedingung  $i = -(h+k)$ . Die zugehörigen Kristallebenen werden entsprechend der Richtung der Normalvektoren bezeichnet und sind in Abbildung A-6 (a) dargestellt. Danach ist die  $c$ -Achse als [0001]-Achse definiert.

Beim Wachstum von GaN-Strukturen in  $c$ -Richtung kommt es zu abwechselnden Ebenen zwischen N-Atomen und Ga-Atomen, welche um  $5/8$  entlang der  $c$ -Achse zueinander verschoben sind (Abbildung A-6 (b), nach [136]). Es besteht keine



**Abbildung A-6:** (a) Schematische Darstellung der hexagonalen Wurtzit-Einheitszelle. Zusätzlich sind die wesentlichen Kristallebenen farblich hervorgehoben. (b) Atomarer Aufbau der Wurtzit-Struktur mit Ga-Atomen (rot) und N-Atomen (Blau).

Spiegelsymmetrie zur  $c$ -Ebene, wodurch an den Grenzflächen des Kristalls eine spontane Polarisierung herrscht [137]. In GaN-Heterostrukturen spielt dieses eine entscheidende Rolle, da neben der spontanen Polarisierung bereits eine geringe Verspannung zu sehr starken piezoelektrischen Feldern in der Größenordnung von  $E \sim \text{MV/cm}$  führen kann [138]. Dies spiegelt sich auch in den elektrischen und optischen Eigenschaften wieder. In niederdimensionalen Strukturen, wie z. B. QP, erzeugt das Feld einen Gradienten in der Energiedispersion und es kommt zu einem Verkippen der Bänder, was als quantenmechanischer Stark-Effekt (QCSE<sup>22</sup>) bekannt ist [139]. Dies bedeutet eine Abnahme des Überlapps von Elektronen- und Lochwellenfunktion und einer damit einhergehenden reduzierten Übergangswahrscheinlichkeit. Dies resultiert in einer Abnahme der Intensität und Rotverschiebung der Lumineszenz verbunden mit einer längeren Lebensdauer der Zustände.

Ein Vorteil des Nitrid-Materialsystems ist die große Variation der Energie der Bandlücke von verschiedenen Verbindungshalbleitern. In Abbildung A-5 ist die Energie der Bandlücke als Funktion der Gitterkonstanten für verschiedene Nitrid-Verbindungen aufgetragen. Durch Legieren von zwei oder mehr Verbindungshalbleitern ist es möglich, die Bandlücke von ternären Verbindungen zwischen 0.78 eV für reines InN und 6.23 eV für AlN einzustellen [140]. Allgemein kann die Energie der Bandlücke einer ternären (Nitrid-)Verbindung  $E_g^{AB}$  durch die Energien der jeweiligen Konstituenten  $E_g^A$  und  $E_g^B$  sowie einen Biegeparameter  $b$  (bowing parameter) bestimmt werden [65]:

<sup>22</sup> Quantum Confined Stark Effect



$$E_G^{AB}(x) = x \cdot E_G^A + (1 - x) \cdot E_G^B + x \cdot (1 - x) \cdot b \quad (72)$$

Für den ternären Verbindungshalbleiter  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  werden für  $E_G^{\text{GaN}} = 3.51$  eV,  $E_G^{\text{InN}} = 0.78$  eV und für den Biegeparameter  $b = 1.43$  angenommen [140, 141]. Im Umkehrschluss kann somit aus der Lumineszenz-Energie die In- bzw. Ga-Konzentration abgeschätzt werden.

---

### Wachstum von InGaN Quantenpunkten

---

Die in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden an der Universität Bremen in der Arbeitsgruppe von Prof. Hommel mittels metallorganischer Gasphasenepitaxie (MOVPE<sup>23</sup>) hergestellt. Dies war eine Kooperation im Rahmen des QPENS-Forschungsvorhabens zur Realisierung von Einzelphotonenquellen. Zur Nachvollziehbarkeit werden hier nur kurz die wichtigsten Schritte für die Herstellung der Proben aufgeführt:

Ausgangspunkt der GaN-Probe bildet ein Saphir-Wafer. Zunächst wurde eine 450 nm dicke Schicht GaN abgeschieden, um ein relaxiertes GaN-Template zu erhalten. Die Wachstumstemperatur wurde dabei von anfänglich 550 °C auf 1050 °C erhöht, so dass eine geschlossene, homogene und defektfreie Schicht entsteht. Anschließend wird eine 1150 nm dicke, Si-dotierte GaN Schicht gewachsen. Nun folgt die aktive Schicht, bestehend aus einer 1.5 nm dicken InGaN Nukleations-schicht (600 °C – 650 °C) mit 82 % In-Gehalt in der Gasphase und einer 6 nm dicken GaN Formationsschicht (700 °C – 750 °C) aufgebracht. Abgedeckt wird diese von einer 25 nm dicken GaN-Schicht, welche anfänglich bei einer Temperatur von 820 °C bis schließlich 1050 °C hergestellt wird. Die oberste Deckschicht aus 25 nm GaN wird bei ebenfalls 1050 °C abgeschieden. Der Druck während des Wachstumsprozesses lag bei 100 Torr (13.3 kPa) für die Barrierschichten und bei 700 Torr (93.3 kPa) für die aktive Schicht.

Die Formierung der In-haltigen QP erfolgt in der aktiven Schicht. Jedoch unterscheidet sich dieser Formierungsprozess von dem weit verbreiteten SK-Wachstumsmodus. Nach Tessarek et al. basiert der QP-Wachstumsprozess auf dem Modell der Phasenseparation durch spinodale und binodale Entmischung [21]. Der ternäre Verbindungshalbleiter  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  befindet sich für eine feste In-Konzentration und entsprechender Temperatur entweder im thermodynamisch stabilen, metastabilen oder instabilen Bereich. Thermodynamisch gesehen ist es für die Formationsschicht günstiger in lokale Bereiche mit hoher bzw. niedriger In-Konzentration zu separieren. Diese Zustände befinden sich im Phasenraum auf der spinodalen Kurve, welches die Grenze zwischen stabilen und metastabilen Mischverhältnis beschreibt. Aufgrund der Temperaturerhöhung während des

---

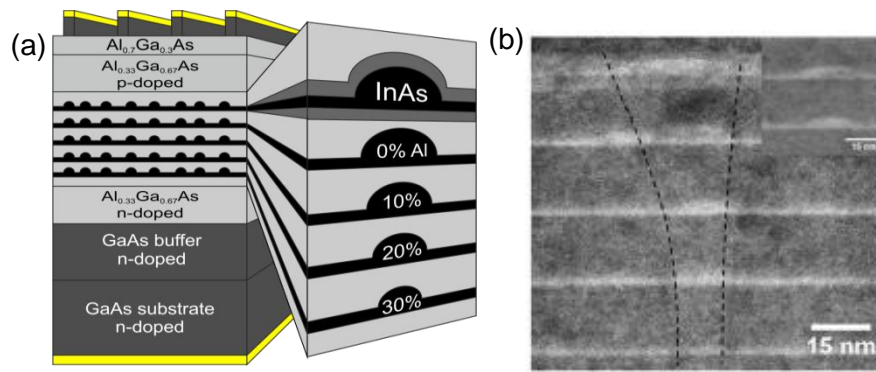
<sup>23</sup> Metal Organic Vapor Phase Epitaxy

Wachstumsprozesses diffundieren die Bereiche mit hoher In-Konzentration aus der Schicht heraus und es bleiben räumlich getrennte InGaN QP mit geringerer In-Konzentration zurück. Anschließend werden die QP von der Formationsschicht bedeckt, was zu einer geschlossenen Schicht und zu einem dreidimensionalen Einschluss führt.

### Arsenid-Verbindungshalbleiter für Solarzellen

Im Bereich von kommerziell erhältlichen Halbleitersolarzellen ist Silizium in seinen verschiedenen kristallinen Formen das am weitesten verbreitete Materialsystem mit einem Marktanteil von 88 % im Jahre 2010 [142]. Daneben existieren mittlerweile eine ganze Anzahl von alternativen Materialsystemen, allen voran Dünnschichtsolarzellen [143] wie z. B. Kupfer-Indium-Schwefel-Selen-Verbindungen (CIGS-Solarzellen) oder auch organische Solarzellen aus verschiedenen Kohlenwasserstoff-Verbindungen [144]. Im Bereich von Hochleistungs- oder Weltraumsolarzellen werden häufig auch III-V Materialkombinationen verwendet [145]. Alle im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Proben basieren auf Gruppe-III Arsenid-Verbindungshalbleitern und wurden mittels MBE durch Dr. C. Schneider gewachsen. Durch geeignete Wahl der Materialkomponenten wurden spannungsinduzierte selbstorganisierte QP in das Bauteil integriert. In diesem Fall wurden quaternäre AlGaInAs QP gewählt, da die Emissionswellenlänge in einem breiten Spektralbereich durch Variation von In-und/oder Al-Konzentration eingestellt werden kann [121].

Der Schichtunterbau ist für alle Proben identisch. Als Grundlage diente ein *n*-dotiertes GaAs Substrat auf dem eine 300 nm dicke, *n*-dotierte GaAs Zwischenschicht gewachsen wurde. Anschließend folgt eine ebenfalls 300 nm dicke, *n*-dotierte Al<sub>0.33</sub>Ga<sub>0.67</sub>As Zwischenschicht. Darauf wurde der intrinsische Bereich abgeschieden, der sich bei den verschiedenen Proben wie folgt unterscheidet:



**Abbildung A-7:** (a) Schematische Aufbau der Solarzellen-Proben SC-1. Die Quantenpunkte sind im Zentrum des intrinsischen Bereichs integriert. (b) STEM Bild der vertikal geschichteten Quantenpunkte mit 20 nm Zwischenschichten.

Die Probe REF dient als Referenzprobe. Hier wurde lediglich intrinsisches  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$  abgeschieden, um den Einfluss des Barrieren-Materials zu untersuchen. In Probe SC-1 wurden im Zentrum des intrinsischen Bereichs fünf Schichten von QP eingebettet. Die ersten vier Schichten sind  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_{0.43}\text{As}$  QP, wobei der Aluminium-Anteil von 30 % bei der untersten Schicht, hin zu 20 %, 10 % und schließlich 0 % bei der vierten Schicht variierte. Abschließend wurde eine Schicht von InAs QP gewachsen, welche zwischen zwei 5 nm dicken GaAs Schichten eingebettet ist. Zwischen den einzelnen QP-Schichten wurde jeweils eine 20 nm Zwischenschicht eingebracht. Der gesamte Schichtaufbau von SC-1 ist schematisch in Abbildung A-7 (a) skizziert. In Abbildung A-7 (b) der Querschnitt einer STEM<sup>24</sup>-Aufnahme gezeigt. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich die QP selbst durch die 20 nm dicke Zwischenschicht aufgrund von Verspannungen vertikal zueinander ausrichten. Die Probe SC-2 ist identisch mit der Probe SC-1, jedoch wurden zwischen die jeweiligen QP-Schichten zusätzliche Silizium  $\delta$ -Dotierungen eingebracht. Dafür wurde eine Dotierkonzentration von  $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  gewählt, welche in der Größenordnung der QP-Dichte liegt. Durch die  $\delta$ -Dotierung sollen zusätzliche Ladungsträger eingebracht werden, welche das Zwischenband mit Elektronen auffüllen [123]. In Probe SC-3 wurden anstatt einer Schicht jeweils fünf Schichten der entsprechenden QP gewachsen, welche ebenfalls durch eine 20 nm Zwischenschicht voneinander getrennt sind. Dagegen wurde bei der Probe SC-4 die Reihenfolge der QP umgekehrt, d. h. es wurden zuerst die InAs/GaAs QP gewachsen. Anschließend wurden die AlGaInAs QP mit 0 % Al-Gehalt, gefolgt von den 10 %, 20 % und abschließend 30 % Al-Gehalt eingebracht. Auch hier wurden die QP-Schichten durch 20 nm Zwischenschichten voneinander getrennt. Probe SC-5 ist wieder identisch mit Probe SC-1, jedoch wurde die Dicke der Zwischenschichten auf

<sup>24</sup> Scanning Transmission Electron Microscopy

10 nm verkleinert. Eine Zusammenstellung zum Aufbau der verschiedenen Proben ist in Tabelle 3 aufgeführt.

Für alle Proben wurde auf den intrinsischen Bereich anschließend eine kohlenstoffdotierte, 250 nm dicke  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$  Schicht gefolgt von einer 50 nm dicken, ebenfalls  $p$ -dotierte  $\text{Al}_{0.70}\text{Ga}_{0.30}\text{As}$  Schicht gewachsen, welche als Stopp-Schicht für den Ätzprozess wirkt. Zur elektrischen Kontaktierung wurde noch eine mit Kohlenstoff hochdotierte GaAs Schicht abgeschieden. Um den Photostrom abgreifen zu können, wurde die Substratseite großflächig mit Gold bedampft. Auf der Oberseite hingegen wurden ca. 150  $\mu\text{m}$  breite Goldstreifen mit einem Abstand von etwa 2 mm aufgedampft. Zwischen den jeweiligen Streifen wurde das stark absorbierende GaAs mit Zitronensäure selektiv weggeätzt. Ein weiterer Vorteil ist, dass nun die  $\text{Al}_{0.70}\text{Ga}_{0.30}\text{As}$  Schicht frei an der Oberfläche liegt. Durch den Kontakt mit Sauerstoff bildet sich eine natürliche  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schicht, welche bei vielen anderen Solarzellen als Anti-Reflexion-Schicht zusätzlich aufgebracht wird [146]. Die verschiedenen Proben ermöglichen es, den Einfluss von  $\delta$ -Dotierungen, Anzahl der QP, Reihenfolge der QP sowie der Abstand zwischen den einzelnen Schichten mit der Auswirkung auf die Güte der Solarzellen zu untersuchen.

	Aktive Schicht	Dotierung	QP Reihenfolge	Zwischenschicht
REF	AlGaAs Volumen	--	--	--
SC-1	5 Schichten QP	--	normal	20nm
SC-2	5 Schichten QP	$\delta$ -Dotierung	normal	20nm
SC-3	25 Schichten QP	$\delta$ -Dotierung	normal	20nm
SC-4	5 Schichten QP	$\delta$ – Dotierung	invertiert	20nm
SC-5	5 Schichten QP	$\delta$ – Dotierung	normal	10nm

**Tabelle 3:** Übersicht der sechs Solarzellenproben mit den jeweiligen Unterschieden im aktiven Bereich

## Literaturverzeichnis

1. Statistisches\_Bundesamt, *28 Millionen Haushalte in Deutschland haben einen Breitbandanschluss*, Pressemitteilung, Nr. 474, 2011). [https://www.destatis.de/DE/PresseService/Presse/Pressemitteilungen/2011/12/PD11\\_474\\_63931.html](https://www.destatis.de/DE/PresseService/Presse/Pressemitteilungen/2011/12/PD11_474_63931.html)
2. ECO, Verband der deutschen Internetwirtschaft e.V., *Weltinternettag 2012: Internet entwickelt sich zum Wirtschaftsmotor Deutschlands*, 29.10.2012, (2012). <http://www.eco.de/2012/pressemeldungen/weltinternettag-2012-internet-entwickelt-sich-zum-wirtschaftsmotor-deutschlands.html>
3. Hillerkuss D, Schmogrow R, *et al.*, *26 Tbit s<sup>-1</sup> line-rate super-channel transmission utilizing all-optical fast Fourier transform processing*. Nat Photon, **5** (6), 364 (2011).
4. BITKOM, Bundesverband Informationswirtschaft Telekommunikation und neue Medien e.V., *Stromverbrauch von Rechenzentren und Servern sinkt*, 21.05.2012, (2012). [http://www.bitkom.org/de/presse/8477\\_72267.aspx](http://www.bitkom.org/de/presse/8477_72267.aspx)
5. Google, *Google green*, 2012). <http://www.google.com/green/bigpicture/>
6. W. Shockley and H. J. Queisser, *Detailed Balance Limit of Efficiency of p-n Junction Solar Cells*. Journal of Applied Physics, **32** (3), 510 (1961).
7. G. F. Brown and J. Wu, *Third generation photovoltaics*. Laser & Photonics Reviews, **3** (4), 394 (2009).
8. I. A. Yugova, I. Y. Gerlovin, *et al.*, *Fine structure and spin quantum beats in InP quantum dots in a magnetic field*. Phys Rev B, **66** (23), 235312 (2002).
9. C. E. Shannon, *Communication Theory of Secrecy Systems*. Bell System Technical Journal, **28** (4), 656 (1949).
10. W. K. Wootters and W. H. Zurek, *A single quantum cannot be cloned*. Nature, **299** (5886), 802 (1982).
11. C. H. Bennett and G. Brassard, presented at the International Conference on Computers, Systems & Signal Processing, Bangalore, India, 1984 (unpublished).
12. E. Waks, K. Inoue, *et al.*, *Secure communication: Quantum cryptography with a photon turnstile*. Nature, **420** (6917), 762 (2002).
13. P. Michler, A. Kiraz, *et al.*, *A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device*. Science, **290** (5500), 2282 (2000).
14. R. Dingle, W. Wiegmann, *et al.*, *Quantum States of Confined Carriers in Very Thin Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As-GaAs-Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As Heterostructures*. Phys Rev Lett, **33** (14), 827 (1974).
15. A. J. Shields, *Semiconductor quantum light sources*. Nat Photon, **1** (4), 215 (2007).
16. M. A. Reed, R. T. Bate, *et al.*, *Spatial quantization in GaAs/AlGaAs multiple quantum dots*. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, **4** (1), 358 (1986).
17. P. M. Petroff, A. Lorke, *et al.*, *Epitaxially Self-Assembled Quantum Dots*. Physics Today, **54** (5), 46 (2001).
18. D. Leonard, M. Krishnamurthy, *et al.*, *Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces*. Appl Phys Lett, **63** (23), 3203 (1993).
19. A. Löffler, J.-P. Reithmaier, *et al.*, *Influence of the strain on the formation of GaInAs/GaAs quantum structures*. J Cryst Growth, **286** (1), 6 (2006).

20. R. Rödel, A. Bauer, *et al.*, *Density and size control of InP/GaInP quantum dots on GaAs substrate grown by gas source molecular beam epitaxy*. *Nanotechnology*, **23** (1), 015605 (2012).
21. C. Tessarek, S. Figge, *et al.*, *Strong phase separation of strained  $In_xGa_{1-x}N$  layers due to spinodal and binodal decomposition: Formation of stable quantum dots*. *Phys Rev B*, **83** (11), 115316 (2011).
22. C. Schneider, M. Strauss, *et al.*, *Lithographic alignment to site-controlled quantum dots for device integration*. *Appl Phys Lett*, **92** (18), 183101 (2008).
23. C. Schneider, A. Huggenberger, *et al.*, *Single site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots: growth, properties and device integration*. *Nanotechnology*, **20** (43), 434012 (2009).
24. V. Baumann, F. Stumpf, *et al.*, *Site-controlled InP/GaInP quantum dots emitting single photons in the red spectral range*. *Appl Phys Lett*, **100** (9), 091109 (2012).
25. V. Baumann, F. Stumpf, *et al.*, *Site-controlled growth of InP/GaInP quantum dots on GaAs substrates*. *Nanotechnology*, **23** (37), 375301 (2012).
26. C. Kittel, *Introduction to solid state physics*. (Wiley, Hoboken, NJ, 2005).
27. Y. Z. Hu, S. W. Koch, *et al.*, *Biexcitons in semiconductor quantum dots*. *Phys Rev Lett*, **64** (15), 1805 (1990).
28. M. Bayer, O. Stern, *et al.*, *Hidden symmetries in the energy levels of excitonic /artificial atoms/*. *Nature*, **405** (6789), 923 (2000).
29. M. Bayer and A. Forchel, *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in In(0.60)Ga(0.40)As/GaAs self-assembled quantum dots*. *Phys Rev B*, **6504** (4), 1308 (2002).
30. O. Benson, C. Santori, *et al.*, *Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot*. *Phys Rev Lett*, **84** (11), 2513 (2000).
31. M. Bayer, G. Ortner, *et al.*, *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots*. *Phys Rev B*, **65** (19), 195315 (2002).
32. R. J. Glauber, *Coherent and Incoherent States of the Radiation Field*. *Physical Review*, **131** (6), 2766 (1963).
33. S. Ulrich, *Non-Classical and Stimulated Photon Emission Processes from Self-Assembled Semiconductor Quantum Dots*. Dissertation, Stuttgart, 2006.
34. T. Yoshie, A. Scherer, *et al.*, *Optical characterization of two-dimensional photonic crystal cavities with indium arsenide quantum dot emitters*. *Appl Phys Lett*, **79** (1), 114 (2001).
35. S. Reitzenstein and A. Forchel, *Quantum dot micropillars*. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **43** (3), 033001 (2010).
36. H. Li and K. Iga, *Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser Devices* (Springer, Berlin, 2002).
37. T. Gutbrod, M. Bayer, *et al.*, *Weak and strong coupling of photons and excitons in photonic dots*. *Phys Rev B*, **57** (16), 9950 (1998).
38. T. Rivera, J. P. Debray, *et al.*, *Optical losses in plasma-etched AlGaAs microresonators using reflection spectroscopy*. *Appl Phys Lett*, **74** (7), 911-913 (1999).
39. C. P. Michael, K. Srinivasan, *et al.*, *Wavelength- and material-dependent absorption in GaAs and AlGaAs microcavities*. *Appl Phys Lett*, **90** (5), 051108-051103 (2007).
40. B. W. Shore and P. L. Knight, *The Jaynes-Cummings Model*. *Journal of Modern Optics*, **40** (7), 1195 (1993).
41. L. C. Andreani, G. Panzarini, *et al.*, *Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory*. *Phys Rev B*, **60** (19), 13276 (1999).

42. E. M. Purcell, *Spontaneous emission probabilities at radio frequencies*. Physical Review, **69**, 681 (1946).
43. B. Gayral and J. M. Gérard, *Comment on "Single-Mode Spontaneous Emission from a Single Quantum Dot in a Three-Dimensional Microcavity"*. Phys Rev Lett, **90** (22), 229701 (2003).
44. M. A. Green, K. Emery, *et al.*, *Solar cell efficiency tables (version 41)*. Progress in Photovoltaics: Research and Applications, **21** (1), 1 (2013).
45. S. M. Sze and K. K. Ng, *Physics of semiconductor devices*. (Wiley-Interscience, Hoboken, N.J., 2007).
46. P. Würfel and U. Würfel, *Physics of solar cells : from basic principles to advanced concepts*. (Wiley-VCH, Weinheim, 2009).
47. R. Hanbury Brown and R. Q. Twiss, *The Question of Correlation between Photons in Coherent Light Rays*. Nature, **178** (4548), 1447 (1956).
48. V. D. Kulakovskii, G. Bacher, *et al.*, *Fine Structure of Biexciton Emission in Symmetric and Asymmetric CdSe/ZnSe Single Quantum Dots*. Phys Rev Lett, **82** (8), 1780 (1999).
49. J. Persson, M. Holm, *et al.*, *Optical and theoretical investigations of small InP quantum dots in Ga<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>P*. Phys Rev B, **67** (3), 035320 (2003).
50. M. Sugisaki, H. W. Ren, *et al.*, *Many carrier effects in self-assembled InP quantum dots*. Solid State Communications, **117** (7), 435 (2001).
51. E. Moreau, I. Robert, *et al.*, *Quantum Cascade of Photons in Semiconductor Quantum Dots*. Phys Rev Lett, **87** (18), 183601 (2001).
52. S. Stufler, P. Ester, *et al.*, *Power broadening of the exciton linewidth in a single InGaAs/GaAs quantum dot*. Appl Phys Lett, **85** (18), 4202 (2004).
53. H. Kamada, J. Temmyo, *et al.*, *Dephasing Processes in Self-Organized Strained InGaAs Single-Dots on (311)B-GaAs Substrate*. Japanese Journal of Applied Physics, **36** (Copyright (C) 1997 Publication Board, Japanese Journal of Applied Physics), 4194 (1997).
54. D. Gammon, E. S. Snow, *et al.*, *Excited state spectroscopy of excitons in single quantum dots*. Appl Phys Lett, **67** (16), 2391 (1995).
55. H.-W. Ren, M. Sugisaki, *et al.*, *Lateral Composition Modulation Induced Optical Anisotropy in InP/GaInP Quantum Dot System*. Japanese Journal of Applied Physics, **38** (Copyright (C) 1999 Publication Board, Japanese Journal of Applied Physics), 2438.
56. A. Ugur, F. Hatami, *et al.*, *Highly polarized self-assembled chains of single layer InP/(In,Ga)P quantum dots*. Appl Phys Lett, **97** (25), 253113 (2010).
57. C. Ellström, W. Seifert, *et al.*, *Exciton fine structure splitting in InP quantum dots in GaInP*. Journal of Physics: Condensed Matter, **19** (29), 295211 (2007).
58. D. J. P. Ellis, R. M. Stevenson, *et al.*, *Control of fine-structure splitting of individual InAs quantum dots by rapid thermal annealing*. Appl Phys Lett, **90** (1), 011907 (2007).
59. S. Seidl, M. Kroner, *et al.*, *Effect of uniaxial stress on excitons in a self-assembled quantum dot*. Appl Phys Lett, **88** (20), 203113 (2006).
60. B. D. Gerardot, S. Seidl, *et al.*, *Manipulating exciton fine structure in quantum dots with a lateral electric field*. Appl Phys Lett, **90** (4), 041101 (2007).
61. R. M. Stevenson, R. J. Young, *et al.*, *Magnetic-field-induced reduction of the exciton polarization splitting in InAs quantum dots*. Phys Rev B, **73** (3), 033306 (2006).
62. M. Sugisaki, H.-W. Ren, *et al.*, *External-field effects on the optical spectra of self-assembled InP quantum dots*. Phys Rev B, **66** (23), 235309 (2002).

63. A. Ugur, F. Hatami, *et al.*, *Single-dot optical emission from ultralow density well-isolated InP quantum dots*. Appl Phys Lett, **93** (14), 143111 (2008).
64. S. Adachi, *Material parameters of  $In_{1-x}Ga_xAs_yP_{1-y}$  and related binaries*. Journal of Applied Physics, **53** (12), 8775 (1982).
65. I. Vurgaftman, J. R. Meyer, *et al.*, *Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys*. Journal of Applied Physics, **89** (11), 5815 (2001).
66. M. Sugisaki, H.-W. Ren, *et al.*, *Magnetic field effects in InP self-assembled quantum dots*. Physica B: Condensed Matter, **256–258** (0), 169 (1998).
67. J. Skiba-Szymanska, E. A. Chekhovich, *et al.*, *Overhauser effect in individual InP/Ga<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>P dots*. Phys Rev B, **77** (16), 165338 (2008).
68. J. Claudon, J. Bleuse, *et al.*, *A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire*. Nat Photon, **4** (3), 174 (2010).
69. P. Michler, in *Single Quantum Dots* (Springer Berlin Heidelberg, 2003), Vol. 90, pp. 315.
70. C. Pryor, M. E. Pistol, *et al.*, *Electronic structure of strained InP/Ga<sub>0.51</sub>In<sub>0.49</sub>P quantum dots*. Phys Rev B, **56** (16), 10404 (1997).
71. F. Hatami, N. N. Ledentsov, *et al.*, *Radiative recombination in type-II GaSb/GaAs quantum dots*. Appl Phys Lett, **67** (5), 656 (1995).
72. E. R. Glaser, B. R. Bennett, *et al.*, *Photoluminescence studies of self-assembled InSb, GaSb, and AlSb quantum dot heterostructures*. Appl Phys Lett, **68** (25), 3614 (1996).
73. D. Hessman, J. Persson, *et al.*, *Electron accumulation in single InP quantum dots observed by photoluminescence*. Phys Rev B, **64** (23), 233308 (2001).
74. V. Zwiller, T. Aichele, *et al.*, *Single-photon Fourier spectroscopy of excitons and biexcitons in single quantum dots*. Phys Rev B, **69** (16), 165307 (2004).
75. C. Kistner, T. Heindel, *et al.*, *Demonstration of strong coupling via electro-optical tuning in high-quality QD-micropillar systems*. Opt. Express, **16** (19), 15006 (2008).
76. S. Reitzenstein, S. Münch, *et al.*, *Control of the Strong Light-Matter Interaction between an Elongated In<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As Quantum Dot and a Micropillar Cavity Using External Magnetic Fields*. Phys Rev Lett, **103** (12), 127401 (2009).
77. M. Munsch, A. Mosset, *et al.*, *Continuous-wave versus time-resolved measurements of Purcell factors for quantum dots in semiconductor microcavities*. Phys Rev B, **80** (11), 115312 (2009).
78. J. P. Reithmaier, G. Sek, *et al.*, *Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system*. Nature, **432** (7014), 197 (2004).
79. M. Reischle, G. J. Beirne, *et al.*, *Electrically pumped single-photon emission in the visible spectral range up to 80 K*. Opt Express, **16** (17), 12771 (2008).
80. C. Bockler, S. Reitzenstein, *et al.*, *Electrically driven high-Q quantum dot-micropillar cavities*. Appl Phys Lett, **92** (9), 091107 (2008).
81. C. Hums, T. Finger, *et al.*, *Fabry-Perot effects in InGaN/GaN heterostructures on Si-substrate*. Journal of Applied Physics, **101** (3), 033113 (2007).
82. D. P. Williams, A. D. Andreev, *et al.*, *Surface integral determination of built-in electric fields and analysis of exciton binding energies in nitride-based quantum dots*. Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures, **21** (2–4), 358 (2004).
83. H. Schömig, S. Halm, *et al.*, *Probing Individual Localization Centers in an InGaN/GaN Quantum Well*. Phys Rev Lett, **92** (10), 106802 (2004).
84. S. Kako, K. Hoshino, *et al.*, *Exciton and biexciton luminescence from single hexagonal GaN/AlN self-assembled quantum dots*. Appl Phys Lett, **85** (1), 64 (2004).



85. D. V. Regelman, D. Gershoni, *et al.*, *Spectroscopy of positively and negatively charged quantum dots: wave function extent of holes and electrons*. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, **13** (2–4), 114 (2002).
86. Y. P. Varshni, *Temperature dependence of the energy gap in semiconductors*. *Physica*, **34** (1), 149 (1967).
87. K. P. O'Donnell and X. Chen, *Temperature dependence of semiconductor band gaps*. *Appl Phys Lett*, **58** (25), 2924 (1991).
88. D. Bimberg, M. Sondergeld, *et al.*, *Thermal Dissociation of Excitons Bounds to Neutral Acceptors in High-Purity GaAs*. *Phys Rev B*, **4** (10), 3451 (1971).
89. G. Bacher, H. Schweizer, *et al.*, *Influence of barrier height on carrier dynamics in strained  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  quantum wells*. *Phys Rev B*, **43** (11), 9312 (1991).
90. M. E. Levinshtein, S. L. Rumyantsev, *et al.*, *Properties of advanced semiconductor materials : GaN, AlN, InN, BN, SiC, SiGe*. (Wiley, New York, 2001).
91. R. Seguin, S. Rodt, *et al.*, *Multi-excitonic complexes in single InGaN quantum dots*. *Appl Phys Lett*, **84** (20), 4023 (2004).
92. M. Winkelkemper, A. Schliwa, *et al.*, *Interrelation of structural and electronic properties in  $In_xGa_{1-x}N/GaN$  quantum dots using an eight-band  $k\cdot p$  model*. *Phys Rev B*, **74** (15), 155322 (2006).
93. V. Zwiller, L. Jarlskog, *et al.*, *Photoluminescence polarization of single InP quantum dots*. *Phys Rev B*, **63** (23), 233301 (2001).
94. M. Winkelkemper, R. Seguin, *et al.*, *Polarized emission lines from A- and B-type excitonic complexes in single InGaN/GaN quantum dots*. *Journal of Applied Physics*, **101** (11), 113708 (2007).
95. R. Bardoux, T. Guillet, *et al.*, *Polarized emission from GaN/AlN quantum dots: Single-dot spectroscopy and symmetry-based theory*. *Phys Rev B*, **77** (23), 235315 (2008).
96. K. Sebald, H. Lohmeyer, *et al.*, *Micro-photoluminescence studies of InGaN/GaN quantum dots up to 150 K*. *physica status solidi (b)*, **243** (7), 1661 (2006).
97. A. D. Andreev and E. P. O'Reilly, *Theory of the electronic structure of GaN/AlN hexagonal quantum dots*. *Phys Rev B*, **62** (23), 15851 (2000).
98. N. Akopian, N. H. Lindner, *et al.*, *Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots*. *Phys Rev Lett*, **96** (13), 130501 (2006).
99. H. Tobias, A. K. Christian, *et al.*, *Quantum key distribution using quantum dot single-photon emitting diodes in the red and near infrared spectral range*. *New Journal of Physics*, **14** (8), 083001 (2012).
100. S. Kako, C. Santori, *et al.*, *A gallium nitride single-photon source operating at 200K*. *Nat Mater*, **5** (11), 887 (2006).
101. G. Conibeer, *Third-generation photovoltaics*. *Materials Today*, **10** (11), 42 (2007).
102. A. De Vos and H. Pauwels, *On the thermodynamic limit of photovoltaic energy conversion*. *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, **25** (2), 119 (1981).
103. M. A. Green, K. Emery, *et al.*, *Solar cell efficiency tables (version 39)*. *Progress in Photovoltaics: Research and Applications*, **20** (1), 12-20 (2012).
104. H. A. Atwater and A. Polman, *Plasmonics for improved photovoltaic devices*. *Nat Mater*, **9** (3), 205 (2010).
105. A. Polman and H. A. Atwater, *Photonic design principles for ultrahigh-efficiency photovoltaics*. *Nat Mater*, **11** (3), 174 (2012).
106. A. Luque and A. Martí, *Increasing the Efficiency of Ideal Solar Cells by Photon Induced Transitions at Intermediate Levels*. *Phys Rev Lett*, **78** (26), 5014 (1997).

107. T. Nozawa and Y. Arakawa, *Detailed balance limit of the efficiency of multilevel intermediate band solar cells*. Appl Phys Lett, **98** (17), 171108 (2011).
108. K. M. Yu, W. Walukiewicz, *et al.*, *Multiband GaNAsP quaternary alloys*. Appl Phys Lett, **88** (9), 092110 (2006).
109. K. M. Yu, W. Walukiewicz, *et al.*, *Diluted II-VI Oxide Semiconductors with Multiple Band Gaps*. Phys Rev Lett, **91** (24), 246403 (2003).
110. P. Wahnón and C. Tablero, *Ab initio electronic structure calculations for metallic intermediate band formation in photovoltaic materials*. Phys Rev B, **65** (16), 165115 (2002).
111. A. Marti, L. Cuadra, *et al.*, presented at the Photovoltaic Specialists Conference, 2000. Conference Record of the Twenty-Eighth IEEE, 2000 (unpublished).
112. A. Luque, A. Marti, *et al.*, *General equivalent circuit for intermediate band devices: Potentials, currents and electroluminescence*. Journal of Applied Physics, **96** (1), 903 (2004).
113. C. G. Bailey, D. V. Forbes, *et al.*, *Near 1 V open circuit voltage InAs/GaAs quantum dot solar cells*. Appl Phys Lett, **98** (16), 163105 (2011).
114. D. Guimard, R. Morihara, *et al.*, *Fabrication of InAs/GaAs quantum dot solar cells with enhanced photocurrent and without degradation of open circuit voltage*. Appl Phys Lett, **96** (20), 203507 (2010).
115. R. B. Laghumavarapu, M. El-Emawy, *et al.*, *Improved device performance of InAs/GaAs quantum dot solar cells with GaP strain compensation layers*. Appl Phys Lett, **91** (24), 243115 (2007).
116. T. Sugaya, S. Furue, *et al.*, *Highly stacked and well-aligned In<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>As quantum dot solar cells with In<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>As cap layer*. Appl Phys Lett, **97** (18), 183104 (2010).
117. A. Marti and A. Luque, *Next Generation Photovoltaics - High efficiency through full spectrum utilization*. (Institute of Physics Publishing, Bristol and Philadelphia, 2004).
118. R. Oshima, A. Takata, *et al.*, *Strain-compensated InAs/GaNAs quantum dots for use in high-efficiency solar cells*. Appl Phys Lett, **93** (8), 083111 (2008).
119. C. G. Bailey, S. M. Hubbard, *et al.*, *Evaluation of strain balancing layer thickness for InAs/GaAs quantum dot arrays using high resolution x-ray diffraction and photoluminescence*. Appl Phys Lett, **95** (20), 203110 (2009).
120. A. Marti, N. Lopez, *et al.*, *Emitter degradation in quantum dot intermediate band solar cells*. Appl Phys Lett, **90** (23), 233510 (2007).
121. T. W. Schlereth, C. Schneider, *et al.*, *Tailoring of morphology and emission wavelength of AlGaInAs quantum dots*. Nanotechnology, **19** (4), 045601 (2008).
122. A. J. Nozik, *Multiple exciton generation in semiconductor quantum dots*. Chemical Physics Letters, **457** (1–3), 3 (2008).
123. A. Martí, N. López, *et al.*, *Novel semiconductor solar cell structures: The quantum dot intermediate band solar cell*. Thin Solid Films, **511–512** (0), 638 (2006).
124. M. Califano, A. Zunger, *et al.*, *Efficient Inverse Auger Recombination at Threshold in CdSe Nanocrystals*. Nano Letters, **4** (3), 525 (2004).
125. A. Martí, E. Antolín, *et al.*, *Production of Photocurrent due to Intermediate-to-Conduction-Band Transitions: A Demonstration of a Key Operating Principle of the Intermediate-Band Solar Cell*. Phys Rev Lett, **97** (24), 247701 (2006).
126. I. N. Stranski and L. Krastanov, *Abhandlungen der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Klasse*. Akademie der Wissenschaften und der Literatur in Mainz, **146**, 797 (1939).
127. A. Ugur, *Epitaxial growth of III-V semiconductors and Quantum Dots*. PhD, HU Berlin, 2012.

128. D. Richter, R. Rossbach, *et al.*, *Low-density InP quantum dots embedded in Ga<sub>0.51</sub>In<sub>0.49</sub>P with high optical quality realized by a strain inducing layer*. Appl Phys Lett, **97** (6), 063107 (2010).
129. R. Rödel, *Wachstum und Charakterisierung von (Al,Ga)InP Quantenpunkten auf GaAs Substrat für Einzelphotonenanwendungen*. University Würzburg, 2011.
130. M. Zinke-Allmang, L. C. Feldman, *et al.*, *Clustering on surfaces*. Surface Science Reports, **16** (8), 377 (1992).
131. Y. Nakata, K. Mukai, *et al.*, *Molecular beam epitaxial growth of InAs self-assembled quantum dots with light-emission at 1.3  $\mu$ m*. J Cryst Growth, **208** (1–4), 93 (2000).
132. A. Convertino, L. Cerri, *et al.*, *Growth interruption to tune the emission of InAs quantum dots embedded in InGaAs matrix in the long wavelength region*. J Cryst Growth, **261** (4), 458 (2004).
133. C. Bockler, S. Reitzenstein, *et al.*, *Electrically driven high-Q quantum dot-micropillar cavities*. Appl Phys Lett, **92** (9), 091107-091103 (2008).
134. B. Monemar, *Fundamental energy gap of GaN from photoluminescence excitation spectra*. Phys Rev B, **10** (2), 676 (1974).
135. H. P. Maruska and J. J. Tietjen, *The preparation and properties of vapor-deposited single-crystalline GaN*. Appl Phys Lett, **15** (10), 327 (1969).
136. T. C. Ozawa and S. J. Kang, *Balls&Sticks: easy-to-use structure visualization and animation program*. Journal of Applied Crystallography, **37** (4), 679 (2004).
137. F. Bernardini, V. Fiorentini, *et al.*, *Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides*. Phys Rev B, **56** (16), R10024 (1997).
138. T. Takeuchi, C. Wetzel, *et al.*, *Determination of piezoelectric fields in strained GaInN quantum wells using the quantum-confined Stark effect*. Appl Phys Lett, **73** (12), 1691 (1998).
139. D. A. B. Miller, D. S. Chemla, *et al.*, *Band-Edge Electroabsorption in Quantum Well Structures: The Quantum-Confined Stark Effect*. Phys Rev Lett, **53** (22), 2173 (1984).
140. I. Vurgaftman and J. R. Meyer, *Band parameters for nitrogen-containing semiconductors*. Journal of Applied Physics, **94** (6), 3675 (2003).
141. J. Wu, W. Walukiewicz, *et al.*, *Small band gap bowing in In<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>N alloys*. Appl Phys Lett, **80** (25), 4741 (2002).
142. H. Wirth, ISE, *Aktuelle Fakten zur Photovoltaik in Deutschland*, 2013). <http://www.ise.fraunhofer.de/de/veroeffentlichungen/studien-und-positionspapiere/aktuelle-fakten-zur-photovoltaik-in-deutschland>
143. A. G. Aberle, *Thin-film solar cells*. Thin Solid Films, **517** (17), 4706-4710 (2009).
144. C. J. Brabec, U. Scherf, *et al.*, *Organic photovoltaics materials, device physics, and manufacturing technologies*. (Wiley-VCH, Weinheim).
145. K. Tanabe, *A Review of Ultrahigh Efficiency III-V Semiconductor Compound Solar Cells: Multijunction Tandem, Lower Dimensional, Photonic Up/Down Conversion and Plasmonic Nanometallic Structures*. Energies, **2** (3), 504-530 (2009).
146. D. Bouhafs, A. Moussi, *et al.*, *Design and simulation of antireflection coating systems for optoelectronic devices: Application to silicon solar cells*. Solar Energy Materials and Solar Cells, **52** (1–2), 79 (1998).



# Veröffentlichungen

wissenschaftliche Journale:

- [1] F. Limbach, T. Gotschke, T. Stoica, R. Calarco, E. Sutter, J. Ciston, R. Cusco, L. Artus, **S. Kremling**, S. Hofling, L. Worschech, and D. Grutzmacher, "Structural and optical properties of InGaN-GaN nanowire heterostructures grown by molecular beam epitaxy," *Journal of Applied Physics*, **109**, 014309 (2011).
- [2] S. Gerhard, **S. Kremling**, S. Höfling, L. Worschech, and A. Forchel, "Short wavelength emission of AlGaInP quantum dots grown on GaP substrate," *Nanotechnology*, **22**, 415604 (2011).
- [3] A. Ugur, **S. Kremling**, F. Hatami, S. Hofling, L. Worschech, A. Forchel, and W. T. Masselink, "Single-photon emitters based on epitaxial isolated InP/InGaP quantum dots," *Applied Physics Letters*, **100**, 023116 (2012).
- [4] A. Ugur, **S. Kremling**, F. Hatami, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel, and W. T. Masselink, "Optical properties of well-isolated single InP/InGaP quantum dots," *physica status solidi (c)*, **9**, 1288 (2012).
- [5] **S. Kremling**, C. Tessarek, H. Dartsch, S. Figge, S. Hofling, L. Worschech, C. Kruse, D. Hommel, and A. Forchel, "Single photon emission from InGaN/GaN quantum dots up to 50 K," *Applied Physics Letters*, **100**, 061115 (2012).
- [6] C. Schneider, **S. Kremling**, N. V. Tarakina, T. Braun, M. Adams, M. Lermer, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, S. Höfling, and A. Forchel, "AlGaInAs quantum dot solar cells: tailoring quantum dots for intermediate band formation," *Semiconductor Science and Technology*, **27**, 032002 (2012).
- [7] V. Baumann, F. Stumpf, C. Schneider, **S. Kremling**, L. Worschech, A. Forchel, S. Hofling, and M. Kamp, "Site-controlled InP/GaInP quantum dots emitting single photons in the red spectral range," *Applied Physics Letters*, **100**, 091109 (2012).
- [8] R. Rodel, A. Bauer, **S. Kremling**, S. Reitzenstein, S. Hofling, M. Kamp, L. Worschech, and A. Forchel, "Density and size control of InP/GaInP quantum dots on GaAs substrate grown by gas source molecular beam epitaxy," *Nanotechnology*, **23**, 015605 (2012).

- [9] **S. Kremling**, C. Schneider, T. Braun, N. V. Tarakina, M. Adams, M. Lermer, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, S. Höfling, and A. Forchel, "*Towards intermediate band formation in solar cells with AlGaInAs quantum dots*," IEEE PVSC Proceedings, **38** (2012).
- [10] **S. Kremling**, C. Schneider, S. Höfling, and A. Forchel, "*AlGaInAs quantum dots for intermediate band formation in solar cell devices*" Book Chapter, Springer (2012).

Konferenzbeiträge:

- [1] **S. Kremling**, A. Ugur, S. Hofling, L. Worschech, F. Hatami, W. T. Masselink, and A. Forchel, "*Single photon emission from ultralow density InP/InGaP quantum dots*," DPG Frühjahrstagung, Berlin 2011.
- [2] **S. Kremling**, S. Hofling, L. Worschech, S. Figge, C. Kruse, C. Tessarek, H. Dartsch, D. Hommel, and A. Forchel, "*Single photon emission from InGaN/GaN quantum dots up to 50 K*," International Nano-Optoelectronic Workshop (iNOW), Würzburg/St.Petersburg 2011.
- [3] **S. Kremling**, S. Hofling, L. Worschech, M. Kamp, and A. Forchel, "*Bistable switching in double electron layer Y branch switches*" DPG Frühjahrstagung, Dresden 2012
- [4] **S. Kremling**, C. Schneider, T. Braun, N. V. Tarakina, M. Adams, M. Lermer, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, S. Höfling, and A. Forchel, "*Towards intermediate band formation in solar cells with AlGaInAs quantum dots*," 38<sup>th</sup> IEEE Photovoltaic Specialists Conference (PVSC), Austin (Texas) 2012.

# Danksagung

---

Abschließend möchte ich nicht vergessen, mich bei all denjenigen Menschen zu bedanken ohne deren Unterstützung es nicht möglich gewesen wäre, die vorliegende Arbeit anzufertigen. Insbesondere gilt mein Dank

- Prof. Dr. Dr. h.c. Alfred Forchel und Prof. Dr. Martin Kamp für die Aufnahme am Lehrstuhl für Technische Physik und die Bereitstellung der technologischen Möglichkeiten.
- Prof. Dr. Lukas Worschech für die Aufnahme in die Arbeitsgruppe und die Betreuung während meiner Diplomarbeit und Promotion. Vielen Dank für die anregenden und stets interessanten Diskussionen.
- Dr. Sven Höfling und Dr. Christian Schneider für das Bereitstellen der Proben und deren stetiges Interesse am Fortschritt der Arbeit.
- Fabian Hartmann für die gesamte Zeit während des Studiums, der Diplomarbeit und der Promotion. Danke für die vielen Diskussionen auch fernab der Physik und das überaus angenehme Miteinander.
- Peter Gold und den anderen Kollegen für die stets gute Atmosphäre im Büro und die vielen Diskussionen.
- meinen Bachelor- und Masterstudenten für deren Hilfe und Unterstützung.
- den Mitgliedern der III-V Spektroskopie Gruppe (Ferdinand Albert, Arash Rahimi-Iman, Tristan Braun, Tobias Heindel, ...) für die Unterstützung in messtechnischen Fragen und der netten Atmosphäre.
- den technischen Assistenteninnen Monika Emmerling, Adriana Wolf und Theresa Steinl für deren Hilfe und die exzellente Prozessierung der Proben.
- den restlichen Personen am Lehrstuhl für Technische Physik, die hier nicht namentlich genannt wurden.
- der wissenschaftlichen Werkstatt und Tieftemperaturtechnik für deren Hilfe und die Versorgung mit flüssigem Helium.
- meiner Familie und Freunden, allen voran meinen Eltern, ohne deren finanziell Unterstützung das Studium und letztendlich die Promotion nicht möglich gewesen wären.
- Und natürlich meiner Frau Steffi für Ihre endlose Geduld und Motivation während der gesamten Zeit. Vielen herzlichen Dank!





