
Nanooptik an breitbandlückigen Halbleiter-Nanostrukturen für die Spintronik und Optoelektronik

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



vorgelegt von
Herbert Richard Schömig
geboren in Würzburg

Würzburg 2004

Nanooptik an breitbandlückigen Halbleiter-Nanostrukturen für die Spintronik und Optoelektronik

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



vorgelegt von
Herbert Richard Schömiß
geboren in Würzburg

Würzburg 2004

Eingereicht am:

bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. G. Bacher

2. Gutachter: Prof. Dr. W. Ossau

der Dissertation

1. Prüfer: Prof. Dr. G. Bacher

2. Prüfer: Prof. Dr. W. Kinzel

der mündlichen Prüfung

Tag der mündlichen Prüfung: 20.01.2005

Doktorurkunde ausgehändigt am:

Teile dieser Arbeit und darüber hinausgehende Arbeiten wurden bereits veröffentlicht:

1. G. Bacher, H. Schömig, M.K. Welsch, S. Zaitsev, V.D. Kulakovskii, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, J.K. Furdyna, B. König, W. Ossau, '*Optical spectroscopy on individual CdSe/ZnMnSe quantum dots*', Appl. Phys. Lett. **79**, 424 (2001)
2. G. Bacher, J. Seufert, M.K. Welsch, H. Schömig, M. Obert, V.D. Kulakovskii, A. Forchel, '*Spectroscopy on single dots - monitoring carrier interaction with the environment*', Adv. Sol. Stat. Phys. **41**, 51 (2001)
3. G. Bacher, A.A. Maksimov, H. Schömig, V.D. Kulakovskii, M.K. Welsch, A. Forchel, P.S. Dorozhkin, A.V. Chernenko, S. Lee, M. Dobrowolska, J.K. Furdyna, '*Monitoring Statistical Magnetic Fluctuations on the Nanometer Scale*', Phys. Rev. Lett. **89**, 127201 (2002)
4. H. Schömig, M.K. Welsch, G. Bacher, A. Forchel, S. Zaitsev, A.A. Maksimov, V.D. Kulakovskii, S. Lee, M. Dobrowolska, J.K. Furdyna, '*Photoluminescence spectroscopy on single CdSe quantum dots in a semimagnetic ZnMnSe matrix*', Physica E **13**, 512 (2002)
5. G. Bacher, H. Schömig, M.K. Welsch, M. Scheibner, J. Seufert, M. Obert, A. Forchel, A.A. Maksimov, S. Zaitsev, V.D. Kulakovskii, '*Nano-optics on individual quantum objects - from single to coupled semiconductor quantum dots*', Acta Phys. Pol. A **102**, 475 (2002)
6. G. Bacher, H. Schömig, J. Seufert, M. Rambach, A. Forchel, A.A. Maksimov, V.D. Kulakovskii, T. Passow, D. Hommel, C.R. Becker, L.W. Molenkamp, '*Optical spectroscopy on non-magnetic and semimagnetic single quantum dots in external fields*', phys. stat. sol. (b) **229**, 415 (2002)
7. A.V. Chernenko, P.S. Dorozhkin, V.D. Kulakovskii, G. Bacher, H. Schömig, A. Forchel, M. Dobrowolska, J.K. Furdyna, '*Anisotropy of MP in a CdSe/ZnMnSe single quantum dot*', Proc. of the 26th International Conference on the Physics of Semiconductors, Edinburgh (2002)

8. P.S. Dorozhkin, A.V. Chernenko, V.D. Kulakovskii, A.S. Bichkin, A.A. Maksimov, H. Schömiß, G. Bacher, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, J.K. Furdyna, '*Longitudinal and Transversal Fluctuations of Magnetization of the Excitonic Magnetic Polarons in a Semimagnetic Single Quantum Dot*', Phys. Rev. B **68**, 195313 (2003)
9. H. Schömiß, G. Bacher, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, J.K. Furdyna, '*Laser-controlled magnetization in a single magnetic semiconductor quantum dot*', J. Supercond. **16**, 379 (2003)
10. M. Scheibner, J. Seufert, H. Schömiß, G. Bacher, A. Forchel, '*Spin and polarization dynamics in magnetic and non-magnetic semiconductor quantum dots*', Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng. 4992, 1 (2003)
11. M.K. Welsch, G. Bacher, H. Schömiß, A. Forchel, S. Zaitsev, C.R. Becker, L.W. Molenkamp, '*Single quantum dot pairs with controllable interdot coupling*', phys. stat. sol. (b) **238**, 313 (2003)
12. J. Seufert, H. Schömiß, G. Bacher, A. Forchel, L. Hansen, G. Schmidt, L.W. Molenkamp, '*Spin injection into a single self-assembled quantum dot*', Phys. Rev. B **69**, 035311 (2004)
13. H. Schömiß, S. Halm, G. Bacher, A. Forchel, J. Off, F. Scholz, '*Probing individual localization centers in a InGaN/GaN quantum well*', Phys. Rev. Lett. **92**, 106802 (2004)
14. H. Schömiß, A. Forchel, S. Halm, G. Bacher, J. Puls, F. Henneberger, '*Magnetic imprinting of submicron ferromagnetic wires on a diluted magnetic semiconductor quantum well*', Appl. Phys. Lett. **84**, 2826 (2004)
15. H. Schömiß, S. Halm, G. Bacher, A. Forchel, W. Kipferl, C.H. Back, J. Puls, F. Henneberger, '*Micromagnetoluminescence on ferromagnet-semiconductor hybrid nanostructures*', J. Appl. Phys. **95**, 7411 (2004)

Inhaltsverzeichnis

Summary	1
Zusammenfassung	5
1 Einleitung	11
2 Das Exziton in einem Halbleiter reduzierter Dimension	17
2.1 Vom Volumenhalbleiter bis zum Quantenpunkt	17
2.1.1 Die Kristall- und Bandstruktur der Volumenhalbleiter	17
2.1.2 Die Bandstruktur von Halbleitern reduzierter Dimension	19
2.1.3 Epitaktisch hergestellte Quantenpunkte	19
2.2 Das Exziton im direkten Halbleiter	21
2.2.1 Das Exziton im Volumenhalbleiter	21
2.2.2 Das Exziton im Halbleiter reduzierter Dimension	22
2.3 Das Quantenpunkt-Exziton im externen Feld	23
2.3.1 Das Quantenpunkt-Exziton im magnetischen Feld	23
2.3.2 Das Quantenpunkt-Exziton im elektrischen Feld	25
3 Die hochortsaufgelöste Magnetophotolumineszenz-Spektroskopie	29
3.1 Die Mikro-Magneto-PL-Spektroskopie	30
3.1.1 Der Messplatz-Aufbau	30
3.1.2 Charakterisierung der Ortsauflösung	33
3.1.3 Polarisationsaufgelöste PL-Detektion	34
3.2 Von der Mikro- zur Nano-PL-Spektroskopie	35
3.2.1 Die Nanoaperturtechnik	36
4 Semimagnetische Quantenpunkte	39
4.1 Semimagnetische Halbleiter	40
4.1.1 Das Mangan-Spin-System	41
4.1.2 Die Mangan-Exziton-Kopplung	42
4.1.3 Die Spinrelaxation des Exzitons	46
4.1.4 Das magnetische Polaron	47
4.2 Semimagnetische Halbleiter reduzierter Dimensionalität	48

4.3	Selbstorganisierte CdSe/ZnMnSe-Quantenpunkte	50
4.4	Die optisch induzierte Nanomagnetisierung	53
4.5	Das Quantenpunkt-Exziton als Sonde für die Nanomagnetisierung	57
4.6	Die thermische Fluktuation der Nanomagnetisierung	59
4.6.1	Die Theorie der fluktuationsbestimmten Halbwertsbreite	61
4.6.2	Die Abbildung der Fluktuationen auf die PL-Linie	63
4.6.3	Die fluktuationsbasierte Messung des Exziton-Volumens	67
4.7	Die optische Entmagnetisierung	68
5	Ferromagnet-DMS-Hybride	71
5.1	Grundlagen mikroskopischer Ferromagnete	73
5.1.1	Das Streufeld eines homogen magnetisierten Quaders	73
5.1.2	Dysprosium als Ferromagnet	77
5.1.3	Die Magnetisierung eines ferromagnetischen Quaders	77
5.2	Probenpräparation und Messprinzip	79
5.3	Magnetisierung von Submikrometer-Dy-Punkten	81
5.4	Ein magnetisches Streufeldgitter	82
5.5	Die orts aufgelöste Spektroskopie am Einzeldraht	86
6	Einzelne Lokalisationszentren in InGaN-Quantenfilmen	89
6.1	Die Gruppe-III-Nitride	90
6.2	Die InGaN/GaN-Heterostrukturen	92
6.2.1	Das interne elektrische Feld	92
6.2.2	Lokalisationszentren	95
6.3	Der Probenaufbau und die PL-Emission	96
6.4	Zugang zu einzelnen Lokalisationszentren	97
6.5	Das Temperaturverhalten einzelner Zentren	99
6.5.1	Das einzelne Zentrum im Vergleich zum Ensemble	100
6.5.2	Die anormale Verschiebung des Einzelzentrums	102
6.6	Einzelne Zentren bei Variation der Anregungsdichte	106
6.6.1	Das einzelne Zentrum versus das Ensemble	106
6.6.2	Das Biexziton im einzelnen Zentrum	111
6.6.3	Die Verschiebung der Einzellinie	113
A	Probenregister	115
	Literaturverzeichnis	130
	Danksagung	131

Summary

Lowdimensional structures like quantum wells, quantum wires or quantum dots make up an essential part of today's semiconductor research. Among the main incentives are the modified properties of charge carriers, which on the one hand allow remarkable improvements of existing devices and on the other hand guide us to completely new device concepts. Especially spins confined in such nanostructures have attracted a lot of interest over the past years. The exploitation of this purely quantum mechanical quantity has become the main goal of spintronics. As the spin has proven to be astonishingly stable i.e. long-lived in semiconductors one now searches for possible ways of manipulating spins by external fields and by making use of spin-spin interactions. This task seems especially demanding on mesoscopic length scales. The experiments on semimagnetic CdSe/ZnMnSe quantum dots (chapter 4) and on ferromagnet-DMS¹-hybrids (chapter 5) are intended to contribute to this field of research. In the first case spin-spin interactions between a quantum dot exciton and magnetic Mn²⁺ spins residing in the nanoenvironment will be addressed. This is done by a spectroscopic selection of single semimagnetic quantum dots. The hybrid structures shall show the possibility of a manipulation of the spin bands in a buried DMS quantum well by nanostructured ferromagnets. Reducing the dimension of a semiconductor already proved to be advantageous for the realization of laser diodes. In particular, novel InGaN quantum well lasers, which conquered the blue spectral range, seem to benefit from the localization of carriers in nm-sized centers. Chapter 6 is dedicated to the spectroscopic access to such localization centers.

Single semimagnetic quantum dots

Semiconductors doped with Mn, so-called diluted magnetic semiconductors, exhibit an intense sp-d exchange interaction between free carrier spins and localized Mn²⁺ spins. Due to this coupling an exciton, optically injected into the DMS semiconductor, acquires an exchange energy proportional to the Mn magnetization within the exciton volume. If the exciton localizes in a quantum dot it can be employed as a probe monitoring the magnetization in the nanoenvironment. However, this requires the spectroscopic selection of single quantum dots. In this work single CdSe/Zn_{0.75}Mn_{0.25}Se quantum dots could be addressed with the help of an opaque metal mask on top of the semiconductor with nanoapertures prepared by electron lithography. The PL emission from such nanoapertures shows

¹Diluted Magnetic Semiconductors

individual PL lines corresponding to single quantum dots. Interestingly, the investigated semimagnetic quantum dots exhibited a significantly different emission characteristic compared to their well known non-magnetic counterparts.

By raising the temperature from 2 K on an unusual blue shift of single quantum dot PL lines has been found. Such a behavior can be readily explained by the existence of a magnetic polaron. This means, that the exciton spin itself polarizes the Mn^{2+} spins within its own volume. Such a self-induced magnetization results in a reduction of the exciton energy by the sp-d exchange energy. Thus, a thermal demagnetization must lead to an energy increase. A quantitative description of the experimental data could be achieved in the frame of a Brillouin model by assigning a constant exchange field B_{exc} to the exciton. This has been understood as a first indication of the exciton's ability to act as a probe for the nanomagnetization. A confirmation of this principle is provided by the dependence of the exciton energy on the strength of an external magnetic field. As the magnetization is increased one observes a red shift of the quantum dot PL line. Fitting the experimental data by a Brillouin function, the strength of the exchange field B_{exc} has been determined as 2.6 T. In addition, making use of $\mu = E_{exc}/B_{exc}$ the energy scale of the experiment could be converted to a scale displaying the total magnetic moment of Mn^{2+} spins within the exciton volume. At 5 K and 0 T for example an exchange (polaron) energy $E_{exc}=11$ meV has been found, corresponding to a magnetic moment of the polaron of $70\mu_B$. Thus, the exciton can be really employed as a probe for monitoring the nanomagnetization.

Apart from the energy of the PL line its spectral width too shows a very interesting behavior. Even at temperatures as low as 5 K a linewidth of about 5 meV, which is unusually large for single quantum dots, has been found. As the temperature is raised the linewidth increases further, whereas a magnetic field perpendicular to the quantum dot plane (Faraday geometry) causes a narrowing of the PL line. An explanation for these findings could be found in the frame of a fluctuation model. According to this model statistical fluctuations of the nanomagnetization due to a finite thermal energy result in a temporal variation of the exciton's exchange energy. As a consequence, time-integrated PL experiments display spectrally broadened emission lines. A theoretical treatment of these phenomena could be achieved on the basis of the fluctuation dissipation theorem, provided by thermodynamics. In the light of this theorem the linewidth narrowing induced by a magnetic field is understood as a result of a decreasing magnetic susceptibility of the Mn^{2+} spin system. The temperature induced line broadening, on the other hand, takes place because of a thermal energy that increases in a linear fashion and a susceptibility that decreases less than by $1/T$. In fact, the fluctuation model is capable of giving a quantitative description of the experimental linewidth and its dependencies on magnetic field and temperature. Thus, the linewidth can be used as a tool to measure the fluctuation of magnetization in the neighborhood of a single quantum dot. At 5 K and 0 T for example, a fluctuating magnetic (polaron) moment of $\pm 17\mu_B$ has been calculated.

The exciton is not only suitable for fulfilling passive functions like measuring the nano-magnetization, but it can also provide active functions. For example, as one increases the optical excitation density and thus the exciton density, an increase of the PL emission energy as well as a broadening of the PL line is observed. Such a behavior is in perfect analogy to the effects, that have been found on increasing the bath temperature. This points to an optical heating of the Mn^{2+} spin system, i.e. a demagnetization effect induced by excitons. As the experiments show, this spin heating effect is strongly influenced by the localization of excitons in quantum dots.

Ferromagnet-DMS-Hybrids

A local manipulation of spins in a semiconductor can be realized by a preparation of ferromagnetic structures on the surface of a semiconductor. Magnetic fringe fields, emerging from nanostructured ferromagnets are capable of bending the spin bands of a buried quantum well on a mesoscopic length scale. This is especially valid for a semimagnetic quantum well like the $\text{ZnCdMnSe}/\text{ZnSe}$ heterostructure used in the following experiments. Due to the drastic enhancement of the exciton g factor by the coupling to the Mn^{2+} spins, huge spin splittings become possible. Magnetostatic calculations performed for ferromagnetic dysprosium (Dy) wire structures show, that fringe fields B_S in the range of 0.1 to 1 T can be achieved in a perpendicular magnetization configuration. For wires with a submicron width, the maximum fringe field is located directly beneath the wires. The magnetization of nanostructured Dy ferromagnets as a source for fringe fields has been measured by means of SQUID² magnetometry. Compared to bulk samples these nanomagnets showed a reduced saturation magnetization and a strongly diminished hysteresis. Nevertheless, these results suggested, that such nanomagnets should be capable of generating fringe fields, strong enough to induce measurable shifts of spin bands in a DMS semiconductor.

For spectroscopic experiments the opaque GaAs substrate has been removed, making it possible to optically access the quantum well directly beneath the ferromagnets. In the following the PL emission of the DMS quantum well has been measured beneath an array of Dy wires. As a magnetic field was applied perpendicular to the quantum well plane and the wires long axis, an enhanced Zeeman effect could be detected due to the presence of the ferromagnetic wire structure. Interestingly, the dependence of this additional energy shift on the external magnetic field displayed a strong similarity with typical magnetization curves of Dy wires. These findings suggest, that magnetic fringe fields emerging from ferromagnetic nanostructures cause a local bending of the spin bands in the DMS quantum well. A maximum strength of the fringe field of 0.48 T could be determined from the extra Zeeman shift of 1.3 meV. The interpretation of this experimental result is confirmed by a spatial scan of the laser spot across a single ferromagnetic Dy wire. In the presence of a magnetic field a shift of the PL energy with a clear spatial dependence has been observed. This spatial function is in qualitative agreement with the calculated fringe

²Superconducting Quantum Interference Device

field profile. Both magneto-optic experiments provide a saturation magnetization for the Dy wires between 2 and 3 T.

Single localization centers in a InGaN/GaN quantum well

The localization of charge carriers in nm-sized islands has a strong influence on the optical properties of InGaN/GaN quantum wells. A detailed analysis of these effects require a reproduceable, spectroscopic access to single localization centers. This prerequisite has been fulfilled by depositing a mask with nanoapertures on the semiconductor surface. PL spectra measured on these nanoapertures at a temperature of 4 K reveal individual, spectrally narrow emission lines with a halfwidth down to 0.8 meV. Such a single PL line can be attributed to the emission from a single localization center. The optical access to single centers has been demonstrated here for the first time. As the following experiments showed, there is a profound difference between the behavior of such single PL lines and the inhomogenous PL signal from a large ensemble of centers.

Firstly, as the temperature was increased, an unusual blue shift of the single PL lines could be found, in contrast to a red shift of the ensemble signal. Whereas the characteristic behavior of the ensemble signal can be explained by redistribution processes among different centers, the blue shift of the single lines needs its own interpretation. The explanation proposed in this work is based on a screening of the internal piezoelectric field in the nanoenvironment of the single centers by thermally activated carriers. As a possible source for the screening carriers donor states in the GaN barrier are considered. The screening causes a weakening of the quantum-confined Stark effect and thus an increase of the exciton energy in the localization center. If one increases the optical excitation density instead of the temperature, once again a different behavior of the single line and the ensemble becomes evident. Although the ensemble signal displays a significant shift to higher energies, only very slight shifts could be observed for the single lines. This finding clearly shows, that the often proposed screening of the internal electric field by photo-generated carriers is not suitable to explain the blue shift of the ensemble signal. An interpretation, which is much more in agreement with the experimental result, is provided by the band filling model, i.e. the successive filling of localization centers with carriers. This mechanism predicts the appearance of high-energetic lines and saturation of low-energetic lines as the excitation density is increased. Single line spectra, that exactly show such a behavior, strongly point to the band filling model. The appearance of new lines at higher energy can in principle be attributed to (i) the occupation of high-energetic localization centers or to (ii) the capture of multiple electron-hole pairs by single localization centers, i.e. the formation of multi-excitons like biexcitons. The spectra display PL lines, that are instances for mechanism (i) whereas other lines can be assigned to mechanism (ii). Remarkably, some biexciton lines that could be identified, reveal a negative biexciton binding energy (-5 ± 0.7 meV) in contrast to the common observations made on other quantum dot systems. This means that biexcitons appear at higher energies in the spectra compared to excitons. The reason for this behavior is an intrinsic electron-hole separation, caused by the piezoelectric field.

Zusammenfassung

Niederdimensionale Strukturen wie Quantenfilme, Quantendrähte oder Quantenpunkte bilden seit geraumer Zeit einen Schwerpunkt der Halbleiterforschung. Hauptanreiz hierbei sind die modifizierten Ladungsträgereigenschaften, welche für einige Bauteilanwendungen eine deutliche Effizienzsteigerung bedeuten, während andere dadurch überhaupt erst möglich werden. Besonderes Interesse erfährt mittlerweile, gerade bei diesen nanoskaligen Strukturen, der Spin als rein quantenmechanisches Teilchenattribut. Diesen als Informationsträger auszunutzen hat man sich im Rahmen der Spintronik als Ziel gesetzt. Nachdem sich der Spin im Halbleiter als erstaunlich stabil d.h. langlebig erwies, geht es nun vermehrt darum, die Möglichkeiten zur externen Manipulation des Spins sowie die Spin-Wechselwirkungen auszuloten - und zwar auf mesoskopischen Längenskalen. In diesem Themenfeld bewegen sich die Arbeiten an den semimagnetischen CdSe/ZnMnSe-Quantenpunkten (Kapitel 4) und den Ferromagnet-DMS³-Hybriden (Kapitel 5). Im ersten Fall wird die Spin-Spin-Kopplung zwischen einem Quantenpunkt-Exziton und magnetischen Mn²⁺-Spins in der Nanoumgebung im Detail untersucht. Dies gelingt mit Hilfe der spektroskopischen Adressierung einzelner semimagnetischer Quantenpunkte. Bei den Hybrid-Strukturen soll der Einfluss nanostrukturierter Ferromagnete auf die Spinbänder eines vergrabenen DMS-Quantenfilms verfolgt werden. Die Reduzierung der Halbleiterdimension erwies sich bereits bei der Herstellung von Laserstrukturen als sehr vorteilhaftes Konzept. Gerade bei den neuartigen InGaN-Quantenfilm-Lasern, die erstmals den blauen Spektralbereich erschließen konnten, scheint jedoch die Lokalisierung der Ladungsträger in nm-skaligen Zonen tatsächlich eine Schlüsselfunktion einzunehmen. Der spektroskopische Zugang zu einzelnen solcher Lokalisationszentren ist das Thema von Kapitel 6.

Einzelne semimagnetische Quantenpunkte

Mn-dotierte, und damit semimagnetische Halbleiter zeichnen sich durch eine sp-d-Austauschkopplung zwischen den freien Ladungsträgerspins und den Mn²⁺-Spins aus. Für ein optisch injiziertes Exziton bedeutet dies eine Austauschenergie, die sich proportional zur Mn-Magnetisierung im Exzitonvolumen verhält. Lokalisiert man das Exziton in einem Quantenpunkt, so kann man es als Sonde für die Magnetisierung in der Nanoumgebung gebrauchen. Bedingung hierfür ist die spektroskopische Selektion einzelner Quantenpunkte. Die Selektion einzelner CdSe/Zn_{0.75}Mn_{0.25}Se-Quantenpunkte konnte realisiert werden

³Diluted Magnetic Semiconductors

durch die lithographische Präparation einer lichtundurchlässigen Metallmaske auf der Probenoberfläche, versehen mit nanoskaligen Aperturen. Die PL-Emission an diesen Aperturen zeigt individuelle PL-Linien entsprechend einzelner Quantenpunkte. Diese offenbaren allerdings eine gänzlich andere Charakteristik als nicht-magnetische Referenzproben.

So ist bei Erhöhung der Temperatur ab 2 K eine ungewöhnliche Blauverschiebung der Quantenpunkt-PL-Linie zu beobachten. Dieses Verhalten kann mit der Existenz eines magnetischen Polarons begründet werden. Dabei handelt es sich um eine Polarisation der Mn^{2+} -Spins innerhalb des Exziton-Volumens durch den Exziton-Spin selbst. Diese selbst-induzierte Nanomagnetisierung bedeutet für das Exziton eine Energieverminderung um die sp-d-Austauschenergie. Eine thermische Entmagnetisierung resultiert daher in einer Energieanhebung. Eine quantitative Beschreibung der experimentellen Daten konnte hier im Rahmen einer Brillouin-Modellierung erzielt werden, indem dem Exziton ein konstantes Austauschfeld B_{exc} zugeschrieben wurde. Damit wurde ein erster Hinweis auf die Funktion des Exzitons als Magnetisierungssonde gefunden. D.h. die Exzitonenergie stellt ein gutes Maß für die Nanomagnetisierung dar. Das wird bestätigt bei Variation der Magnetisierung durch ein externes Magnetfeld. Hier zeigt sich nämlich eine Rotverschiebung der σ^+ -PL-Linie bei Erhöhung des B-Feldes. Auch diese Energieverschiebung wurde als Abbildung der zunehmenden Magnetisierung auf die Exzitonenergie interpretiert. Aus der Anpassung der experimentellen Daten mit einer Brillouinfunktion war es nun möglich die Größe des Austauschfeldes B_{exc} mit 2.6 T zu bestimmen. Des weiteren gelang durch eine Umrechnung mit $\mu = E_{exc}/B_{exc}$ die Energieachse des Experiments direkt in eine Achse zu konvertieren, welche das magnetische Gesamtmoment im Exzitonvolumen anzeigt. So findet man bei 5 K und 0 T eine Austauschenergie von $E_{exc}=11$ meV und damit ein magnetisches Moment von $70\mu_B$, welches der Polaronmagnetisierung entspricht. Damit erweist sich das Quantenpunkt-Exziton also tatsächlich als geeignete Sonde zur Aufklärung der Nanomagnetisierung.

Neben der Energie der PL-Linie offenbart auch die Linienbreite ein sehr interessantes Verhalten. Bei 5 K liegt bereits eine für Einzelquantenpunkte untypisch große Linienbreite von ca. 5 meV vor. Mit zunehmender Temperatur vergrößert sich die Linienbreite weiter, während sie im senkrechten Magnetfeld (Faraday-Geometrie) deutlich abnimmt. Eine anschauliche Erklärung konnte hier anhand eines Fluktuationsmodells gegeben werden. Demnach sind statistische Fluktuationen der Nanomagnetisierung die Ursache für eine zeitliche Variation der Austauschenergie. Dies bedeutet nun im Rahmen einer zeitintegrierenden Messung eine Linienverbreiterung. Eine theoretische Beschreibung dieses Phänomens erlaubt das Fluktuations-Dissipations-Theorem aus der Thermodynamik. Dieses erklärt die Abnahme der Linienbreite im Magnetfeld als Folge der sinkenden magnetischen Suszeptibilität des Mn^{2+} -Spinsystems. Die temperaturbedingte Linienverbreiterung dagegen tritt auf, da die thermische Energie linear zunimmt, die Suszeptibilität bei tiefen Temperaturen aber schwächer als mit $1/T$ (Curie-Gesetz) abnimmt. Das Fluktuationsmodell erweist sich tatsächlich als geeignetes Mittel zur quantitativen Modellierung der Linienbreite im Magnetfeld. Letztere ist damit auch ein gutes Werkzeug zur Bestimmung der Magneti-

sierungsfluktuationen. Beispielsweise errechnet man für 5 K und 0 T ein fluktuierendes magnetisches Moment von $\pm 17\mu_B$. Neben der "passiven" Funktion des Exzitons als Nanosonde zur Aufklärung der Magnetisierung, kann es potentiell auch eine "aktive" Funktion aufweisen. So zeigt sich bei Erhöhung der optischen Anregungsdichte sowohl eine Energieverschiebung als auch eine Verbreiterung der Quantenpunkt-PL-Linie, was dem Effekt bei Erhöhung der Badtemperatur gleichkommt. Es deutet sich damit eine optische Aufheizung der Mn^{2+} -Spins an bzw. eine entmagnetisierende Wirkung der erzeugten Exzitonen. Dieser Spinheizungseffekt wird dabei entscheidend von der Quantenpunkt-Lokalisierung der Exzitonen mitbestimmt.

Ferromagnet-DMS-Hybride

Eine lokale Beeinflussung von Spins im Halbleiter wird möglich durch die Präparation von ferromagnetischen Strukturen auf der Halbleiteroberfläche. Die magnetischen Streufelder, welche von nanostrukturierten Ferromagneten erzeugt werden, können auf mesoskopischer Längenskala eine Verbiegung der Spinbänder in einem Quantenfilm bewirken. Dies gilt insbesondere für einen semimagnetischen (DMS-)Quantenfilm vom Typ $\text{ZnCdMnSe}/\text{ZnSe}$, wie er im vorliegenden Fall Verwendung fand. Aufgrund der "Verstärkerfunktion" der Mn^{2+} -Spins liegen hier nämlich riesige effektive g-Faktoren vor, welche im Magnetfeld große Spinaufspaltungen produzieren. Wie magnetostatische Rechnungen für Drahtstrukturen aus ferromagnetischem Dysprosium (Dy) offenlegen, sind bei senkrechter Magnetisierung Streufelder B_S in der Größenordnung von 0.1 bis 1 T in der Quantenfilmebene darstellbar. Hierbei liegt der Maximalwert von B_S für hinreichend schmale Drähte direkt unter dem Draht. Die Magnetisierung von nanostrukturierten Dy-Ferromagneten als Streufeld-Quelle wurde mittels SQUID⁴-Magnetometrie bestimmt. Dabei ergab sich eine gegenüber dem Volumenmaterial reduzierte Sättigungsmagnetisierung sowie eine stark verminderte Hysterese. Dennoch ließen diese Messungen Streufelder erwarten, die zu einer messbaren Verschiebung der Spinbänder im DMS-Halbleiter führen.

Für die spektroskopischen Untersuchungen wurde das lichtundurchlässige GaAs-Substrat entfernt, so dass der Quantenfilm auch unterhalb der Ferromagnete zugänglich gemacht werden konnte. Im folgenden wurde die PL-Emission des DMS-Quantenfilms unterhalb eines Dy-Drahtfeldes untersucht. Dabei konnte beim Anlegen eines senkrechten Magnetfeldes ein verstärkter Zeemaneffekt unter dem Einfluss der ferromagnetischen Drahtstruktur beobachtet werden. Die funktionale Magnetfeldabhängigkeit der zusätzlichen Energieverschiebung entspricht zudem der erwarteten Magnetisierungskurve von Dy-Drähten. Daher lässt sich der beobachtete Effekt auf das magnetische Streufeld der Ferromagnete zurückführen. Es gelingt also eine optische Abbildung der Magnetisierung. Anders als bei den semimagnetischen Quantenpunkten liegt diese Magnetisierung jedoch außerhalb des Halbleiters vor. Aus der vom Ferromagneten verursachten Zeemanverschiebung von 1.3 meV (bei 5 T) ergibt sich schließlich ein magnetisches Streufeld im Quantenfilm von 0.48 T. Eine Bestäti-

⁴Superconducting Quantum Interference Device

gung für diese Interpretation des Experiments liefert die ortsaufgelöste Messung an einem einzelnen Dy-Draht. Auch hier zeigt sich im Magnetfeld eine Energieverschiebung, deren ortsabhängiger Verlauf mit dem berechneten Streufeldverlauf qualitativ übereinstimmt. Aus beiden magneto-optischen Messungen wurde eine Sättigungsmagnetisierung der Dy-Drähte von 2-3 T ermittelt.

Einzelne Lokalisationszentren in InGaN/GaN-Quantenfilmen

Die Lokalisation der Ladungsträger in nm-skalierten Materieinseln hat einen erheblichen Einfluss auf die optischen Eigenschaften eines InGaN-Quantenfilms. Eine detaillierte Aufklärung dieses Effektes erfordert den reproduzierbaren, spektroskopischen Zugang zu einzelnen dieser Lokalisationszentren. Diese Bedingung wurde hier mit der Aufbringung einer Nanoaperturmaske auf der Halbleiteroberfläche erfüllt. PL-Spektren, gemessen an solchen Nanoaperturen bei einer Temperatur von 4 K, weisen tatsächlich einzelne, spektral scharfe Emissionlinien mit Halbwertsbreiten bis hinab zu 0.8 meV auf. Eine solche Einzellinie entspricht dabei der PL-Emission aus einem einzelnen Lokalisationszentrum, welche an dieser Stelle erstmalig nachgewiesen werden konnte. In den folgenden Experimenten zeigte sich interessanterweise, dass diese Einzellinien gänzlich andere Abhängigkeiten an den Tag legen als das inhomogene PL-Signal eines großen Ensembles von Zentren.

Zunächst wurde bei Erhöhung der Temperatur eine ungewöhnliche Blauverschiebung der Einzellinien festgestellt, gegenüber einer Rotverschiebung des Ensemblesignals. Während das Verhalten des Ensembles mit Umverteilungsprozessen zwischen verschiedenen Zentren erklärt werden kann, so bedarf die Charakteristik der Einzellinie einer eigenen Interpretation. Ein naheliegender Ansatz beinhaltet die Abschirmung des internen piezoelektrischen Feldes in der Nanoumgebung des Einzelzentrums durch thermisch aktivierte Ladungsträger. Als mögliche Quelle dieser Ladungsträger (Elektronen) werden Donatoren in der GaN-Barriere diskutiert. Die Abschwächung des Stark-Effekts resultiert folgerichtig in einer Anhebung der Übergangsenergie im Zentrum.

Erhöht man statt der Temperatur die optische Anregungsdichte, so trifft man wiederum auf ein gegensätzliches Verhalten von Einzellinie und Ensemble. Obwohl das integrierte Ensemblesignal in beträchtlichem Maße zu hohen Energien schiebt, lassen sich nur äußerst geringe Verschiebungen der einzelnen Linien ausmachen. Dieser Befund macht deutlich, dass die in der Literatur häufig propagierte Abschirmung des internen elektrischen Feldes durch delokalisierte photogenerierte Ladungsträger hier nur eine untergeordnete Rolle spielen kann. Eine naheliegende Erklärung bietet sich dagegen im Rahmen einer Bandauffüllung. Diese bedingt das Hinzutreten hochenergetischer Einzellinien, bei gleichzeitiger Absättigung der niederenergetischen Linien. Entsprechende Beobachtungen bei den Linienspektren bestätigen tatsächlich einen solchen Mechanismus. Das Auftreten neuer Linien bei zunehmender Anregung kann dabei zurückgeführt werden auf (i) die Besetzung hochenergetischer Lokalisationszentren mit jeweils einem Elektron-Loch-Paar oder aber (ii) die Mehrfach-Besetzung von einzelnen Zentren unter Bildung von Multiexzitonen, im einfach-

sten Fall Biexzitonen. Hervorzuheben ist, dass die nachgewiesenen Biexzitonen, entgegen der üblichen Beobachtung bei verschiedenen Quantenpunkt-Systemen, eine negative Bindungsenergie von -5 ± 0.7 meV aufweisen. Damit erscheinen sie also gegenüber den Exzitonen zu hohen Energien verschoben. Ursächlich für diese Charakteristik ist eine intrinsische Elektron-Loch-Trennung, welche hier durch das interne elektrische Feld hervorgerufen wird.

Kapitel 1

Einleitung

Kein Materialsystem hat in der jüngeren Vergangenheit für solch eine technologische Umwälzung gesorgt wie der Halbleiter. Der Transistor als prototypisches Halbleiter-Bauelement bildet die Basis für die elektronische Datenverarbeitung, die mittlerweile im GHz-Takt arbeitet. Das Zusammenspiel mit einer breitbandigen Informationsübertragung in einem weltumspannenden Netz ermöglicht heute den nahezu instantanen Zugriff auf enorme Wissensressourcen. Die Leistungssteigerungen konnten dabei im wesentlichen durch die stete Miniaturisierung der Halbleiterstrukturen erzielt werden. So nahm beispielsweise die Zahl der Transistoren pro Chip zwischen 1960 und 2000 um 9 Größenordnungen zu, während im gleichen Zeitraum der Energieumsatz je binärem Schaltprozess um 5 Zehnerpotenzen reduziert werden konnte [Mei01]. Der weiteren Miniaturisierung der heute gebräuchlichen FET-Technik¹ sind jedoch natürliche Grenzen gesetzt. Werden nämlich die Struktur-Abmessungen vergleichbar mit der elektronischen de-Broglie-Wellenlänge (einige nm), so treten Quanteneffekte hervor, welche die klassische Funktionsweise der Bauelemente ernsthaft stören indem besonders Tunnelprozesse zu intolerablen Leckströmen führen [Bor99].

Richard P. Feynman erkannte jedoch schon vor 40 Jahren, dass gerade die Ausnutzung der Quantengesetze in gezielt hergestellten Quantenstrukturen den Weg zu neuen, leistungsfähigeren Technologien weisen könnte [Fey60]. Tatsächlich sind heute Einelektronen-Transistoren (SET²) [Tin95], Quantenpunkt-Zellen (QCA³) [Aml99], und Resonante-Tunnelkontakte (RTD⁴) als potentielle Erben der klassischen FET-Technik zu Themen der aktuellen Nanoelektronik-Forschung geworden. Noch spektakulärer ist die Idee eines Quantengatters als elementarem Baustein eines Quantencomputers [Nie00]. Hier verlässt man sogar den sicheren Boden der Booleschen Logik und wagt den Aufbau einer Quantenlogik, die unglaublich effiziente Algorithmen (z.B. zum Durchsuchen von Datenbanken [Gro97]) ermöglicht. Die Nanostrukturierung des Halbleiters bedeutet allerdings nicht nur für die Elektronik einen Quantensprung - sondern auch für die Photonik. Quantenfilm- und

¹Field Effect Transistor

²Single Electron Transistor

³Quantum Cellular Automata

⁴Resonant Tunneling Device

Quantenpunkt-Strukturen erwiesen sich beispielsweise als ausgesprochen effiziente Lichtemitter und finden mittlerweile eine umfassende Verwendung bei der Herstellung von Leuchtdioden und Laserdioden. Im Labor gelingt auch hier bereits eine weitergehende Nutzung von Quanteneffekten. Einzelphotonenquellen [Mic00] als Baustein für die Quantenkryptografie oder photonische Kristalle [Joa95] zur Lichtführung im Halbleiter sind bereits Wirklichkeit geworden.

Der entscheidende Vorstoß in diese Halbleiter-”Nanowelt” gelang in den 70er Jahren mit der epitaktischen Definition eines Quantenfilms [Din74]. Hierbei ist die Bewegungsfreiheit der Ladungsträger senkrecht zur Filmebene auf wenige Nanometer eingeschränkt, während sie sich in der Ebene noch frei bewegen können. Die Verfeinerung der epitaktischen Methoden und der Elektronenstrahlolithographie in den 80er und 90er Jahren ermöglichte endlich auch die Präparation von Quantendrähten [Pet82] und schließlich von Quantenpunkten [Ree86]. Bei letzteren werden Elektronen tatsächlich in einem 3-dimensionalen Potentialtopf gefangen gehalten. Dies ähnelt der Bindung von Elektronen im Coulombfeld eines Atomkerns, so dass man bisweilen auch von ”künstlichen Atomen” spricht.

Ladungsträger verhalten sich nun in solchen Quantenstrukturen gänzlich anders als im Volumenmaterial. So liegen in Quantenpunkten statt kontinuierlicher Energiebänder diskrete, energetisch voneinander abgesetzte Zustände vor. Ladungsträger in solchen Zuständen sind aber weniger anfällig für Streuprozesse. Beispielsweise ist die Lebensdauer der Ladungsträgerspins in Quantenpunkten gegenüber dem Volumenmaterial signifikant erhöht [Bon98]. So kam die Idee auf, den Spin eines Elektrons im Quantenpunkt als elementares Qubit zu nutzen und im kohärenten Regime zu manipulieren, was einen entscheidenden Schritt zur Realisierung eines Quantengatters bedeuten würde. Der Verwendung des Spins als Informationsträger an Stelle der Ladung widmet sich in der Tat ein eigenes Forschungsgebiet - die Spintronik [Wol01, Aws02]. Gerade Halbleiter, die mit lokalisierten magnetischen Spins (zumeist Mn^{2+} -Ionen) dotiert sind (auch DMS⁵ genannt), erwiesen sich in diesem Kontext als sehr interessantes Modellsystem. So gestattet die starke Kopplung der lokalisierten Spins mit den Spins der freien Ladungsträger deren gezielte Manipulation. Werden die lokalisierten Spins z.B. durch ein Magnetfeld polarisiert, so werden elektrisch oder optisch injizierte Ladungen durch die Spin-Kopplung gleichfalls polarisiert [Fie99, Oes99]. Während bei diesen Untersuchungen noch ein großes Ensemble von Spins betrachtet wurde, erlaubt die Analyse eines einzelnen semimagnetischen Quantenpunktes den Zugang zur Wechselwirkung zwischen dem Spin eines einzelnen Ladungsträgers und wenigen Spins in seiner Nanoumgebung. Die potentiellen Funktionalitäten eines solchen nanoskaligen ”Bauelementes” sind bereits zum Thema theoretischer Arbeiten geworden [Los98, Efr01]. Vorgeschlagen wurde eine Verwendung als Spinfilter, der das Ein- und Auslesen einer Spininformation bei einem Quantengatter erlauben könnte.

⁵Diluted Magnetic Semiconductor

Zur Kontrolle einer elektrischen Ladung verwendet man, z.B. beim CMOS⁶-Transistor, eine metallische Steuerelektrode (Gate), welche ein elektrostatisches Feld erzeugt [Sze81]. Zur Manipulation eines Spins ist dagegen ein Magnetfeld das geeignete Mittel. Dieses auf mesoskopischen Längenskalen zu realisieren, stellt jedoch eine Herausforderung dar. So sind elektromagnetische Spulen, wie sie zur Bereitstellung von Laborfeldern verwendet werden, hier nicht einsetzbar. Eine Alternative bietet an dieser Stelle die lithographische Definition nanostrukturierter Ferromagnete. Magnetisiert man diese, so werden sie selbst zur Quelle eines sehr lokalen magnetischen Streufeldes, welches den Halbleiter durchsetzt und so die Bandstruktur modifizieren kann. Konkret kommt es hierbei u.a. zu einem Zeemaneffekt d.h. einer Aufspaltung der Spinbänder. Das Konzept solcher Ferromagnet-Halbleiter-Hybride entstand tatsächlich unabhängig von den Spintronik-Ansätzen. Einer der Gedanken war, den Ferromagneten als nichtflüchtigen Speicher (NRAM⁷) zu nutzen, dessen jeweiliger Bitzustand direkt auf den Halbleiter bzw. dessen Hall-Widerstand aufgeprägt wird [Pri90]. Damit ist ein schnelles Auslesen der Information über den Halbleiter möglich, ohne die Information umständlich über einen Lesekopf detektieren zu müssen, wie dies bei einer Festplatte der Fall ist. Soll nun aber die Magnetisierungsrichtung des Ferromagneten gezielt auf den *Spin* des Ladungsträgers im Halbleiter übertragen werden, so erweist sich der geringe g-Faktor als Problem, der bei realistischen Streufeldern nur Spinaufspaltungen im $10\mu\text{eV}$ -Bereich gestattet. Dotiert man den Halbleiter jedoch wiederum mit Mn^{2+} -Spins, so fungieren diese als Verstärker und erzeugen damit Spinaufspaltungen im meV-Bereich. Man spricht in diesem Fall nun speziell von Ferromagnet-DMS-Hybriden. Diese sind in jüngster Zeit Thema von magnetooptischen Untersuchungen geworden [Cro97, Pul00, Kos01b, Kud02]. Allerdings handelte es sich bislang um Ferromagnete mit Abmessungen im μm -Bereich.

Bis in das Quantenregime miniaturisierte Halbleiter bieten nicht nur beim Aufbau einer neuen Nanoelektronik bzw. -spintronik große Chancen, sondern erlauben auch das Potential der Halbleiter als Lichtemitter weitaus besser auszuschöpfen. Verwendet man niederdimensionale Halbleiter z.B. als aktives Lasermedium, so resultiert die dort deutlich modifizierte elektronische Zustandsdichte in niedrigeren Schwellströmen, die zudem genau wie die Emissionswellenlänge eine geringere Abhängigkeit von der Temperatur aufweisen [Gru02]. Des weiteren ist die Lichtfarbe nicht mehr alleine durch die Materialauswahl bestimmt, sondern auch durch die Dimension bzw. Geometrie der aktiven Zone. Als besonders interessantes Emittiermaterial erwies sich in den vergangenen 10 Jahren der InGaN/GaN-Quantenfilm. Basierend auch solchen Strukturen konnte Nakumara 1993 erstmals eine effiziente blaue LED realisieren [Nak93]. Schließlich folgte auch die blaue Laserdiode [Nak96], der ein enormes technologisches Potential eingeräumt wird. Aufgrund der besseren Fokussierbarkeit des kurzwelligen Lichts kann damit die Bitdichte der CD-Speichermedien beispielsweise soweit erhöht werden, dass man auf einen 12cm-Rohling 27 GB an Daten schreiben kann. Ungeachtet der Fortschritte, die beim Wachstum der InGaN-Quantenfilme erreicht wurden,

⁶Complementary Metal Oxide Semiconductor

⁷Nonvolatile Random Access Memory

werfen diese Strukturen noch zahlreiche Fragen auf, die es zu beantworten gilt. So erscheint es äußerst ungewöhnlich, dass trotz hoher Defektdichten im Kristall die Lichtemission mit einer derartigen Effizienz verbunden ist. Eine entscheidende Rolle wird hier quantenpunktartigen Lokalisationszentren im Quantenfilm zugesprochen, die den Verlust der Ladungsträger an nichtstrahlende Defekte verhindern sollen. Während mittels TEM-Aufnahmen solche Materieinseln bereits bildlich dargestellt werden konnten [Mus02], so war bisher der spektroskopische Zugang zu einzelnen dieser Zentren noch verwehrt. Dies wäre jedoch ein wichtiger Schritt, um gleichermaßen den Einfluss der Lokalisation und des starken internen elektrischen Feldes auf die elektronischen und optischen Eigenschaften aufzuklären. Da sich diese beiden Faktoren bei den bisherigen Experimenten auf ähnliche Weise äußern, finden sich in der Literatur häufig widersprüchliche Interpretationen der optischen Resultate.

Die Arbeit gliedert sich in folgende Blöcke:

- In Kapitel 2 werden zunächst die notwendigen Grundlagen zu den Eigenschaften von Exzitonen in niederdimensionalen Halbleitern dargelegt. Dies beinhaltet die Kristall- und Bandstruktur für Volumenhalbleiter und Halbleiter reduzierter Dimensionalität sowie einige Bemerkungen zum Wachstum von Quantenpunktstrukturen. Abschließend wird das Exziton im niederdimensionalen Halbleiter diskutiert, wobei das Hauptaugenmerk auf dem Einfluss magnetischer und elektrischer Felder liegt.
- Kapitel 3 gibt einen detaillierten Einblick in die experimentelle Methodik. Insbesondere soll ein im Rahmen dieser Arbeit aufgebauter Magneto-Mikro-Photolumineszenz-Messplatz vorgestellt werden. Dabei wird die Ortsauflösung sowie die polarisationsselektive PL-Detektion näher charakterisiert. Der letzte Abschnitt ist schließlich der Nanoaperturtechnik gewidmet, welche die Spektroskopie an einzelnen nanoskaligen Objekten gestattet. Hierbei wird die lithographische Präparation der Aperturmaske und der spektroskopische Einsatz eingehend erläutert.
- Das Kernthema von Kapitel 4 ist die Spin-Spin-Kopplung zwischen Quantenpunkt-Exzitonen und lokalisierten Mn^{2+} -Spins in der Nanoumgebung. Einleitend werden die grundlegenden Charakteristika semimagnetischer Halbleiter mit dem Fokus auf der Exziton- Mn^{2+} -Kopplung behandelt. Es folgen die experimentellen Arbeiten an selbstorganisierten CdSe-Quantenpunkten, eingebettet in einer semimagnetischen ZnMnSe-Matrix. Mit der Temperaturabhängigkeit der PL-Energie gelingt zunächst der Nachweis des magnetischen Polaronzustandes. Weitere Experimente demonstrieren, dass die PL Energie ein sehr gutes Maß für die Magnetisierung innerhalb des nanoskaligen Exzitonvolumens ist - d.h. das Exziton kann also als Sonde für die Nanomagnetisierung eingesetzt werden. Dieses Konzept wird anschließend eingesetzt, um anhand einer Analyse der PL-Linienbreite einzelner Quantenpunkte die thermische Fluktuationen der Mn^{2+} -Spins in der Quantenpunktumgebung zu betrachten. Den Abschluss dieses Kapitels bilden die Entmagnetisierungseffekte, welche eine unpolarisierte optische Anregung nach sich zieht.

- Das Kapitel 5 behandelt gleichfalls semimagnetische Halbleiterstrukturen, jedoch in Kombination mit nanostrukturierten Dysprosium(Dy)-Ferromagneten. An den Anfang wird hier die Theorie zur Berechnung der magnetischen Streufelder gestellt, einschließlich einer Diskussion der wesentlichen Abhängigkeiten der Magnetisierung des Ferromagneten. Magneto-optische Untersuchungen zeigen einen magnetischen Imprint-Effekt, d.h. die die Magnetisierung der ferromagnetischen Strukturen verursacht über das magnetische Streufeld eine lokale Verbiegung der Bänder im Quantenfilm.
- Gegenstand von Kapitel 6 sind Photolumineszenz-Experimente mittels Nanoaperturtechnik an InGaN/GaN-Quantenfilmen. Hierbei zeigten sich erstmals spektral scharfe Emissionslinien, die mit der Emission aus einzelnen Lokalisationszentren identifiziert werden. Das Verhalten dieser Einzellinien als Funktion der Temperatur und der optischen Anregungsdichte weist eine überraschende Diskrepanz mit der Charakteristik des PL-Signals bei geringer Ortsauflösung auf. Die Ergebnisse geben interessante Einblicke in die Bedeutung der Lokalisationseffekte und des internen elektrischen Feldes bei der strahlenden Rekombination. So konnte z.B. eine thermisch induzierte Abschirmung des internen elektrischen Feldes, ein ausgeprägter Bandfülleffekt und Biexzitonen mit negativer Bindungsenergie nachgewiesen werden.

Kapitel 2

Das Exziton in einem Halbleiter reduzierter Dimension

Die in dieser Arbeit behandelten Themen weisen offenkundig eine große Variation auf, sowohl in der Materialauswahl (II-VI und III-V-Halbleiter) als auch in der Struktur des Halbleiters (Quantenpunkte und Quantenfilme). Gemeinsam ist diesen Untersuchungen jedoch, dass jeweils exzitonische Grundzustände in einem niederdimensionalen Halbleiter mit Mitteln der PL-Spektroskopie abgetastet werden. Daher sollen die ersten beiden Kapitel diesem gemeinsamen Nenner gewidmet sein. So soll im folgenden Teil das notwendige Wissen zum Exziton in Quantenfilmen bzw. Quantenpunkten dargelegt werden. Dies beinhaltet die Diskussion der Kristall- und Bandstruktur direkter Halbleiter, die Charakteristik des Exzitons im allgemeinen bzw. speziell für niederdimensionale Halbleiter, sowie der Einfluss magnetischer und elektrischer Felder.

2.1 Vom Volumenhalbleiter bis zum Quantenpunkt

2.1.1 Die Kristall- und Bandstruktur der Volumenhalbleiter

Der bei elementaren Halbleitern und Verbindungshalbleitern am häufigsten anzutreffende Kristallaufbau ist die Zinkblendestruktur (Abb. 2.1). Diese besteht aus zwei kubisch flächenzentrierten (fcc-) Gittern, die um $1/4$ der Raumdiagonale gegeneinander versetzt sind. Bei Verbindungshalbleitern besetzen dabei jeweils die Kationen und die Anionen ihr eigenes fcc-Untergitter. Die $(\text{Zn,Cd,Mn})\text{Se}/(\text{Zn,Mn})\text{Se}$ -Heterostrukturen aus Kapitel 4 und 5 kristallisieren in dieser Konfiguration. Der zweithäufigste Kristalltypus ist die Wurtzitstruktur (Abb. 2.1). Hier liegt die gleiche Koordination wie bei der Zinkblendestruktur vor. Lediglich die Schichtenfolge ist anders, so dass statt einer kubischen Packung eine hexagonale Packung vorliegt. Ein Beispiel für diesen Kristallaufbau bilden die Gruppe-III-Nitride in Kapitel 6. So sehr sich die Verbindungshalbleiter (III-V und II-VI) zumeist in ihrer Kristallstruktur ähneln, so sehr gleichen sie sich auch in der Bandstruktur. Das Leitungsband wird dabei von den atomaren s-Orbitalen der Kationen (Gruppe-II- bzw. III-Element) ge-

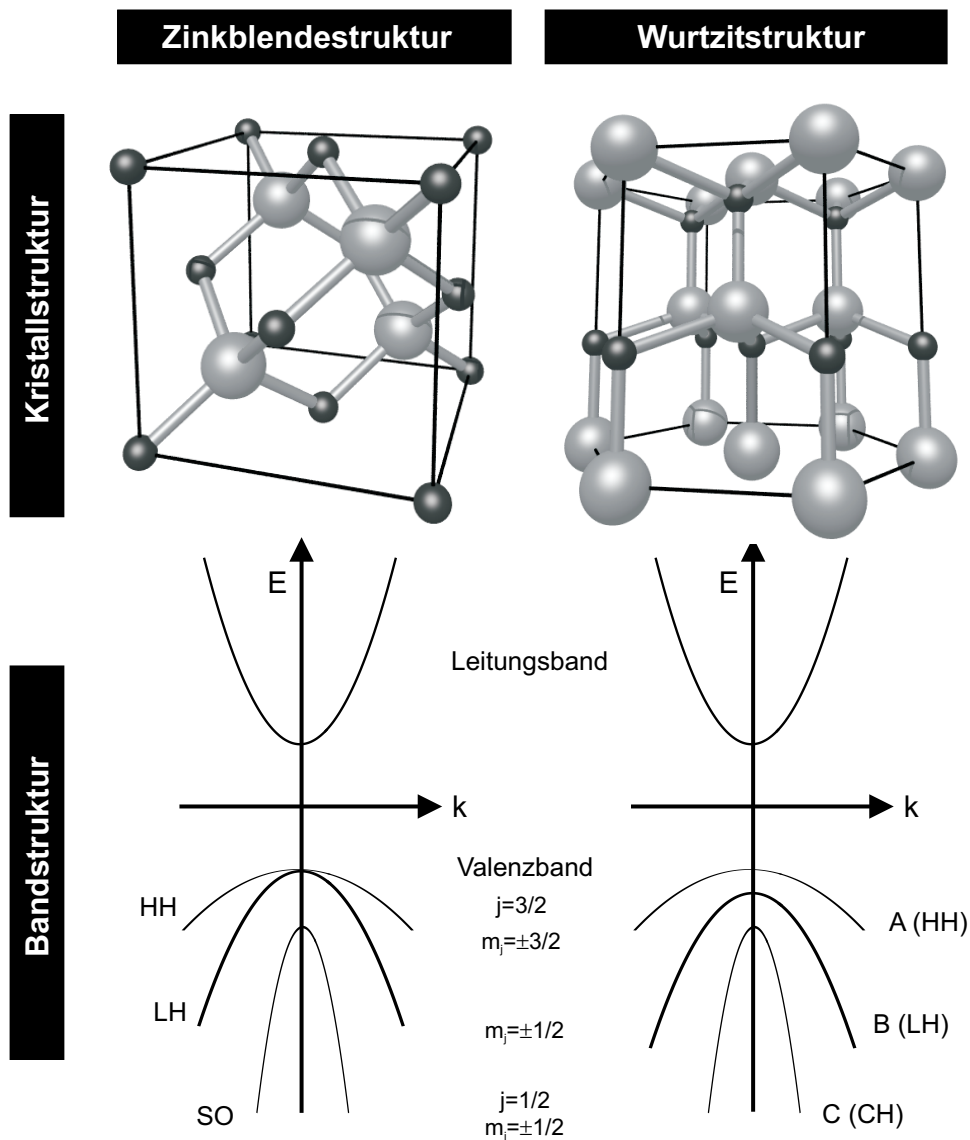


Abbildung 2.1: Kristall- und Bandstruktur für Halbleiter mit Zinkblende- und Wurtzit-Kristallaufbau [Gil98, Win97]

bildet. Da hier kein Bahndrehimpuls vorliegt ($l = 0$) liefert alleine der Elektronenspin $s = 1/2$ eine Multiplizität ($m_s = \pm 1/2$). Das Valenzband setzt sich aus den p-Orbitalen der Anionen (Gruppe-VI- bzw. V-Element) zusammen und weist somit einen Bahndrehimpuls von $l = 1$ auf. Gekoppelt mit dem Spin $s = 1/2$ ergeben sich die Valenzband-Gesamtimpulse $j = l \pm s = 1/2, 3/2$. Das Band mit $j = 1/2$ liegt dabei gegenüber dem $j = 3/2$ -Band energetisch tiefer. Während dies im Fall der Zinkblendestruktur durch die Spin-Orbit-Kopplung (SO-Band¹) bedingt ist, so ist für die Wurtzitstruktur die niedrigere Symmetrie des Kristall-

¹Spin orbit split-off band

feldes (CH-Band²) als Ursache zu nennen. Im Unterschied zur Zinkblendestruktur ist bei der Wurtzitstruktur durch die Spin-Orbit-Kopplung auch die Entartung innerhalb des $j = 3/2$ -Bandes teilweise aufgehoben (Abb. 2.1). Es liegt hier eine Aufspaltung zwischen den Bändern mit $m_j = \pm 3/2$ und $m_j = \pm 1/2$ vor. Aufgrund der unterschiedlichen Krümmungen der Dispersionsrelationen bezeichnet man diese beiden Bänder als Schwerloch(HH³)- bzw. Leichtloch(LH⁴)-Band. Alternativ finden für Wurtzitkristalle auch die Bezeichnungen A-, B- und C-Band Verwendung.

2.1.2 Die Bandstruktur von Halbleitern reduzierter Dimension

Während sich im Volumenhalbleiter die Ladungsträger in allen Raumrichtungen frei bewegen können, so wurde es mit der epitaktischen Herstellung von Quantenfilmen erstmals möglich diese Bewegungsfreiheit zumindest in einer Raumrichtung stark einzuschränken. Besitzt nämlich das Quantenfilmmaterial eine kleinere Bandlücke als die umgebenden Halbleiterschichten, so bildet sich ein eindimensionaler Potentialtopf aus, in dem die Ladungsträger gefangen sind. Falls die Breite des Quantenfilms L_z schließlich von der gleichen Größenordnung wie die elektronische de-Broglie-Wellenlänge ($\lambda = \hbar/p$) ist, kommt es zu einer Quantisierung des k -Vektors $k_z^n = \frac{n\pi}{L_z}$ (n : Quantenzahl) senkrecht zur Quantenfilmebene (z -Richtung). Mit einer nach wie vor freien Bewegung der Ladungsträger in der Quantenfilmebene ergibt sich deren Energie also mit:

$$E(k_x, k_y, n) = \frac{\hbar^2}{2m}(k_x^2 + k_y^2 + (\frac{n\pi}{L_z})^2) \quad (2.1)$$

Diese im Vergleich zum Volumenhalbleiter stark modifizierte Energiedispersion des 2-dimensionalen Halbleiters wird auch in der elektronischen Zustandsdichte⁵ $\rho(E)$ sichtbar. So liegt statt einer \sqrt{E} -Abhängigkeit nunmehr eine Stufenfunktion vor, welche die partielle Energiediskretisierung reflektiert (siehe Abb. 2.2). Eine weitere Reduktion der Dimension des Halbleiters durch die epitaktische oder lithographische Präparation von Quantendrähten bis hin zu Quantenpunkten führt letztlich zu noch stärkeren Diskontinuitäten in der Zustandsdichte. Im Extremfall eines Quantenpunktes, entsprechend einem 3-dimensionalen Einschlusspotential, trifft man so auf eine deltaförmige $\rho(E)$ -Funktion. Es liegt also eine vollständige Diskretisierung des Energiespektrums vor.

2.1.3 Epitaktisch hergestellte Quantenpunkte

Während die Realisierung von Quantenfilmen durch das atomlagen-genaue Aufwachsen von Halbleiterschichten mittels verschiedener Epitaxieverfahren schon seit vielen Jahren Routine ist, so sind Quantenpunktstrukturen noch ein recht junges Laborprodukt. Das

²Crystal field split-off band

³Heavy hole

⁴Light hole

⁵Anzahl der Energiezustände pro Energieintervall

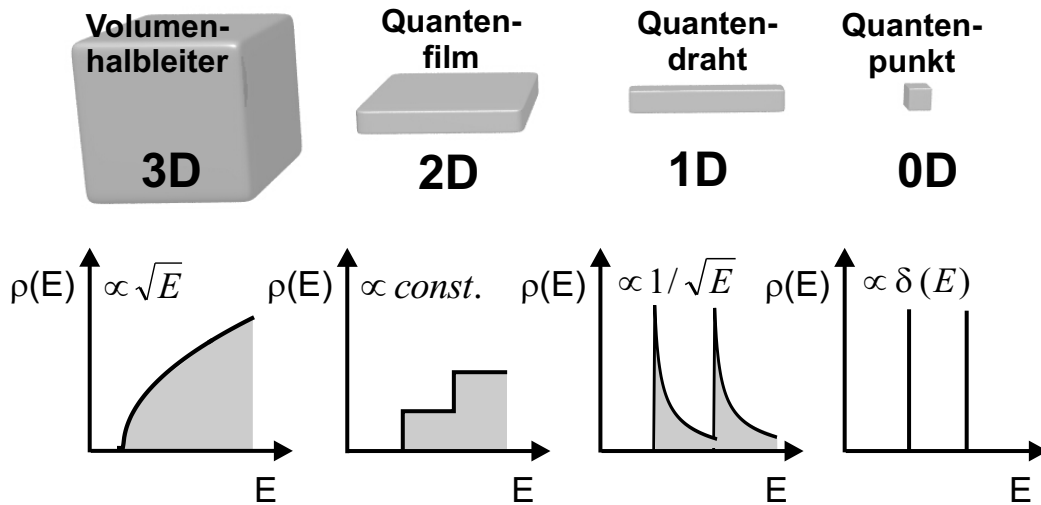


Abbildung 2.2: Vom Volumenhalbleiter zum Quantenpunkt. Die elektronische Zustandsdichte $\rho(E)$ in Abhängigkeit der Dimensionalität des Halbleiters. [Gru02]

gerade in anwendungsorientierter Hinsicht interessanteste Verfahren zur Herstellung dieser "künstlichen Atome" bildet das selbstorganisierte Wachstum. Hierbei führt eine große Gitterfehlanpassung zwischen Quantenpunktmaterial und Trägerschicht zum Aufbau einer Verspannung. Die Minimierung der Verspannungsenergie mündet dabei in einem Inselwachstum statt einer strengen 2-dimensionalen Aufsichtung. Man spricht daher von *selbstorganisierten Quantenpunkten*. In verschiedenen Quantenpunktsystemen kommt es vor der Inselbildung zunächst zum Aufbau einer zweidimensionalen Schicht (wetting layer). Diese wächst an bis die zunehmende Verspannungsenergie ein kritisches Niveau erreicht, so dass schließlich die Quantenpunktbildung einsetzt. Man spricht hier vom Stranski-Krastanov-Modus [Str38]. Der prominenteste Vertreter für diesen Quantenpunkttypus ist das InAs/GaAs-System [Leo93]. Obwohl bei CdSe/ZnSe-Heterostrukturen eine im Vergleich zu InAs/GaAs sehr ähnliche Gitterfehlanpassung von 7 % [Pas02a] vorliegt, kommt es hier nicht zur Ausbildung einer Wetting layer [Per00, Kim00]. Andere Faktoren wie Bindungsionizität, Oberflächenmigration oder Diffusion scheinen hier eine gewichtige Rolle zu spielen [Kim00].

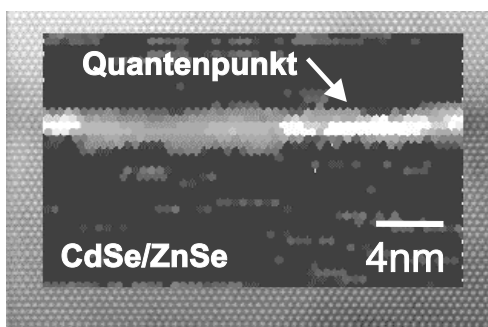


Abbildung 2.3: DALI-prozessierte TEM-Aufnahme eines einzelnen CdSe/ZnSe-Quantenpunktes im Querschnitt [Kum98]. Die hellen Zonen entsprechen Regionen mit erhöhtem Cd-Gehalt.

Wie in DALI⁶-prozessierten TEM⁷-Aufnahmen von CdSe/ZnSe-Quantenpunkten (Abb. 2.3) zu erkennen ist, liegen in diesem System typischerweise scheibenförmige Inseln mit Durchmessern von ca. 8-10 nm vor [Kum98]. Andererseits konnten quantenpunktartige Zustände auch in Quantenfilmen unverspannter Heterostrukturen nachgewiesen werden [Gam96a]. Hier scheinen Fluktuationen der Quantenfilm-Schichtdicke und der lokalen Materialzusammensetzung ursächlich für die Ausbildung quasi-nulldimensionaler Exziton-zustände zu sein. Klassifiziert werden solche Strukturen meist mit dem Begriff der *„natürlichen Quantenpunkte“*. Für die Ausbildung epitaktischer Quantenpunkte gibt es noch einen dritten Mechanismus, der speziell bei den ternären InGaN/GaN-Quantenfilmen (Kapitel 6) eine wichtige Rolle spielt. Dabei handelt es sich um eine Entmischung der Quantenfilm-Legierung während des Wachstums. Eine solche Phasentrennung kann zu einer nanometerskaligen In-Anreicherung und damit zur Ausbildung von Quantenpunkten führen [Chi98].

2.2 Das Exziton im direkten Halbleiter

2.2.1 Das Exziton im Volumenhalbleiter

Regt man den Halbleiter optisch an, und zwar mit einer Photonenergie oberhalb der Bandlücke, so hebt man ein Elektron vom Valenzband ins Leitungsband. Da zwischen Elektron und erzeugtem Loch eine attraktive Coulomb-Wechselwirkung besteht, kann es dabei zur Ausbildung eines gebundenen Elektron-Loch-Paares, eines sogenannten *Exzitons* kommen. Da sowohl schwere als auch leichte Löcher im Valenzband vorkommen, muss prinzipiell zwischen Schwerloch- und Leichtloch-Exzitonen unterschieden werden. Da schwere Löcher aufgrund der größeren Masse eine kleinere Quantisierungsenergie aufweisen, bilden sie in der Regel den Grundzustand bei niederdimensionalen Halbleitern. In der Folge werden daher nur Schwerloch-Exzitonen betrachtet.

Das Exziton als Elektron-Loch-Paar ähnelt stark einem Elektron-Proton-Paar - dem Wasserstoffatom. Die Bindungsenergie E_B^X und der Bohrradius a_B lassen sich daher analog berechnen:

$$E_B^X = \frac{\mu e^4}{2(4\pi\epsilon_r\epsilon_0\hbar)^2} \cdot \frac{1}{n^2}, \quad a_B = \frac{4\pi\epsilon_r\epsilon_0\hbar^2}{\mu e^2} \quad (2.2)$$

- μ reduzierte Masse des Elektron-Loch-Paares ($\mu = (m_e^{-1} + m_h^{-1})^{-1}$)
- ϵ_r relative Dielektrizitätskonstante
- ϵ_0 Vakuum-Dielektrizitätskonstante
- n Hauptquantenzahl

⁶Digital Analysis of Lattice Images [Lit00]

⁷Transmissionselektronenmikroskopie

	GaAs	InP	ZnSe	CdTe
$E_B(\text{meV})$	4.9 [Lan87a]	5.1 [Lan87a]	19.9 [Lan87a]	10.5 [Lan87a]
$a_B(\text{nm})$	14 [Rey81]	11 [Yof93]	4.5 [Lan87b]	7.5 [Yof93]
$m_e(m_0)$	0.067 [Vur01]	0.0795 [Vur01]	0.147 [Pel92]	0.096 [Law71]
$m_{hh}(m_0)$	0.50 [Lan82a]	0.62 [Lan82a]	0.81 [Pel92]	0.674 [Sai90]
ϵ_r	13.18 [Lan87a]	12.56 [Lan87a]	9.1 [Lan87a]	10.2 [Lan87a]

Tabelle 2.1: Kennwerte von Schwerloch-Exzitonen für typische III-V und II-VI-Halbleiter

Wie Tabelle 2.1 zeigt, beträgt der Bohrradius a_B (mittlerer Elektron-Loch-Abstand) je nach Material einige nm. Da die Exzitonen also über viele Gitterkonstanten ausgeht sind, bleibt die Effektive-Masse-Näherung anwendbar. Die Exziton-Bindungsenergie E_B^X liegt in der Größenordnung von 10 meV. Aufgrund der kleineren Dielektrizitätskonstanten und der größeren Massen findet man im allgemeinen bei II-VI-Halbleitern deutlich größere Exziton-Bindungsenergien und kleinere exzitonische Bohrradien als bei III-V-Verbindungen. Eine Ausnahme bilden hier die Gruppe-III-Nitride (siehe Abschn. 6.1). Bei den meisten Halbleitern ist die Exziton-Bindungsenergie deutlich kleiner als die thermische Energie bei Raumtemperatur (25 meV). Daher treten exzitonische Effekte im allgemeinen erst bei kryogenen Temperaturen auf.

Die Spinstruktur des Exzitons ergibt sich aus der Kopplung von Elektron- und Lochdrehimpuls $J = j \pm s$. Für das Schwerloch-Exziton ergeben sich damit die Drehimpulsquantenzahlen $J = 3/2 + 1/2 = 2$ und $J = 3/2 - 1/2 = 1$. Die möglichen Spinprojektionen lauten demnach $m_J = \pm 2$ und $m_J = \pm 1$. Aufgrund der optischen Auswahlregeln ($\Delta m_J = 0, \pm 1$), können Exzitonen jedoch nicht in beliebiger Spinkonfiguration strahlend rekombinieren. Daher unterscheidet man häufig zwischen *hellen* ($m_J = \pm 1$) und *dunklen* ($m_J = \pm 2$) Exzitonen. Die Spinorientierung eines hellen Exzitons geht bei strahlender Rekombination aufgrund der Drehimpulserhaltung auf das emittierte Photon über. Die optische Polarisation der Lumineszenz lässt daher auf den Spin des Exzitons schließen. So emittieren Exzitonen mit $m_J = +1$ Licht in zirkularer σ^+ -Polarisation, während Exzitonen mit $m_J = -1$ anhand einer σ^- -Polarisation zu identifizieren sind.

2.2.2 Das Exziton im Halbleiter reduzierter Dimension

Exzitonen in niederdimensionalen Halbleitern unterscheiden sich in vielerlei Hinsicht von denen im Volumenhalbleiter. Einige dieser Confinement-Effekte seien hier kurz zusammengefasst. An erster Stelle ist hier die Diskretisierung der Energien bzw. der Zustandsdichte zu nennen, wie sie in Abb. 2.2 ersichtlich ist. Des weiteren kommt es bereits beim Quantenfilm zu einer Aufhebung der Valenzband-Entartung. Die Ursache sind Verspannungseffekte sowie die unterschiedlichen Quantisierungsenergien von leichten und schweren Löchern aufgrund verschiedener effektiver Massen. Die Schwerloch-Exzitonen bilden damit zumeist den Grundzustand. Eine weitere Konsequenz der Schwerloch-Leichtloch-Aufspaltung ist ein stark anisotroper g-Faktor des Schwerlochs bzw. Exzitons [Mar90]. So ist die jeweili-

ge Komponente parallel zur Quantenfilmebene vernachlässigbar, während senkrecht dazu endliche Werte auftreten. Dies lässt nur bei senkrechtem Magnetfeld nennenswerte Zeemanenergien zu. Der quantenmechanische Einschluss im Quantenfilm bedeutet aber auch eine Vervielfachung der Exziton-Bindungsenergien. Somit bleibt der Exzitonzustand auch bei wesentlich höheren Temperaturen noch stabil. Allerdings ist nicht nur die Energetik der Exzitonen betroffen, sondern gleichfalls deren Dynamik. So findet man beispielsweise bei Quantenpunkten gegenüber Quantenfilmen eine Vergrößerung der strahlenden Lebensdauer. Die Lokalisierung des Exzitons bedeutet nämlich eine Delokalisierung im k -Raum, so dass die Emission eines Photons, welches nur geringe Impulse tragen kann, unwahrscheinlicher wird. Andererseits kann die Lokalisation der Elektron-Loch-Paare in einem Quantenpunkt einen positiven Effekt für die Quanteneffizienz der strahlenden Rekombination hervorbringen. Indem die Exzitonen eingefangen werden, vermeidet man schließlich deren nichtstrahlenden Verlust an Defekten in der Halbleitermatrix.

2.3 Das Quantenpunkt-Exziton im externen Feld

Der Erfolg der Halbleiter als Basismaterial für die Elektronik ist zu einem großen Teil begründet in der exakten Manipulierbarkeit der elektrischen Ladungen und Ströme im Kristall mittels elektrischer Felder. Die gezielte Kontrolle von Spins im Halbleiter, wie es im Rahmen der Spintronik angestrebt wird, kann dagegen mit Hilfe magnetischer Felder erreicht werden. Die Auswirkungen solch externer Felder auf den Orts- und Spinanteil der Ladungsträger-Wellenfunktionen bilden daher ein Kernthema der Halbleiterphysik. Dies gilt uneingeschränkt auch für Halbleiter-Quantenpunkte. Wie sich im folgenden zeigt, können Felder darüber hinaus einen erheblichen Beitrag zur Aufklärung der Quantenpunkte leisten. So werden Informationen wie die Ladungsverteilung im Quantenpunkt oder die räumliche Ausdehnung der Wellenfunktionen zugänglich.

2.3.1 Das Quantenpunkt-Exziton im magnetischen Feld

Ein magnetisches Feld wirkt sich in zweifacher Hinsicht auf die Energie eines Exzitons aus. Zum einen sorgt ein Zeemaneffekt für eine Aufspaltung der Spin-Niveaus m_J und zum anderen verursacht die Landau-Quantisierung eine diamagnetischen Energieverschiebung. Für eine detaillierte Betrachtung soll hier zunächst der Hamilton-Operator eines Elektrons in Gegenwart eines Magnetfeldes und eines parabolischen Einschlusspotentials (Quantenpunkt) mit der charakteristischen Energie $\hbar\omega_0$ herangezogen werden [Jac97]:

$$H = \frac{1}{2m_e}(\vec{p} - \frac{e}{c}\vec{A})^2 + \frac{1}{2}m_e\omega_0^2 r^2 + \frac{1}{2}m_s g_e \mu_B B \quad (2.3)$$

Der erste Term entspricht der kinetischen Energie, der zweite dem Einschlusspotential und der dritte Term beschreibt die Ankopplung des Elektronenspins an das Magnetfeld durch den Zeemaneffekt. Der letzte Term soll jedoch bis auf weiteres ausgeklammert werden. Die Eigenenergien des so verkürzten Hamilton-Operators wurden bereits von Fock

und Darwin ermittelt [Jac97]:

$$E_{n,m}(B) = \hbar\Omega(n+1) - \frac{1}{2}\hbar\omega_c m, \quad \Omega^2 = \omega_0^2 + \frac{1}{4}\omega_c^2 \quad (2.4)$$

Es treten hier zwei Quantenzahlen in Erscheinung: die Hauptquantenzahl n , sowie die azimutale Quantenzahl m . Desgleichen wurde mit $\omega_c = eB/m_e c$ die Zyklotronfrequenz eingeführt. Für den Grundzustand $E(0,0)$ sollen nun die Grenzfälle eines kleinen Magnetfeldes ($\omega_c \ll \omega_0$) und eines großen Magnetfeldes ($\omega_c \gg \omega_0$) betrachtet werden. Aus Gl. 2.4 kann folgendes abgeleitet werden:

$$\omega_c \ll \omega_0 : \quad E_{0,0}(B) = \hbar\omega_0 + \frac{1}{8} \frac{\omega_c^2}{\omega_0} = \hbar\omega_0 + \frac{1}{8} \frac{e^2}{m_e^2 c \omega_0} \cdot B^2 \quad (2.5)$$

$$\omega_c \gg \omega_0 : \quad E_{0,0}(B) = \frac{1}{2} \hbar\omega_c = \frac{e}{2m_e c} \cdot B \quad (2.6)$$

In beiden Fällen zeigt sich eine Zunahme der Eigenenergie mit der Feldstärke. Es handelt sich also um eine diamagnetische Verschiebung. Im Grenzfall kleiner Magnetfelder ergibt sich augenscheinlich ein quadratischer Anstieg der Eigenenergie mit der Feldstärke. Zudem ist der Vorfaktor abhängig vom Einschlusspotential $\hbar\omega_0$. Je enger der Potentialtopf, d.h. je kleiner der Quantenpunkt, desto geringer ist der Anstieg der Eigenenergie. Im Grenzfall großer Magnetfelder gelangt man in das Regime der reinen Landau-Quantisierung mit einer linearen Energieverschiebung. Hier kommt es zu einem magnetischen Einschluss des Elektrons in der Ebene senkrecht zur Magnetfeldrichtung. Zur Unterscheidung der beiden Regime kann auch ein Vergleich der charakteristischen Längen durchgeführt werden. Ist die magnetische Länge $l_m = \sqrt{\hbar/(eB)}$, welche den Einschluss durch das Magnetfeld beschreibt, größer (kleiner) als die Länge des Einschlusspotentials l_0 , so befindet man sich im Grenzfall kleiner (großer) Felder.

Soll nun der Hamilton-Operator aus Gl. 2.3 für ein Exziton formuliert werden, so müssen analoge Terme für das Loch sowie die Coulomb-Wechselwirkung hinzugenommen werden. Die Lösung der Schrödingergleichung [Jac97] für realistische Quantenpunkt-Potentiale liefert ein Energiespektrum, welches dem Fock-Darwin-Spektrum aus Gl. 2.4 sehr ähnelt. Dies ist auf die Tatsache zurückzuführen, dass die charakteristische Energie des Einschlusspotentials deutlich größer ist als die charakteristische Energie der Coulomb-Wechselwirkung. Der Haupteffekt der Coulomb-Wechselwirkung ist lediglich eine Parallelverschiebung des Energiespektrums um die Exziton-Bindungsenergie. So lässt sich die Exzitonenergie im Regime kleiner Felder und unter Hinzunahme des Zeemaneffektes in folgender Form schreiben [Pul96, Wal98]:

$$E_{m_J}(B) = E_0 + \gamma B^2 - \frac{m_J}{2} g_X \mu_B B \quad (2.7)$$

$$\gamma = \frac{e^2}{8\mu} \langle r_X^2 \rangle \quad (2.8)$$

Im Magnetfeld tritt also eine diamagnetische Verschiebung abhängig vom mittleren quadratischen Radius des Exzitons $\langle r_X^2 \rangle$ auf. Des weiteren kommt es zu einer Aufspaltung der Spin-Niveaus $m_J = \pm 1$ abhängig vom exzitonischen g-Faktor g_X . Abb. 2.4 zeigt beispielhaft diese spinabhängige Energieverschiebung der Exzitonenergie in einem Magnetfeld für den Fall eines einzelnen CdSe/ZnSe-Quantenpunktes. Das Feld wurde senkrecht zur Quantenpunktebene orientiert, so dass das magnetische Einschlusspotential gegen das laterale Einschlusspotential des Quantenpunktes konkurriert. r_X aus Gl. 2.8 entspricht daher dem lateralen Exzitonradius. Eine Anpassung der experimentellen Werte mittels Gl. 2.8 liefert einen lateralen Exzitonradius $\langle 2r_X \rangle$ von 13 nm sowie einen g-Faktor g_X von -0.9. Folgende CdSe-Werte fanden bei dieser Rechnung Verwendung: $m_e = 0.11m_0$ [Lan82b], $m_{hh\parallel} = 0.38m_0$ [Lan96].

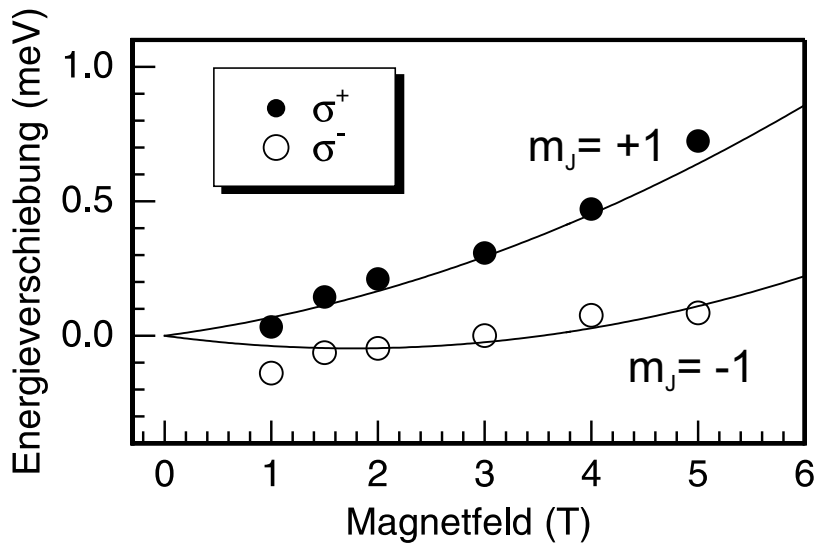


Abbildung 2.4: Verschiebung der Energie für Exzitonen mit den Spins $m_J = \pm 1$ in einem CdSe/ZnSe-Quantenpunkt beim Anlegen eines senkrechten Magnetfeldes (Probendetails siehe Anhang).

2.3.2 Das Quantenpunkt-Exziton im elektrischen Feld

Setzt man ein Quantenpunkt-Exziton einem elektrischen Feld aus, so unterliegt es dem aus der Atomphysik bekannten Starkeffekt. Das elektrische Feld führt zu einer Verbiegung von Leitungs- und Valenzband, welche eine räumliche Trennung von Elektronen und Löchern bewirkt (Abb. 2.5). Daraus resultiert zum einen ein Gewinn an elektrostatischer Energie für Elektron und Loch und zum anderen eine verminderte Rekombinationsrate. Anders als im Magnetfeld kommt es also zu einer Absenkung der Exzitonenergie mit zunehmender Feldstärke. Da der Potentialtopf des Quantenpunktes der Elektron-Loch-Trennung entgegenwirkt, wird auch der Starkeffekt von diesem beeinflusst. Man spricht daher von einem *Quantum-Confined-Stark-Effekt* (QCSE) [Mil84].

Zur Berechnung der Energie eines Quantenpunkt-Exzitons unter dem Einfluss eines elektrischen Feldes kann folgender Hamiltonoperator herangezogen werden:

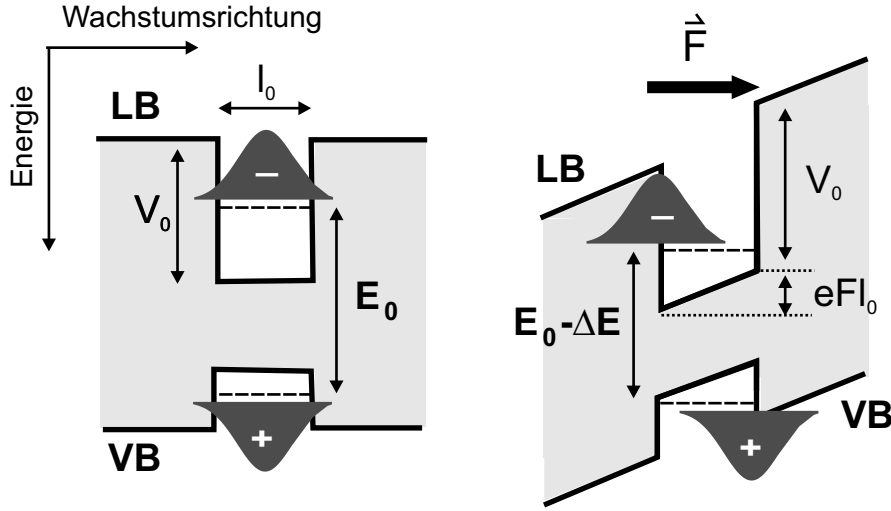


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung des Bandverlaufes in Wachstumsrichtung mit und ohne elektrischem Feld \vec{F} . Angedeutet ist die feldinduzierte Energieabsenkung sowie die Elektron-Loch-Trennung.

$$H = \sum_{i=e,h} -\frac{\hbar^2}{2m_i} \nabla_i^2 + \left(V(\vec{r}_i) + q_i \vec{F} \vec{r}_i \right) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 |\vec{r}_e - \vec{r}_h|} \quad (2.9)$$

Die Potentialterme umfassen das epitaktische Einschlusspotential $V(\vec{r}_i)$, das elektrostatische Potential aufgrund des elektrischen Feldes F , sowie die Elektron-Loch-Coulomb-Wechselwirkung. Diese drei Energieskalen müssen für einen geeigneten Lösungsansatz verglichen werden. Betrachtet man den konkreten Fall von CdSe/ZnSe-Quantenpunkten im vertikalen⁸ elektrischen Feld mit realistischen Laborfeldstärken F in der Größenordnung von 10-100 kV/cm, so ergibt sich eine elektrostatische Bandverkipfung eFl_0 (10 meV), die klein ist gegen die Potentialtopftiefe V_0 (> 500 meV) und die Exziton-Bindungsenergie E_B (> 50 meV). In diesem Fall kann also der Feldeffekt mit einem störungstheoretischen Ansatz behandelt werden. Die Lösung liefert schließlich einen linearen Starkeffekt mit einem permanenten Dipolmoment p und einen quadratischen Starkeffekt mit einer endlichen Polarisierbarkeit α [Seu01]:

$$E(F) = E_0 - \vec{p} \cdot \vec{F} - \alpha \cdot F^2 \quad (2.10)$$

In Abb. 2.6 ist die experimentelle Energieverschiebung eines einzelnen CdSe/ZnSe-Quantenpunktes in einem schwachen, vertikalen elektrischen Feld dargestellt. Die annähernd lineare Verschiebung deutet hier auf ein endliches permanentes Dipolmoment mit $p = -4.4 \cdot 10^{-3}$ meV cm/kV hin. Polarisierungseffekte sind dagegen nicht nachweisbar. Das

⁸D.h. Die Feldlinien verlaufen senkrecht zur Quantenpunktebene

permanente Dipolmoment ist Folge einer intrinsischen Elektron-Loch-Trennung im Quantenpunkt. Zudem kann aus dem negativen Vorzeichen geschlossen werden, dass die Lochwellenfunktion entlang der Wachstumsrichtung über der Elektronwellenfunktion liegt. In der Literatur wurden hierzu verschiedene mögliche Ursachen (z.B. asymmetrische Quantenpunktgeometrie, Verspannungsgradienten) diskutiert, auf die hier jedoch nicht näher eingegangen werden soll [Seu02b].

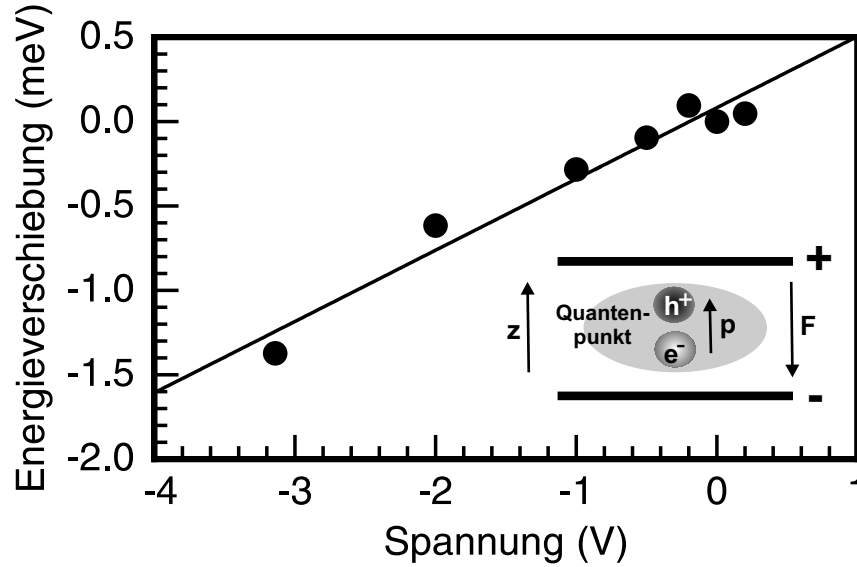


Abbildung 2.6: Verschiebung der Exzitonenergie in einem CdSe/ZnSe-Quantenpunkt beim Anlegen eines senkrechten elektrischen Feldes (Probendetails siehe Anhang bzw. Ref. [Seu02b, Seu03]). Der Bildeinsatz veranschaulicht die Elektron- und Lochverteilung im Quantenpunkt.

Verlässt man das Regime der schwachen elektrischen Felder, so ist der störungstheoretische Ansatz nicht mehr tragfähig, und Gl. 2.10 verliert ihre Gültigkeit. Es sollen nun Felder betrachtet werden, die eine Bandverkipfung im Quantenpunkt eFl_0 vergleichbar mit der Potentialtopftiefe V_0 verursachen. In diesem Fall sind Elektron und Loch nahezu vollständig an den jeweils gegenüberliegenden Potentialtopfwänden lokalisiert. Eine weitere Ladungstrennung ist also kaum noch möglich und die elektrostatische Energie nähert sich dem Wert $-eFl_0$. Hinzu kommt eine beträchtliche Deformation des Einschlusspotentials selbst, welches mehr und mehr die Dreiecksform annimmt. Das Feld verursacht damit eine Verkürzung der effektiven Einschlusslänge, was zu einem Anstieg der Quantisierungsenergie führt. Diese beiden Effekte können mit folgendem Ausdruck approximiert werden [Cin00]:

$$E = E_0 - el_0 \cdot F + \left(\frac{9\pi\hbar e}{8\sqrt{2\mu}} \right)^{2/3} \cdot F^{2/3} \quad (2.11)$$

Abschließend sei eine gewisse Analogie zwischen dem Verhalten des Exzitons im Magnetfeld und im elektrischen Feld betont. So werden die Energiequantisierung und die Wellenfunktionen im schwachen Feld im wesentlichen jeweils vom Quantenpunkt-Potential bestimmt und die Feldeffekte können als kleine Störung behandelt werden. Starke Felder erzeugen jedoch selbst ein Einschlusspotential, welches schließlich enger ist als der Einschluss durch das Quantenpunkt-Potential. Damit wird das Feld zur bestimmenden Größe für die Energiequantisierung und die Wellenfunktionen.

Kapitel 3

Die hochauflösende Magneto-photolumineszenz-Spektroskopie

Direkte Halbleiter zeichnen sich gegenüber solchen mit einer indirekten Bandstruktur im allgemeinen durch ihr Potential als effiziente Lichtemitter aus. Technologisch konnten so inkohärente wie kohärente Lichtquellen für den infraroten bis ultravioletten Spektralbereich erschlossen werden. Diese besondere Eigenschaft liefert aber zugleich ein sehr effektives Werkzeug zur Aufklärung der elektronischen Struktur im Halbleiter - *die Photolumineszenz-(PL)-Spektroskopie*. Hier macht man schlicht vom Photon als Sondenteilchen Gebrauch. Dazu regt man mittels Lasereinstrahlung einen elektronischen Übergang vom Valenz- ins Leitungsband an. Da die Anregungsenergie meist deutlich größer ist als die Bandlücke, werden so Elektronen und Löcher mit hoher Energie erzeugt. Durch verschiedene inelastische Streuprozesse wie der Phononstreuung, dem Augerprozess und der Ferninfrarot(FIR)-Photonemission kommt es anschließend zu einer energetischen Relaxation der Teilchen an die Bandkante. Von dort geht das Elektron schließlich unter Aussendung eines Photons wieder in das Valenzband über. Man spricht von einer strahlenden Rekombination. Die spektrale Analyse des Lumineszenzlichts, also der emittierten Photonen, erlaubt es nun die Übergangsenergie und damit die elektronischen Eigenschaften des Halbleiters aufzuklären. Dies schließt neben der Bandlücke beispielsweise auch die Wechselwirkung der Ladungsträger mit anderen Ladungen und Spins, mit Phononen und die Ankopplung an elektrische bzw. magnetische Felder ein. Diese Methode gestattet dabei den Zugriff auf die bandkannennahe Zustände des Halbleiters. Um die thermische Verbreiterung der Übergänge zu minimieren wird der Halbleiter im Photolumineszenz-Experiment meist auf kryogene Temperaturen gebracht. Die thermische Energie ist somit im allgemeinen auch kleiner als die Exziton-Bindungsenergie, so dass die Übergänge an der Bandkante exzitonischen Charakter besitzen.

Bei so manchem PL-Experiment ist nicht nur die spektrale Auflösung von Bedeutung sondern auch eine hinreichende Ortsauflösung, die bestimmt ist durch die Größe des anregenden Laserfokus. Bei Verwendung von Standardlinsen zur Laserfokussierung mit Brennweiten von einigen cm ergeben sich, bedingt durch Linsenfehler, zumeist Fokusgrößen oberhalb von $10\ \mu\text{m}$. Insbesondere bei der Spektroskopie an Halbleiterstrukturen mit Abmessungen

im Mikro- oder Nanometerbereich erweist sich eine derartige Ortsauflösung häufig jedoch als nicht ausreichend. So wird es bisweilen schwierig einzelne solcher Halbleiterstrukturen (aus einem dichten Ensemble) zu selektieren oder durch sie bedingte Ortsabhängigkeiten der PL-Emission eingehend zu analysieren. Des weiteren verursacht das großflächig angeregte Halbleitersubstrat als Träger der Strukturen nicht selten ein störendes Hintergrundsignal im PL-Spektrum. Setzt man jedoch statt der Standardlinsen ein hochwertiges Mikroskopobjektiv mit hoher numerischer Apertur und weitgehender Korrektur der Abbildungsfehler ein, so gelangt man zu nahezu beugungsbegrenzten Fokusgrößen von der Größenordnung der Lichtwellenlänge, also unterhalb von $1\ \mu\text{m}$. In diesem Fall spricht man von der *Mikro-PL-Spektroskopie* am Gegensatz zur erwähnten *Makro-PL-Spektroskopie* mit Standardlinsen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein solcher Mikro-PL-Aufbau realisiert. Das errichtete System zeichnet sich im besonderen durch eine spezielle Magneto-Kryostat-Technik aus, die es erlaubt ein Magnetfeld bis zu 5 T in Faraday-Geometrie anzulegen. Man kann hier also kurz von einem *Mikro-Magneto-PL-System* sprechen. Selbst die hohe intrinsische Ortsauflösung der Mikro-PL-Spektroskopie ist jedoch bisweilen ungenügend, wenn es darum geht Halbleiterobjekte mit Abmessungen kleiner als 100 nm, wie Quantenpunkte (siehe Kapitel 4) oder Lokalisationszentren (siehe Kapitel 6) individuell zu spektroskopieren. Es haben sich mittlerweile einige Methoden etabliert, die diese Subwellenlängen-Auflösung ermöglichen. Zu den erfolgreichsten Ansätzen zählt zweifellos die lithographische Definition einer Metallmaske mit Nanoaperturen auf der Halbleiteroberfläche. Diese Technik wurde im Zuge der Experimente in Kapitel 4 und 6 erfolgreich eingesetzt und soll hier ebenfalls näher behandelt werden.

3.1 Die Mikro-Magneto-PL-Spektroskopie

3.1.1 Der Messplatz-Aufbau

Abb. 3.1 stellt schematisch die Messanordnung für die Mikro-PL-Spektroskopie dar. Zur Anregung des Halbleiters wird ein Argon-Ionen-Laser verwendet, der sowohl Linien im sichtbaren (458 nm bis 529 nm) als auch im ultravioletten Spektralbereich (333 nm bis 364 nm) emittiert. Eine Linsenkombination bestehend aus einer Zerstreuungs- und Sammellinse sorgt für einen aufgeweiteten parallelen Laserstrahl, dessen Durchmesser mittels einer Lochblende der Apertur des Mikroskopobjektivs angepasst wird. Der Laserstrahl wird schließlich mit Hilfe einiger Spiegel bzw. Strahlteiler zum Mikroskopobjektiv geführt und von diesem auf die Halbleiterprobe fokussiert. Das Mikroskopobjektiv ist herstellerseitig spezifiziert mit einer 50x-Vergrößerung, einer numerischen Apertur von $N.A.=0.6$ und einem Arbeitsabstand von 5 mm. Zudem ist es unendlich-korrigiert, d.h. optische Elemente die im rückwärtigen Raum in den Strahlengang eingefügt werden, führen keine Abbildungsfehler ein. Die Halbleiterprobe befindet sich in einem optisch zugänglichen Kryostaten und kann somit auf Temperaturen bis hinab zu 3.5 K abgekühlt werden. Das von der Probe isotrop emittierte Lumineszenzlicht wird wiederum vom Mikroskopobjektiv eingesammelt und kollimiert. Ein weiterer Strahlteiler lenkt den Lumineszenzstrahl zu einem Raumfil-

ter. Dieser besteht aus einer Linse, die ein reelles Zwischenbild erzeugt, einer Lochblende, die einen räumlichen Ausschnitt dieses Bildes selektiert, und einer zweiten Linse, die das Lumineszenzlicht wiederum kollimiert. Durch diese Filterung ist es also möglich die Position und Größe der Detektionsfläche auf der Probe unabhängig von der Anregungsfläche zu wählen. Bei Verwendung einer $30\mu\text{m}$ -Lochblende ergibt sich beispielsweise eine Detektionsfläche mit einem Durchmesser von $2\mu\text{m}$. Da der Laserfokus selbst deutlich kleiner ist, bestimmt allein dieser die Ortsauflösung des Experiments. Die Lumineszenz wird schließlich nach dem Raumfilter durch eine Sammellinse auf den Eintrittsspalt eines Monochromators fokussiert. Dort wird das Licht spektral zerlegt und mit einer LN_2 ¹-gekühlten CCD²-Kamera (2048×512 Pixelarray) ausgewertet. Der TRIAX550-Monochromator besitzt eine Fokallänge von 0.55 m und ist bestückt mit zwei Reflexionsgittern mit 600 bzw. 1800 Linien/mm. Diese sind auf einem Karussell montiert, so dass ein automatischer Gitterwechsel jederzeit möglich ist. Die maximale spektrale Auflösung beträgt 30 pm, entsprechend einer energetischen Auflösung von z.B. $90\mu\text{eV}$ bei einer Energie von 2.0 eV. Um die Position des Lasers auf der Probenoberfläche optisch überwachen zu können, wird die Probe mittels einer Halogenlampe ausgeleuchtet und mit einer Tubuslinse hinter einem Strahlteiler ein vergrößertes Bild (50x) erzeugt. Dieses wird von einer CCD-Kamera aufgenommen und an einem Monitor sichtbar gemacht.

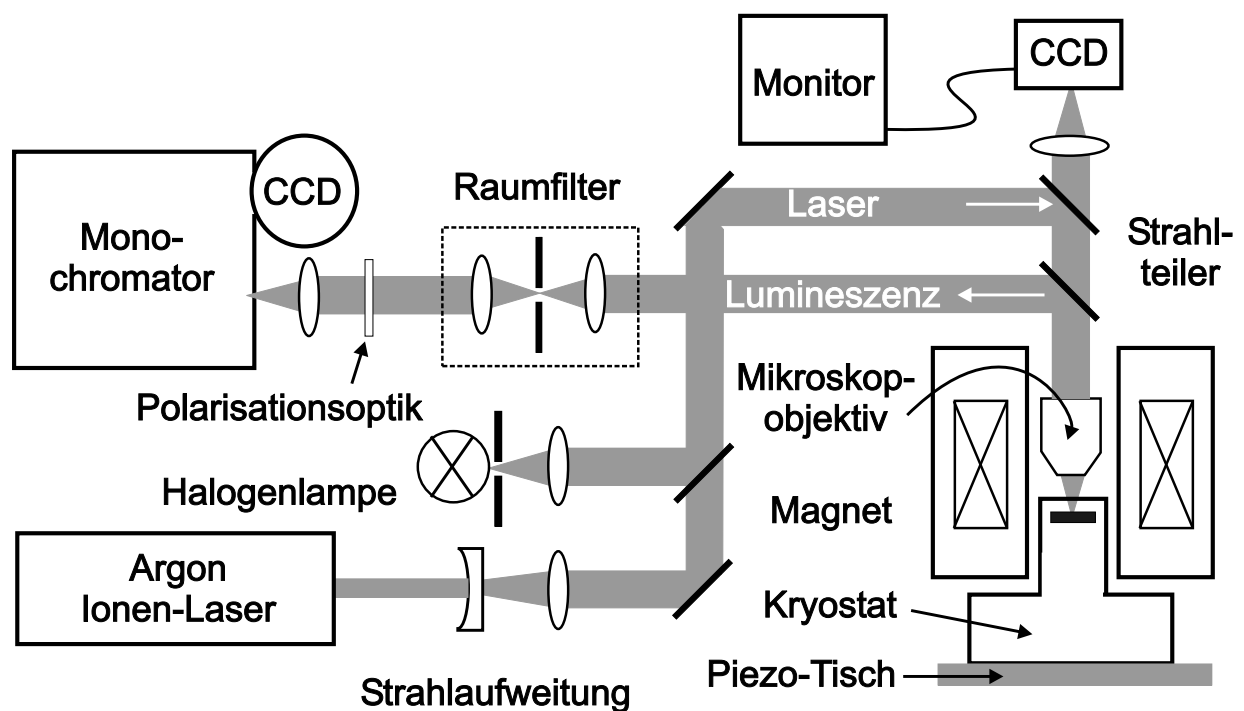


Abbildung 3.1: Der Messaufbau zur Mikro-Magneto-PL-Spektroskopie: Darstellung der optischen und kryostattechnischen Komponenten, sowie des Strahlenganges.

¹Liquid Nitrogen

²Charge Coupled Device

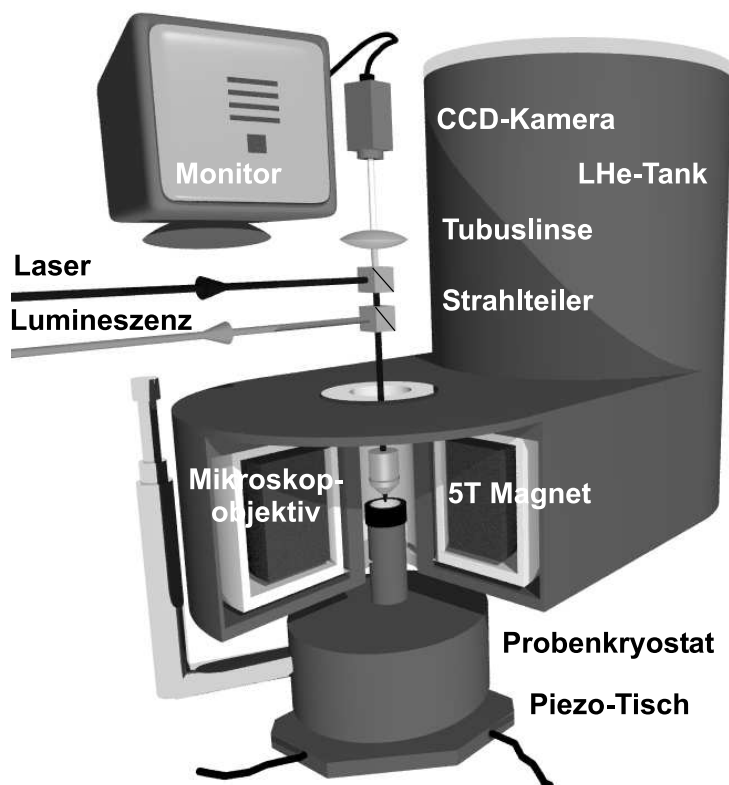


Abbildung 3.2: Darstellung des Kryostataufbaus bestehend aus Probenkryostat und Magnetkryostat. Gezeigt ist auch die Optik zur Einkopplung des Lasers, zur Auskopplung der Lumineszenz, und zur Abbildung der Probe am Monitor.

Das Herzstück des Aufbaus zur Mikro-PL-Spektroskopie bildet der Kryostataufbau (siehe Abb. 3.2), welcher sich aus zwei Komponenten zusammensetzt - dem Probenkryostat und dem Magnetkryostat. Bei ersterem handelt es sich um eine spezielle Variante eines He-Durchflusskryostaten. Durch diesen wird während der Messung permanent flüssiges Helium gepumpt und an dem Kühlfinger auf dem die Probe sitzt verdampft. Somit ist eine minimale Temperatur von 3.5 K erreichbar, wobei die Regelung eines Hezelements auch das Einstellen beliebiger Temperaturen bis 300 K erlaubt. Da der Kühlfinger dicht am Kryostatenfenster endet, ist ein sehr kleiner optischer Arbeitsabstand ($d \geq 3$ mm) realisierbar, der den Einsatz von kurzbrennweitigen Mikroskopobjektiven erst möglich macht. Die längliche Bauweise des Kühlfingers bietet hier die besondere Option, die Probe in einem starken Magnetfeld zu platzieren. Dazu wird der Kühlfinger in die Kernlochbohrung eines Magnetkryostaten eingefahren, welcher mit LHe^3 -gekühlten, supraleitenden Spulen ausgestattet ist. Diese können Magnetfelder von 0 bis 5 T in Faraday-Geometrie, also parallel zur optischen Achse, erzeugen. Der Probenkryostat ist auf einem piezogetriebenen Verstelltisch montiert, so dass der Laserfokus auf der Probenoberfläche mit einer minimalen Schrittweite von 100 nm positioniert werden kann. Diese hohe Positioniergenauigkeit zusammen mit dem Submikrometerfokus des Lasers erlaubt eine hochortsaufgelöste PL-Rasterung der Probe.

³Liquid Helium

3.1.2 Charakterisierung der Ortsauflösung

Bestimmend für die erreichbare Ortsauflösung des Messaufbaus ist die Größe des Laserfokus. Beugungseffekte setzen hier eine physikalische Grenze, die jedoch schwer zu erreichen ist. Zur Charakterisierung der tatsächlichen Fokusgröße wurde eine lichtundurchlässige Metallmaske auf einer Quantenfilm-Struktur (InGaN/GaN) aufgebracht. Mittels Elektronenstrahlolithographie konnten hierbei quadratische Aperturen mit einer Kantenlänge von $100 \mu\text{m}$ definiert werden. Der UV-Laserfokus wurde nun in einer solchen Apertur positioniert und in 100nm -Schritten über eine Metallkante gefahren, wobei jeweils die PL-Intensität des Quantenfilms ausgewertet wurde. Abb. 3.3 zeigt das Ergebnis eines solchen ortsaufgelösten "Scans". Aufgrund des endlichen Laserfokus findet man eine rapide, doch kontinuierliche Abnahme der PL-Intensität an der Metallkante auf einer Längenskala im Bereich von $1 \mu\text{m}$. Die Modellierung der ortsabhängigen PL-Intensität I^{PL} gelingt mit einer Faltungsoperation:

$$I^{PL}(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} I^{Laser}(x) \cdot (1 - \Theta(x - x_0)) dx \quad (3.1)$$

I^{Laser} entspricht dem Intensitätsprofil des Laserfokus, und $(1 - \Theta(x - x_0))$ stellt eine Stufenfunktion dar, welche die Transmission der Metallmaske wiedergibt. Nimmt man für das Laserprofil eine Gaussglocke mit einer Halbwertsbreite von $0.6 \mu\text{m}$ an und berechnet das Faltungsintegral nach Gl. 3.1, so gelangt man zu einer guten Übereinstimmung mit dem tatsächlichen PL-Intensitätsverlauf (siehe Abb. 3.3).

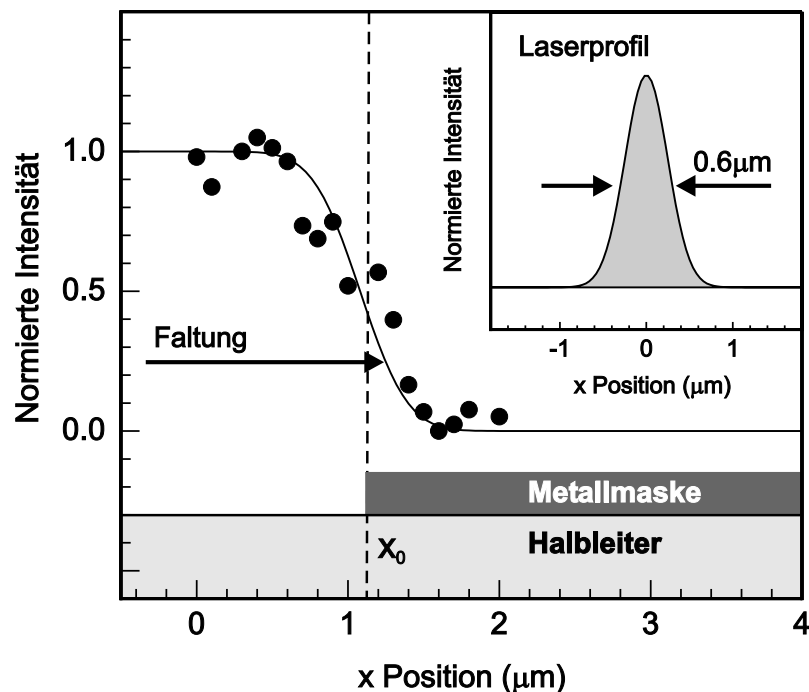


Abbildung 3.3: PL-Intensität eines Quantenfilms an der Kante einer lichtundurchlässigen Metallmaske in Abhängigkeit der Fokusposition: Experiment (Punkte) und Rechnung (Linie) nach Gl. 3.1. Bild-einsatz: Laserprofil mit Halbwertsbreite ($FWHM$) von $0.6 \mu\text{m}$

Die beugungsbegrenzte Halbwertsbreite des UV-Laserfokus ($\lambda=364$ nm) lässt sich demgegenüber mit $FWHM^4=0.52 \cdot \lambda/NA \approx 0.3 \mu\text{m}$ angeben. Tatsächlich stellt der ermittelte Wert von $0.6 \mu\text{m}$ eine obere Grenze dar, da die laterale Diffusion der Ladungsträger vor der Rekombination zu einer Vergrößerung der Lumineszenzzone gegenüber dem Laserfokus führt. Die Halbwertsbreite des UV-Laserfokus kann demnach eingegrenzt werden mit $0.3 \mu\text{m} \leq FWHM \leq 0.6 \mu\text{m}$. Da das Mikroskopobjektiv für das sichtbare Spektrum korrigiert ist, kann man bei Verwendung sichtbarer Laserlinien einen Laserfokus erwarten, der sogar näher an der Beugungsgrenze liegt.

3.1.3 Polarisationsaufgelöste PL-Detektion

Häufig erfordert die PL-Spektroskopie im Magnetfeld eine polarisationsaufgelöste Detektion. So führt z.B. der Zeemaneffekt zu einer energetischen Aufspaltung der Spinzustände und damit zur Emission zirkularpolarisierten Lichts. Diesbezüglich birgt der geschilderte Messaufbau allerdings eine Schwierigkeit. So ist es aufgrund der Kryostatkonfiguration nötig, die Lumineszenz über Reflexion an einem Strahlteiler in Richtung Monochromator zu lenken. Die Reflexion von Licht ist jedoch nur in Spezialfällen polarisationserhaltend. So ist der im Aufbau verwendete 50:50-Strahlteiler der Fa. Newport (Produkt-Nr. 10BC17MB.1) zwar als "polarisationserhaltend" spezifiziert, was sich allerdings nur auf die lineare Polarisation parallel zur Einfallsebene (p-Polarisation) und senkrecht dazu (s-Polarisation) bezieht. Das nachfolgende Experiment sollte nun die Polarisation des reflektierten Lichts bei einfallender zirkularer Polarisation klären. Dazu wurde der Laserstrahl ($\lambda=488$ nm) mittels Linearpolarisator und $\lambda/4$ -Plättchen links- bzw. rechtszirkular polarisiert und am Strahlteiler reflektiert. Die Intensität des reflektierten Lichts wurde, wie in Abb. 3.4 gezeigt, hinter einem Linearpolarisator gemessen, dessen Achse in 10° -Schritten gedreht wurde.

Das Ergebnis dieser Messung ist in Abb. 3.4 in einer Polarauftragung der Intensität dargestellt. Für den Fall der Erhaltung der zirkularen Polarisation wäre eine gleichbleibende, d.h. vom Drehwinkel unabhängige Intensität zu erwarten. Es zeigt sich jedoch bei einfallender σ^+ -Polarisation ein Intensitätsmaximum unter einem Winkel von ca. 45° und ein Minimum unter ca. 135° . Bei einfallender σ^- -Polarisation kehren sich diese Verhältnisse dagegen um. Dies bedeutet, dass das reflektierte Licht stark elliptisch polarisiert ist, wobei die Hauptpolarisationsachsen für eine einfallende σ^+ - bzw. σ^- -Polarisation, jeweils um 90° gegeneinander verdreht sind. Zu erklären ist dieses Polarisationsverhalten des Strahlteilers durch einen Phasensprung in der Nähe von $\pi/2$ zwischen dem s- und p-Linearpolarisationsanteil des reflektierten Lichts. Der Strahlteiler wirkt demnach in der Reflexion wie ein $\lambda/4$ -Plättchen. Zur Detektion der σ^+ - bzw. σ^- -Lumineszenz muss also lediglich ein Linearpolarisator unter einem Drehwinkel von 45° bzw. 135° verwendet werden. Das Auslöschungsverhältnis liegt hier bei ca. 1:12 (siehe Abb. 3.4). Weitere Tests bei anderen Wellenlängen machten deutlich, dass diese Methode zumindest im Bereich von 450 bis 500 nm zur polarisationsaufgelösten PL-Detektion eingesetzt werden kann.

⁴Full Width at Half Maximum

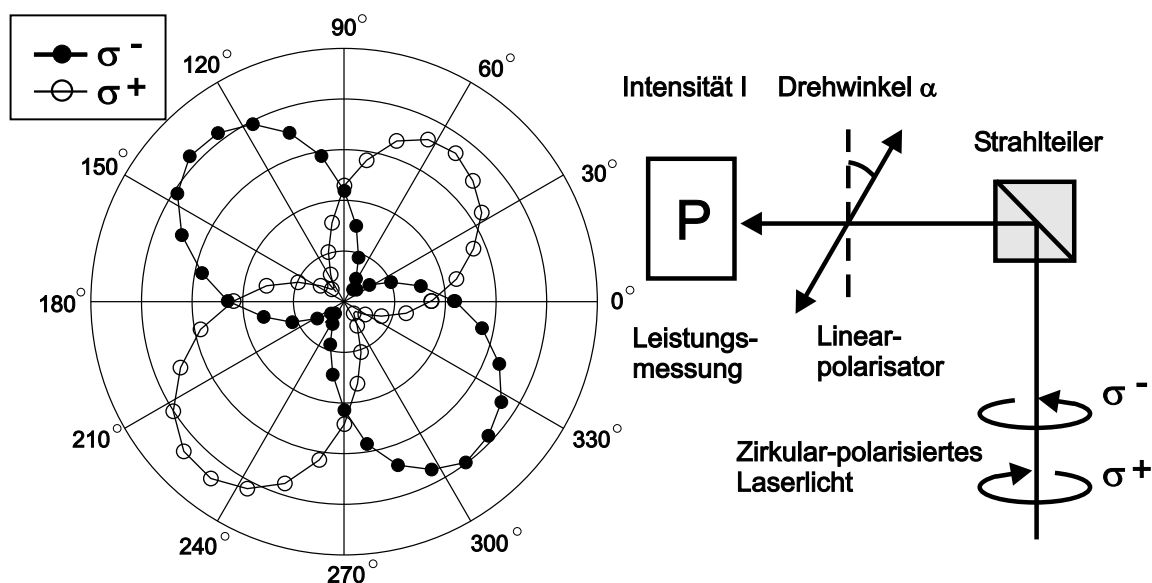


Abbildung 3.4: rechts: Experimentelles Schema zur Charakterisierung der Reflexion von zirkular-polarisiertem Licht. links: Intensität in Abhängigkeit des Polarisator-Drehwinkels für einfallende σ^+ -Polarisation (Kreise) und σ^- -Polarisation (Punkte).

3.2 Von der Mikro- zur Nano-PL-Spektroskopie

Nachdem sich gerade die Quantenpunktsysteme in den letzten Jahren zunehmend zu einem Schwerpunkt der Halbleiterforschung entwickelt haben, wurde es notwendig neue experimentelle Zugänge zu finden. Die herkömmliche Makro-PL-Spektroskopie ist, bedingt durch die begrenzte Ortsauflösung, lediglich in der Lage ein großes Ensemble von Quantenpunkten zu adressieren. Im Gegensatz zu "natürlichen" Atomen, die in einem Ensemble identisch vorliegen, weisen typische Quantenpunkt-Ensembles allerdings eine ausgeprägte strukturelle und energetische Dispersion auf. Damit geht eine inhomogene Verbreiterung des PL-Signals einher. Diese verdeckt jedoch eine Vielzahl physikalisch relevanter Effekte im Quantenpunkt, da deren Energieskalen deutlich kleiner sind als die energetische Breite des PL-Signals. Den Ausweg aus diesem Dilemma bildet die *Einzel-Quantenpunkt-Spektroskopie*.

Die Kernanforderung an eine solche Methode ist eine Ortsauflösung, die zumindest vergleichbar mit dem mittleren Abstand zwischen benachbarten Quantenpunkten ist. Angesichts typischer Quantenpunktdichten von 10^9 bis 10^{11} cm^{-2} müsste demnach eine Ortsauflösung von 30-300 nm realisiert werden. Dies ist selbst mit der Mikro-PL-Spektroskopie nicht darstellbar. Nichtsdestoweniger haben sich mittlerweile einige Techniken etabliert, mit denen es gelingt die Beugungsgrenze der fernfeldoptischen Methoden zu unterschreiten. Bei der Nahfeld-Mikroskopie (SNOM: Scanning Near Field Optical Microscopy) [Hes94] wird das Laserlicht über eine Glasfaser Spitze in den Halbleiter eingekoppelt. Da die Apertur der Glasfaser an der Spitze deutlich kleiner ist als die Laserwellenlänge breitet sich hier

das Licht als evaneszente Welle aus und unterliegt damit nicht der Beugung. Verwendet man Elektronen statt Photonen zur Anregung des Halbleiters, so lässt sich aufgrund der kleineren de-Broglie-Wellenlänge ebenfalls eine sehr geringe Anregungsfläche erzielen. Die Ortsauflösung der sogenannten Kathodo-Lumineszenz (CL: Cathodoluminescence) [Gru95] ist dann nur durch die laterale Streuung der Elektronen im Halbleiter (einige 10 nm bis wenige 100 nm) begrenzt. Sowohl SNOM als auch CL ermöglichen die Rasterung des Halbleiters und damit die Aufnahme eines zweidimensionalen PL-Bildes. Es zeigen sich jedoch gravierende Schwächen sobald es um eine eingehende spektrale Analyse einzelner Quantenpunkte geht. So ist es kaum machbar, einen einmal ausgewählten Quantenpunkt wiederholt mit reproduzierbaren Anregungsbedingungen zu vermessen.

Als effektive Alternativen haben sich hier Methoden erwiesen, die konzeptionell ganz anders ansetzen, indem die Ortsauflösung nicht instrumentseitig sondern probenseitig erhöht wird. Dabei wird mit Mitteln der Elektronenstrahlolithographie eine definierte Selektion einzelner Quantenpunkte vorgenommen. So kann man unter Aussparung nanoskaliger Zonen ätztechnisch die quantenpunkttragende Schicht entfernen, so dass sogenannte *Mesen* als Träger nur weniger Quantenpunkte übrigbleiben [Mar94]. Bei hinreichend großem Abstand zwischen den Mesen können diese nun einzeln spektroskopiert werden. Eine weitere lithographieorientierte Methode bildet die *Nanoaperturtechnik* [Gam96a]. Hier wird eine lichtundurchlässige Metallmaske auf die Halbleiteroberfläche aufgebracht, welche jedoch unterbrochen wird durch nanostrukturierte Fenster. Führt man jetzt die PL-Anregung und Detektion an einer solchen Nanoapertur aus, so tragen wiederum nur sehr wenige Quantenpunkte direkt unterhalb der Apertur zum Signal bei. Die Mesen- und Aperturtechnik [Kum98, Bac01] sind tatsächlich hervorragend geeignet zur spektralen Analyse einzelner Quantenpunkte. Diese sind nicht nur wiederholt adressierbar sondern es bietet sich auch die wesentliche Option externe Parameter wie Temperatur, Magnetfeld oder elektrisches Feld zu verändern ohne die Messanordnung zu stören. Sämtliche nanospektroskopischen Untersuchungen in dieser Arbeit wurden mittels der Nanoaperturtechnik durchgeführt. Nachfolgend sollen daher die lithographische Herstellung und der spektroskopische Einsatz im Detail erläutert werden.

3.2.1 Die Nanoaperturtechnik

Die Definition einer Metallmaske mit nanostrukturierten Aperturen auf der Halbleiteroberfläche stellt einen universellen Zugang zu Einzel-Quantenpunkten dar. Diese Methode kann beispielsweise auch dort eingesetzt werden, wo die Mesen-Methode aufgrund schlechter Ätzbarkeit des Materials versagt.

Die lithographische Herstellung (siehe Abb. 3.5) beginnt mit dem Aufschleudern und Ausbacken eines elektronenstrahlempfindlichen Negativ-Lacks (AR-N7700.18) mit einer Dicke von 300 nm. Anschließend wird mittels eines fokussierten Elektronenstrahls das Nanoapertur-Muster in den Lack geschrieben. Ein weiterer Ausbackschritt führt zur Aushärtung des Lacks, gefolgt von der Entwicklung in einer Lösung von AR-300-47. Somit bleibt der Lack alleine an den belichteten Stellen stehen. Als nächstes wird Aluminium mit

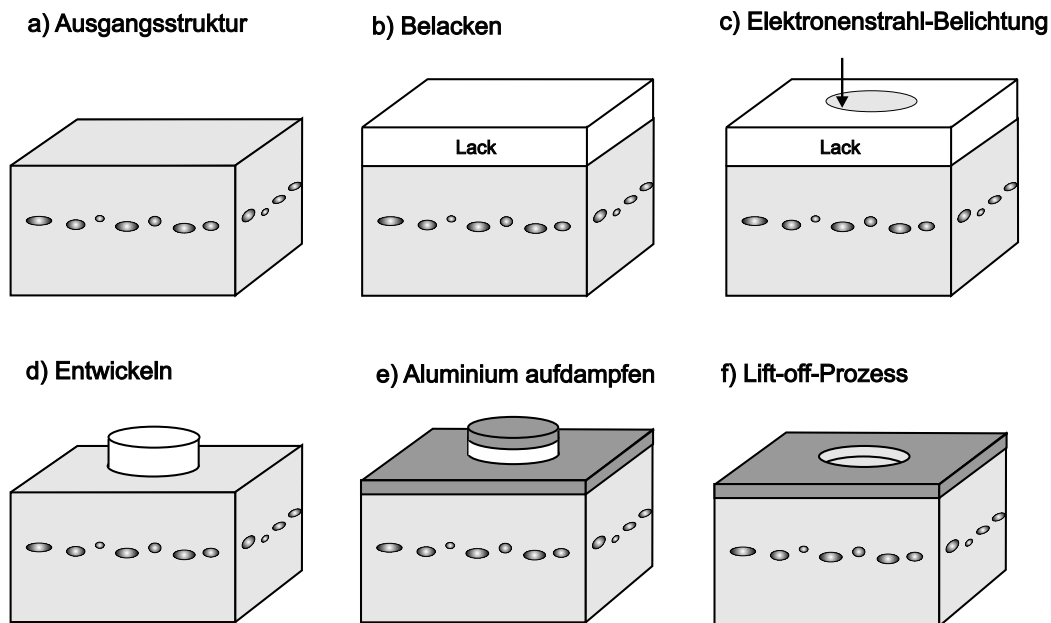


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung der Prozessschritte zur Herstellung einer Nanoaperturmaske am Beispiel einer Quantenpunktstruktur.

einer Schichtdicke von 100 nm aufgedampft. Abschließend wird in einem Ultraschallbad mit 1-Methyl-2-Pyrrolidon der Lift-off-Prozess eingeleitet, der den verbliebenen Lack samt darüberliegendem Metall entfernt. Die Aperturen haben Durchmesser von 80 nm bis 100 μm und liegen regelmäßig verteilt auf einem Raster mit konstantem Abstand. Dieser ist deutlich größer als der Laserfokus gewählt, so dass jede Apertur einzeln spektroskopiert werden kann.

In Abb. 3.6 ist die spektroskopische Anwendung der Nanoaperturtechnik exemplarisch dargestellt für selbstorganisierte CdSe/ZnSe-Quantenpunkte. Der Laserfokus wird auf einer ausgewählten Apertur positioniert und die Lumineszenz der unterhalb der Apertur angeregten Quantenpunkte eingesammelt. Im Falle einer großen Apertur mit einem Durchmesser ϕ von 25 μm ergibt sich ein inhomogen verbreitertes PL Signal mit einer Halbwertsbreite von 66 meV. Ursächlich für diese PL-Charakteristik ist der spektrale Überlapp einer Vielzahl von einzelnen Quantenpunkten, deren Emissionsenergien sich bedingt durch Größen- und Kompositionsfluktuationen stark unterscheiden. Bei einer Aperturgröße von 500 nm dagegen beobachtet man eine Zersplitterung der Lumineszenz in einzelne, spektral scharfe Emissionslinien. Diese Linien entsprechen exzitonischen Übergängen in einzelnen Quantenpunkten, deren δ -förmige Zustandsdichte hiermit tatsächlich greifbar wird. Eine weitere Reduktion der Quantenpunkt-Anzahl bei einer Aperturgröße von 200 nm führt schließlich zu einzelnen, spektral freistehenden Quantenpunkt-Emissionslinien, die nun detailliert untersucht werden können. Besonders interessant sind also sehr kleine Aperturen, da in diesem Fall die Quantenpunktanzahl am geringsten ist und die Zuordnung der Linien leichter

fällt. Allerdings nimmt die Transmission T der Lumineszenz durch die Apertur mit dem Durchmesser ϕ sehr schnell ab. Während für große Aperturen ($\phi \gg \lambda$) die Transmission noch mit $T \propto \phi^2$ skaliert, so gilt nach H.A. Bethe [Bet44] im Grenzfall $\phi \ll \lambda$: $T \propto \phi^6/\lambda^4$. Bei der Wahl der Aperturgröße ist es also bisweilen notwendig, einen Kompromiss zwischen der Ortsauflösung und der Signalstärke zu suchen.

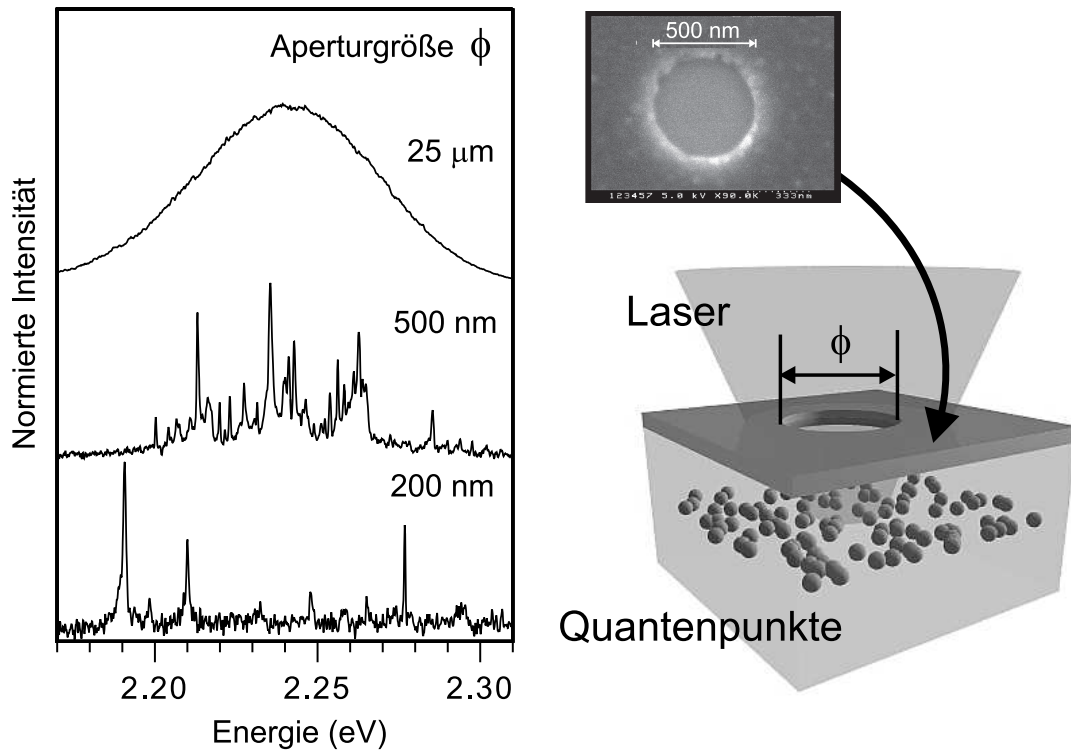


Abbildung 3.6: rechts: Schematische Darstellung der PL-Anregung an einer Nanoapertur (unten) und eine elektronenmikroskopische Aufnahme einer Apertur (oben). links: PL-Spektren selbstorganisierter CdSe/ZnSe-Quantenpunkte, gemessen an Aperturen verschiedener Durchmesser.

Kapitel 4

Semimagnetische Quantenpunkte

Die ultimative Grenze der Halbleiter-Miniaturisierung bildet zweifellos der Quantenpunkt. Diese "künstlichen Atome", wie sie auch genannt werden, bieten grundlegend neue elektronische und optische Charakteristika im Vergleich zum Volumenhalbleiter. So kommt es z.B. zum totalen Verlust der Banddispersion und der Ausbildung diskreter elektronischer Zustände im Quantenpunkt. Deren Aufklärung wurde zu einem Schwerpunkt der jüngsten Halbleiterforschung. Gerade mittels der Einzelpunkt-Spektroskopie konnten hier erstaunliche Einsichten gewonnen werden. So zeigte sich, dass Mehrteilchenzustände (z.B. Exziton, Biexziton) in Quantenpunkten aufgrund der stark lokalisierten Wellenfunktionen hohe Bindungsenergien besitzen [Bac99, Kul99a], also besonders stabil sind, und lange Dekohärenzzeiten [Bir01, Bay02] aufweisen. Dies motivierte einige theoretische und experimentelle Arbeiten mit dem Ziel, solche Zustände in einzelnen oder auch gekoppelten Quantenpunkten zum Aufbau eines logischen Quantengatters zu nutzen [Bio00, Bay01, Li03]. Die Adressierung eines derartigen Quantengatters könnte dabei eleganterweise mittels kohärenter optischer Laserpulse auf ultrakurzen Zeitskalen gelingen. Eine besonders vielversprechende Variante zur Implementierung eines elementaren Qubits¹ stellt, aufgrund besonders langer Kohärenzzeiten [Kik98], der Spin eines Teilchens im Quantenpunkt dar [Los98]. Um nun eine Spininformation aufzuprägen, zu verarbeiten und wieder auszulesen kann man sich hier die Spin-Spin-Wechselwirkung mehrerer Teilchen zunutze machen. So schlugen Loss *et al.* einerseits ferromagnetische Quantenpunkte als Hilfsmittel zur Durchführung von Einzelspin-Operationen vor, während andererseits paramagnetische Quantenpunkte zum Auslesen und Verstärken des spincodierten Resultats der Rechenoperation Einsatz finden könnten. Aus diesem Grund rücken Quantenpunkte dotiert mit spintragenden d.h. magnetischen Ionen mehr und mehr ins Zentrum des Interesses.

Solche semimagnetischen oder auch DMS²-Halbleiter [Fur88] sind in Form höherdimensionaler Strukturen bereits seit vielen Jahren bekannt. Zumeist handelt es sich hierbei um II-VI-Halbleiter, wobei Mangan-Ionen mit einem Spin von $S=5/2$ substitutionell in das Kation-Untergitter eingebaut sind. Eine sehr ausgeprägte Spin-Spin-Wechselwirkung zwi-

¹Quantum bit

²Diluted Magnetic Semiconductor

schen den freien Ladungsträgern und den magnetischen Mn^{2+} -Spins verursacht in diesen Halbleiterlegierungen eine intensive Kopplung von magnetischen und optischen Eigenschaften, die sich z.B. in riesigen Zeeman- oder Faradayeffekten niederschlägt.

Geht man nun von einem höherdimensionalen DMS zu einem semimagnetischen Quantenpunkt über, so erwartet man zunächst aufgrund der komprimierten Ladungsträger-Wellenfunktion eine weitaus stärkere Wechselwirkung mit den einzelnen magnetischen Spins [Bha98]. Der Quantenpunkt bedingt darüberhinaus aber einen wohldefinierten Zustand des Ladungsträgers, der mittels Einzelpunkt-Spektroskopie individuell optisch abgetastet werden kann. Dies eröffnet tatsächlich die Möglichkeit, die Wechselwirkung des im Quantenpunkt eingefangenen Teilchens mit wenigen magnetischen Spins zu untersuchen. Semimagnetische Quantenpunkte sind jedoch nicht nur ein interessantes Modellsystem zum Studium von Spin-Spin-Wechselwirkungen sondern auch Kern von konkreten Bauteil-Konzepten wie z.B. Raumtemperatur-Spinfiltern [Efr01].

Das nachfolgende Kapitel wird zunächst eine kurze Einführung geben in die Physik der semimagnetischen Halbleiter. Anschließend werden selbstorganisierte semimagnetische Einzelquantenpunkte auf der Basis von CdSe/ZnMnSe thematisiert. Den Schwerpunkt bildet hier die Verwendung des Quantenpunkt-Exzitons als Sonde, um die Mn-Magnetisierung in unmittelbarer Quantenpunktnähe zu charakterisieren. Es zeigt sich interessanterweise, dass die Magnetisierung auf einer Nanometer-Skala nicht nur qualitativ sondern auch quantitativ erschlossen werden kann. So konnten die Bildung magnetischer Polaronen, die Magnetisierung im externen Magnetfeld, die thermische Fluktuationen der Mn^{2+} -Spins sowie optische Entmagnetisierungseffekte detailliert untersucht werden.

4.1 Semimagnetische Halbleiter

Zur Familie der semimagnetischen Halbleiter zählen sowohl III-V (z.B. GaAs, InAs) als auch II-VI-Verbindungen (z.B. CdTe, ZnSe), bei denen eine partielle Substitution des Kation-Elementes durch Übergangsmetalle wie Fe, Gd oder Mn vorgenommen wurde. Diese Dotierionen besitzen aufgrund mehrerer ungepaarter Elektronen in der d-Schale, die nach der Hund'schen Regel parallel orientiert sind, einen großen Gesamtspin gleichbedeutend mit einem großen magnetischen Moment. Der Halbleiter ist somit mit einem System lokalisierter Spins ausgestattet, welche die Magnetisierung bestimmen. Dieses magnetische System ist jedoch nicht unabhängig vom System der freien Ladungsträger, sondern über eine intensive Spin-Spin-Wechselwirkung mit ihm gekoppelt. So konnte z.B. gezeigt werden, dass durch Variation der Löcherkonzentration im Halbleiter ein Übergang von der paramagnetischen in die ferromagnetische Phase induziert werden kann [Hau97]. Dies ermöglichte unter anderem eine elektrische Kontrolle der magnetischen Phase [Chi03]. Andererseits aber, hat eine Änderung der Magnetisierung einen deutlichen Einfluss auf die Energie und die Orientierung der Ladungsträger-Spins. Dies konnte beispielsweise genutzt werden um Elektronen in einem "Spinaligner" eine definierte Spinausrichtung aufzuprägen

[Fie99, Oes99, Ohn99].

Da die in dieser Arbeit behandelten semimagnetischen Quantenpunkte auf CdSe/ZnMnSe-Heterostrukturen basieren, sollen im folgenden die elektronischen, optischen und magnetischen Eigenschaften der Mn^{2+} -Spins sowie die Kopplungseffekte zwischen Exzitonen und Mn^{2+} -Spins für $A_{1-x}^{II}Mn_xB^{VI}$ -Legierungen diskutiert werden.

4.1.1 Das Mangan-Spin-System

Elektronische und optische Eigenschaften

Wird in einem $A^{II}B^{VI}$ -Kristall das Gruppe-II-Element teilweise durch Mn^{2+} -Ionen ersetzt, so geschieht das isoelektronisch, d.h. die s- und p-Orbitale des Mangans tragen in gleicher Weise zur Kristallbindung bei wie das A-Element. Es kommt also zu keinerlei Dotiereffekten. Die Besonderheit des Mangans liegt nun in einer halbgefüllten 3d-Schale. Nach der Hund'schen Regel bedeutet dies einen maximalen Gesamtspin von $S=5/2$ und zugleich einen verschwindenden Bahndrehmoment von $L=0$. Dieser Grundzustand wird nach spektroskopischer Notation mit ${}^6S_{5/2}$ bezeichnet. Wird der Spin eines d-Elektrons umgeklappt, so liegen die ersten angeregten Zustände als Multiplett ${}^4G_{3/2}$ vor. Zwar sind Übergänge zwischen dem Grundzustand und den angeregten Zuständen für freie Mn^{2+} -Ionen nach der $\Delta S=0$ -Auswahlregel eigentlich verboten. Dennoch führt die Störung durch das Kristallfeld zu deren Aktivierung. Je nach Wirtskristall findet man also einen internen Manganübergang bei 2.1-2.2 eV, der sich häufig als gelbliche Lumineszenz bemerkbar macht. Die Anregung dieses Übergangs kann sehr effektiv durch einen Augerprozess geschehen, wobei Elektronen im Leitungsband nichtstrahlend rekombinieren und ihre Energie an die Mn-d-Schale abgeben. So erweist sich das Mangan bisweilen als Ursache für eine reduzierte Bandkantenlumineszenz in $A_{1-x}^{II}Mn_xB^{VI}$ -Legierungen.

Magnetische Eigenschaften

Da beim Mn^{2+} -Ion ein reiner Spinmagnetismus ($S=5/2$, $L=0$) vorliegt, wird dessen Kopplung an ein Magnetfeld durch den Spin-g-Faktor $g_{Mn}=2$ beschrieben. Damit lässt sich der Hamiltonoperator für ein Ensemble von Mn^{2+} -Spins \vec{S}_i in folgender Form notieren:

$$H_z = -g_{Mn} \mu_B \sum_i \vec{S}_i \cdot \vec{B} \quad (4.1)$$

Mit einer thermodynamischen Mittelung der Mn^{2+} -Spin-Komponente parallel zur Magnetfeldrichtung gelangt man schließlich zu dem bekannten Ausdruck für die Magnetisierung eines ideal-paramagnetischen Systems [Ash76]:

$$M(B, T) = M_0 B_{5/2} \left(\frac{S g_{Mn} \mu_B B}{k_B T} \right) \quad (4.2)$$

$$M_0 = N_0 x g_{Mn} \mu_B S \quad (4.3)$$

$$B_S(q) = \frac{2S+1}{2S} \coth\left(\frac{2S+1}{2S} q\right) - \frac{1}{2S} \coth\left(\frac{1}{2S} q\right) \quad (4.4)$$

N_0	Zahl der Elementarzellen pro Einheitsvolumen
x	Mangankonzentration
g_{Mn}	g-Faktor des Mangans
S	Mn ²⁺ -Spin
B_S	Brillouinfunktion für Spin S

Die Beschreibung der Magnetisierung mit Hilfe der obigen Brillouinfunktion ist nur für nichtwechselwirkende Spins streng gültig. Sie erweist sich tatsächlich als adäquate Näherung für sehr geringe Mn-Konzentrationen ($x < 0.01$). Liegen höhere Mn-Gehalte vor, so macht sich eine antiferromagnetische Kopplung zwischen benachbarten Mn²⁺-Spins bemerkbar. Ursächlich hierfür ist ein Superaustausch-Mechanismus vermittelt durch die Orbitale dazwischenliegender Anionen [Fur88]. Der Hamiltonoperator der sogenannten d-d-Austauschwechselwirkung hat die Gestalt:

$$H_{ij}^{dd} = - \sum_{i,j} J_{i,j} (\vec{R}_i - \vec{R}_j) \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (4.5)$$

Hierbei entspricht $S_{i,j}$ den lokalisierten Mn²⁺-Spins und $J_{i,j}$ dem d-d-Austauschintegral. Die d-d-Kopplungsenergie überwiegt deutlich die Dipol-Dipol-Wechselwirkung und favorisiert eine antiparallele Orientierung benachbarter Spins. So kann es zur Bildung von Clustern³ kommen bestehend aus zwei oder mehr Mn²⁺-Spins mit einem geringen bis verschwindenden Gesamt-Spin. Im Rahmen des *modifizierten Brillouin-Formalismus* kann dies berücksichtigt werden, indem anstatt des Mn²⁺-Spins $S=5/2$ ein effektiver Spin $S_0 < S$ zur Berechnung der Sättigungsmagnetisierung M_0 eingeführt wird. Alternativ spricht man häufig auch von einer reduzierten effektiven Mn-Konzentration $x_{eff} = x \cdot S_0/S$. Zur Erfassung der langreichweitigen Anteile der d-d-Kopplung wird mit der Temperatur T_0 schließlich von einem weiteren phänomenologischen Parameter Gebrauch gemacht. Dieser simuliert eine erhöhte Spintemperatur. Die Magnetisierung semimagnetischer Halbleiter kann somit auch für höhere Mn-Gehalte modelliert werden:

$$M(B, T) = M_0 B_{5/2} \left(\frac{S g_{Mn} \mu_B B}{k_B (T + T_0)} \right) \quad (4.6)$$

$$M_0 = N_0 x g_{Mn} \mu_B S_0 \quad (4.7)$$

4.1.2 Die Mangan-Exziton-Kopplung

Wesentlich für das Verständnis der elektronischen Eigenschaften semimagnetischer Halbleiter ist deren Abhängigkeit von der Magnetisierung des Kristalls. Sowohl die s-artigen

³Verbund von antiferromagnetisch koppelnden Mn²⁺-Spins

Elektronen im Leitungsband als auch die p-artigen Löcher im Valenzband wechselwirken nämlich mit den d-Orbitalen der lokalisierten Mn^{2+} -Spins über die sp-d-Austausch-Wechselwirkung. Dabei handelt es sich um eine Spin-Spin-Kopplung, die in der Heisenberg-Form geschrieben werden kann [Fur88]:

$$H_{exc} = - \sum_{\vec{R}_i} J^{sp-d} (\vec{r} - \vec{R}_i) \vec{S}_i \cdot \vec{s} \quad (4.8)$$

J^{sp-d} repräsentiert hierbei das sp-d-Austauschintegral, S_i entspricht dem i-ten Mn^{2+} -Spin am Ort \vec{R}_i und \vec{s} meint den Spin des Elektrons am Ort \vec{r} . Die Summation schließt das Ensemble aller Mn^{2+} -Spins ein, die sich innerhalb der räumlich stark ausgedehnten Elektron-Wellenfunktion befinden. Die Größe des eingeschlossenen Mn^{2+} -Ensembles rechtfertigt an dieser Stelle eine Vereinfachung in Gestalt einer thermodynamischen Mittelung der Mn^{2+} -Spins. Legt man im Rahmen einer solchen Molekularfeldnäherung die Richtung des Magnetfeldes ohne Beschränkung der Allgemeinheit mit der z-Achse fest, so lautet der vereinfachte Hamilton-Operator:

$$H_{exc} = -s_z \langle S_z \rangle x \sum_{\vec{R}_k} J^{sp-d} (\vec{r} - \vec{R}_k) \quad (4.9)$$

Die Summation läuft nun über sämtliche Kationenplätze \vec{R}_k , so dass der sp-d-Hamilton-Operator H_{exc} die volle Gitterperiodizität aufweist. Dies vereinfacht die Diagonalisierung, welche in Störungstheorie erster Ordnung folgende Energiekorrekturen für Leitungs(LB)- und Valenzband(VB) liefert [Gaj78]:

$$E_{exc}(LB) = N_0 x \alpha m_s \langle S_z \rangle \quad m_s = \pm \frac{1}{2} \quad (4.10)$$

$$E_{exc}(VB) = \frac{1}{3} N_0 x \beta m_j \langle S_z \rangle \quad m_j = \pm \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2} \quad (4.11)$$

α	LB-Austauschkonstante
β	VB-Austauschkonstante
m_s	magnetische Quantenzahl von LB-Zuständen
m_j	magnetische Quantenzahl von VB-Zuständen

Ersetzt man die gemittelte Spinprojektion $\langle S_z \rangle$ gemäß Gl. 4.6 durch die Magnetisierung, so lassen sich die Austauschenergien schreiben als:

$$E_{exc}(LB) = \frac{\alpha m_s}{\mu_B g_{Mn}} \cdot M(B, T) \quad (4.12)$$

$$E_{exc}(VB) = \frac{\beta m_j}{3 \mu_B g_{Mn}} \cdot M(B, T) \quad (4.13)$$

Die sp-d-Austauschwechselwirkung erzeugt also eine Aufspaltung zwischen den Spin-niveaus $m_s(m_j)$ in Leitungs- und Valenzband, wobei die Spinquantisierungsachse von der

	$N_0\alpha$ (meV)	$N_0\beta$ (meV)
CdMnTe [Gaj79]	220	-880
ZnMnSe [Twa84]	260	-1310

Tabelle 4.1: sp-d-Austauschkonstanten für CdMnTe und ZnMnSe.

Magnetisierungsrichtung festgelegt wird. Diese Aufspaltung verhält sich dabei proportional zur Magnetisierung des Mn^{2+} -Systems innerhalb der Elektron- bzw. Lochwellenfunktion. Die Magnetisierung wird durch ein Magnetfeld B verursacht, welches bedingt sein kann durch externe Felder und/oder interne Austauschfelder. Die Austauschkonstanten für das Leitungsband α und das Valenzband β sind materialspezifisch, weisen jedoch folgende Allgemeingültigkeiten auf [Fur88]: i) α ist positiv entsprechend einer ferromagnetischen Wechselwirkung, ii) β ist negativ, gleichbedeutend mit einer antiferromagnetischen Wechselwirkung, iii) α beträgt stets ein Vielfaches von β . Tabelle 4.1 zeigt exemplarisch die Austauschkonstanten von ZnMnSe und CdMnTe.

In Abb. 4.1 sind die Auswirkungen der sp-d-Austauschkopplung auf die Leitungs- und Valenzbandzustände im Zentrum der Brillouinzone eines DMS-Volumenhalbleiters dargestellt. Das Anlegen eines Magnetfeldes B führt hier zum Aufbau einer Magnetisierung M und damit gemäß Gl. 4.12 und 4.13 zu einer Aufspaltung der Spinzustände m_s und m_j . Für die dipolerlaubten Interbandübergänge (Auswahlregel: $\Delta m = 0, \pm 1$) bedeutet dies folgendes: Ist die Beobachtungsrichtung parallel zur Magnetfeldrichtung orientiert (Faraday-Geometrie), so treten ausschließlich Übergänge mit einer zirkularen Polarisation (σ^\pm) auf. Beobachtet man dagegen senkrecht zum Magnetfeld (Voigt-Geometrie), so sind prinzipiell nur Übergänge mit einer linearen Polarisation (π) sichtbar.

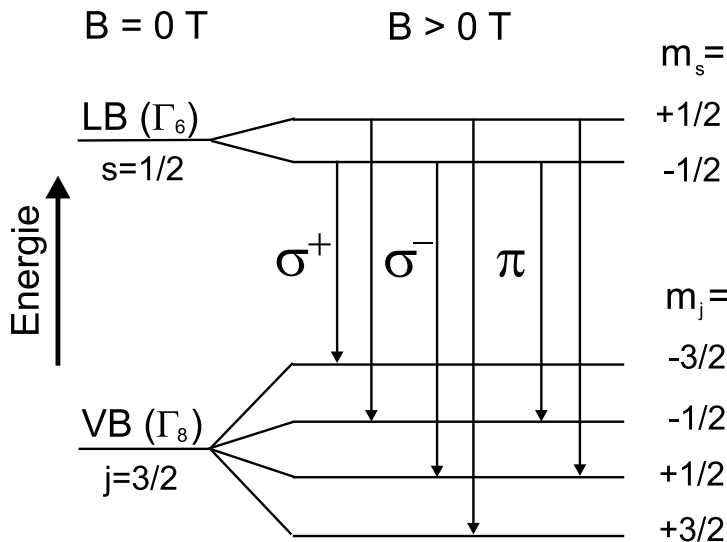


Abbildung 4.1: Skizze zur Auswirkung der sp-d-Austauschwechselwirkung auf die elektronischen Zustände und die optisch aktiven Interbandübergänge im Zentrum der Brillouinzone.

Fasst man Gl. 4.12 und 4.13 zusammen, so lässt sich der Einfluss der sp-d-Austauschkopplung auf die Energie der optisch aktiven Schwerloch-Exzitonen mit der Spinprojektion $m_J = m_s - m_j = \pm 1$ mit folgendem Ausdruck beschreiben:

$$E_{exc}^{m_J} = -m_J \cdot \frac{\alpha - \beta}{2 \cdot \mu_B g_{Mn}} \cdot M(B, T) \quad (4.14)$$

Der Anschaulichkeit wegen, kann man schließlich diverse Vorfaktoren durch ein Austauschfeld B_{exc} [Kav99] substituieren und erhält somit:

$$E_{exc}^{m_J} = -m_J \cdot B_{exc} \cdot V_X \cdot M(B, T) = -\vec{\mu}_X^{Mn} \cdot \vec{B}_{exc} \quad (4.15)$$

$$\vec{B}_{exc} = \frac{\alpha - \beta}{2 \cdot g_{Mn} \mu_B} \cdot \frac{1}{V_X} \cdot \vec{J} \quad (4.16)$$

Gl. 4.15 entspricht damit der Form nach einer magnetostatischen Energie des magnetischen Momentes der Mn^{2+} -Spins $\vec{\mu}_X^{Mn}$ innerhalb des Exzitonvolumens V_X . Da das Austauschfeld B_{exc} zwar vom Exzitonvolumen aber nicht von Grössen des Mn-Spinsystems abhängt (siehe Gl. 4.16), kann man hier das Exziton formal als dessen alleinige Quelle betrachten. Die Richtung des Austauschfeldes wird dabei vom Exzitonspin \vec{J} bestimmt. B_{exc} ist umso größer, je stärker die Exziton-Wellenfunktion lokalisiert ist.

Im Rahmen dieses Formalismus wird mit der Definition von V_X die Ortsfunktion der Exziton-Wellenfunktion und des Austauschfeldes genähert dargestellt mit:

$$\psi(r) = \begin{cases} 0 & \text{ausserhalb } V_X \\ 1/\sqrt{V_X} & \text{innerhalb } V_X \end{cases} \quad (4.17)$$

$$B_{exc}(r) = \begin{cases} 0 & \text{ausserhalb } V_X \\ B_{exc} & \text{innerhalb } V_X \end{cases} \quad (4.18)$$

Wird die Magnetisierung durch ein externes Magnetfeld bewirkt, so stellt sich, wie in Gl. 4.15 nochmals deutlich wird, eine Spinaufspaltung analog zum Zeemaneffekt ein. Beschränkt man sich auf den Bereich kleiner Magnetfelder, in dem die Magnetisierung in etwa linear mit dem Magnetfeld ansteigt, kann man sich in Anlehnung an den Zeeman-Term: $E_z^{m_J} = -\frac{m_J}{2} \cdot g \cdot \mu_B \cdot B$ einen austauschbedingten g-Faktor g_{exc} definieren. Dieser ist eine Maßzahl für die Stärke der indirekten Kopplung des Exzitons an das Magnetfeld über das Mn^{2+} -Spinsystem. In der Tat liegen typische Werte für g_{exc} im Bereich von einigen 100 im Vergleich zu Band-g-Faktoren g_0 in der Größenordnung von 1. Aus diesem Grund spricht man hier häufig von einem *riesigen Zeemaneffekt*. Der effektive g-Faktor $g_{eff} = g_0 + g_{exc}$ wird also vom Austausch-g-Faktor dominiert.

Dieser Sachverhalt tritt deutlich in Abb. 4.2 zu Tage. Hier wurde die magnetfeldabhängige exzitonische PL-Emission von dünnen semimagnetischen Quantenfilmen auf der Basis von $Cd_{1-x-y}Mn_xMg_yTe/CdMgTe$ mit unterschiedlichen Mn-Konzentrationen ausgewertet. Durch die selektive Detektion der σ^+ -PL wurde der $m_J = +1$ -Exzitonenzustand ausgewählt. Es zeigt sich eine deutliche Abhängigkeit der Energieverschiebung vom Mn-Anteil. Für einen sehr geringen Mn-Gehalt von nominell $x=0.005$ tritt eine recht schwache Zunahme

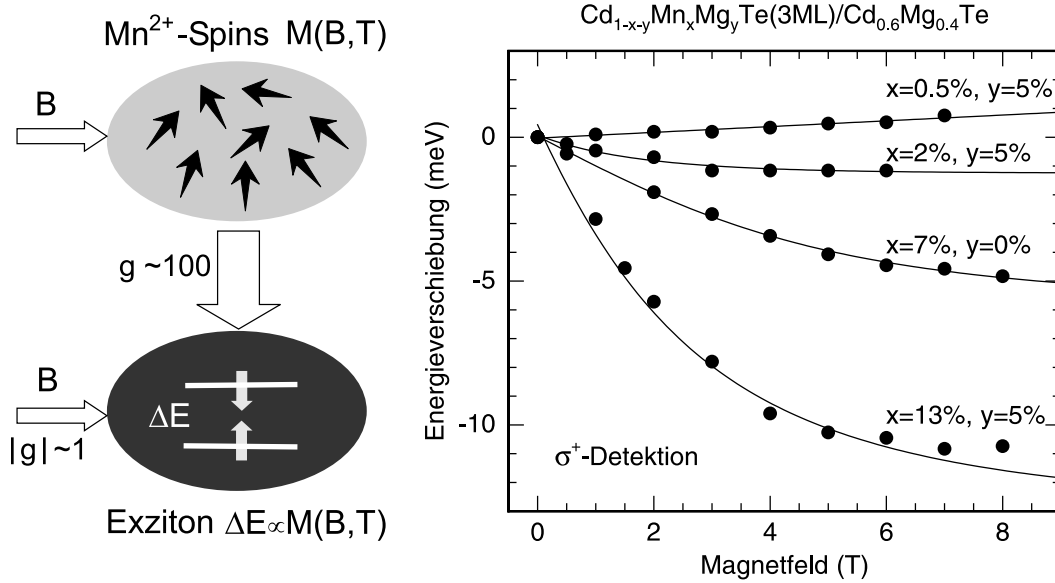


Abbildung 4.2: links: Schematische Darstellung der direkten und indirekten Kopplung des Exzitons an ein externes Magnetfeld. rechts: Magnetfeldabhängige Energieverschiebung der $m_J = +1$ -Exzitonen in CdMnMgTe/CdMgTe-Quantenfilmen. Die Temperatur beträgt 2 K. Die Linien dienen der Führung des Auges.

der Exziton-Energie mit dem Magnetfeld auf. Dieses Verhalten ist noch bestimmt vom gewöhnlichen Zeemaneffekt, hervorgerufen durch einen, in diesem Fall, negativen Band-g-Faktor. Der effektive g-Faktor beträgt hier -3. Erhöht man jedoch die Mn-Konzentration, so findet man nun eine Abnahme der Exziton-Energie, entsprechend einem positiven g-Faktor. Die maximale Verschiebung nimmt sukzessive mit dem Mn-Gehalt zu und für $x=0.13$ errechnet sich schließlich im Grenzfall kleiner Magnetfelder ein effektiver g-Faktor von 120.

Durch den gezielten Einbau von Mangan in den Halbleiter lässt sich also der effektive g-Faktor, sprich die Stärke der Magnetfeld-Ankopplung der Exzitonen, über einen sehr weiten Bereich einstellen. Ein solches "g factor engineering" ist wesentlicher Baustein für zukünftige Spintronik-Anwendungen [Woj00].

4.1.3 Die Spinrelaxation des Exzitons

Wie gerade gezeigt, haben die lokalisierten Mn^{2+} -Spins durch die sp-d-Austauschwechselwirkung einen erheblichen Einfluss auf die Exzitonen. Diese können ihre Energie minimieren, indem sie ihren Spin parallel zum lokalen Mn-Magnetisierungsvektor ausrichten. Der sp-d-Hamiltonoperator selbst liefert hier mit seinen Nicht-Diagonalelementen einen effizienten Mechanismus für eine solche Spinrelaxation [Kre85]. Hierbei kommt es zu einer Spinflip-Streuung [Sem81] zwischen den freien Ladungsträgern und den lokalisierten Mn^{2+} -Spins unter Erhaltung des Gesamtspins. Die Spinrelaxationszeiten sind mit Werten auf der

1ps-Skala [Kre85] deutlich kleiner als typische Exzitonlebensdauern im 100ps-Regime. Somit nehmen nahezu alle Exzitonen noch vor der Rekombination ihren Spin-Grundzustand ein. Erzeugt man also beispielsweise eine Magnetisierung, indem man ein Magnetfeld in Faraday-Geometrie anlegt, so präpariert die Spinrelaxation die Exzitonen überwiegend im $m_J = +1$ -Zustand. Im Spektrum findet man daher schon bei geringen Feldern (< 1 T) eine nahezu vollständige σ^+ -Polarisation der Lumineszenz [Mer95]. Dieses Verhalten ist ganz im Gegensatz zu nichtmagnetischen Halbleitern, insbesondere aber zu nichtmagnetischen Quantenpunkten. Nicht zuletzt aufgrund der Diskretisierung der Zustände im Quantenpunkt, findet man dort eine Verschleppung der Spinrelaxation bis in das ns-Regime [Pai01, Fli01, Sch03]. Dementsprechend zeigen sich bei unpolarisierter Anregung im Magnetfeld nur sehr geringe Polarisationsgrade in der Lumineszenz [Seu04]. Bei magnetischen Quantenpunkten jedoch, erwies sich die Spinstreuung mit den lokalisierten Spins wiederum als wirksamer Relaxationsprozess [Mak00, Kra01]. Die "Spinaligner-Funktionalität" der semimagnetischen Halbleiter vererbt sich also auf die magnetischen Quantenpunkte.

4.1.4 Das magnetische Polaron

Mit der Relaxation des eigenen Spins sind für das Exziton die Möglichkeiten der Energieminimierung nicht erschöpft. So ist es unter Umständen nämlich in der Lage seinerseits die Mn^{2+} -Spins in der unmittelbaren Umgebung zu polarisieren, um damit eine Magnetisierung zu induzieren (Abb. 4.3). Die gewonnene Austauschenergie kommt dabei dem Exziton als Lokalisierungsenergie zugute. Ein solches Quasiteilchen bestehend aus einem Ladungsträger (hier ein Exziton) und einer ferromagnetisch polarisierten Mn^{2+} -Spinwolke bezeichnet man als ein *magnetisches Polaron* (MP) [Wol88].

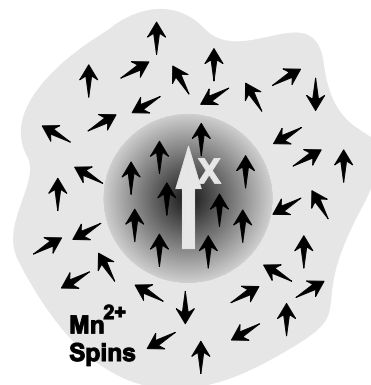


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung der Spin-Konfiguration im Polaronzustand.

Anhand der primären Lokalisation des Ladungsträgers sind grundsätzlich zwei Typen von magnetischen Polaronen zu unterscheiden: (i) gebundene magnetische Polaronen (BMP⁴) [Wol87, Bug88], falls eine Coulomb-Bindung an geladenen Störstellen (Donatoren oder Akzeptoren) vorliegt oder (ii) freie magnetische Polaronen (FMP⁵), welche von ungebundenen Ladungsträgern gebildet werden. Im Gegensatz zu den BMPs ist die Stabilität der FMPs kritisch und wird bestimmt durch die energetische Bilanz aus einer positiven kinetischen Energie (aufgrund der Selbstlokalisierung) und der negativen sp-d-Austauschenergie [Wol88]. Untersuchungen weisen darauf hin, dass im Volumenhalbleiter die Stabilitätsbedingung für FMPs nicht ge-

⁴Bound Magnetic Polaron

⁵Free Magnetic Polaron

geben ist. Mit abnehmender Dimensionalität des Halbleiters jedoch wird die Polaronbildung begünstigt, so dass sie bereits in eindimensionalen Strukturen stets als stabil anzusehen ist [Kav93, Gui95].

Wird der FMP-Zustand von einem Exziton ausgebildet, so spricht man von einem exzitonischen magnetischen Polaron (EMP). Die Bindungsenergie eines EMP ist identisch mit der Austauschenergie für ein $m_J = +1$ -Exziton nach Gl. 4.14. Dabei ist die Magnetisierung M jedoch verursacht durch das vom Exziton selbst erzeugte Austauschfeld B_{exc} aus Gl. 4.16 [Kav99]. Die Bildung des magnetischen Polarons bedeutet den Aufbau eines magnetischen Momentes von einigen 100 Bohrmagnetonen mit einer Ausdehnung auf einer Nanometerskala. Da die sp-d-Austauschwechselwirkung aber spinerhaltend ist, reicht sie nicht aus, um diesen Effekt vollends zu erklären. Eine wichtige Rolle könnten hier nach Dietl *et al.* [Die95] die nichtskalaren Anteile der d-d-Austauschwechselwirkung zwischen den Mn^{2+} -Spins spielen. Dies mag auch erklären, weshalb erst für höhere Mn-Konzentrationen ($x > 0.05$) eine Polaronbildung beobachtet wird.

Die Dynamik der EMP-Bildung wird also maßgeblich von der Spin-Streureate der Mn^{2+} -Spins beeinflusst. Die zeitliche Entwicklung der Polaron-Bindungsenergie kann nach einem empirischen Modell [Yak96, Seu02a] mit einem monoexponentiellen Gesetz beschrieben werden:

$$E(t) = E_{MP} \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{MP}}\right)\right) \quad (4.19)$$

mit der Gleichgewichtsenergie

$$E_{MP} = \mu_{MP} \cdot B_{exc} \quad (4.20)$$

wobei μ_{MP} dem magnetischen Moment des Polarons entspricht. Eine vollständige Polaronbildung bis zum Erreichen der Gleichgewichtsenergie E_{MP} erfordert naturgemäß eine Polaronbildungszeit τ_{MP} , die klein ist gegenüber der Exzitonlebensdauer τ_X .

4.2 Semimagnetische Halbleiter reduzierter Dimensionalität

Bereits in der Mitte der 80er Jahre gelang mit der epitaktischen Herstellung von semimagnetischen Quantenfilmen der Sprung vom DMS-Volumenhalbleiter zu Strukturen reduzierter Dimension [Bic84, Kol84]. Eine wichtige Rolle spielte hierbei die Grundidee, die starken, mittels Magnetfeld induzierbaren, Verschiebungen der Spinbänder zur Manipulation des quantenmechanischen Einschlusspotentials zu nutzen. So konnte beispielsweise ein Spin-Übergitter [Ort82, Dai91], welches einer räumlichen Trennung von Ladungsträgern verschiedener Spinorientierungen entspricht, realisiert werden. Ein ähnlicher Ansatz ermöglichte die Umsetzung eines Typ I-Typ II-Übergangs [Bru86] und damit die räumliche Trennung von Elektronen und Löchern in einer Heterostruktur.

Im Verlaufe weiterer Untersuchungen zeigte sich jedoch, dass die semimagnetischen Eigenschaften als solche bei Reduktion der Dimensionalität eine andere Qualität bekommen und somit eine erneute Betrachtung erfordern. Beispielsweise konnte eine Reduktion der s-d-Austauschkonstante im Leitungsband α mit abnehmender Quantenfilmdicke [Mac96, Mer99] nachgewiesen werden. Des weiteren offenbarte sich eine erhöhte magnetische Suszeptibilität des Mn-Spinsystems, verursacht durch eine Durchmischung des Mangans an den Grenzflächen [Gaj94, Oss96]. Der riesige Zeemaneffekt erscheint also im Vergleich zum Volumenmaterial verstärkt. Doch auch die Richtungsabhängigkeit der Spinaufspaltungen erfährt im Quantenfilm eine recht drastische Modifikation. So bestimmt die starke Anisotropie des Schwerloch-g-Faktors die Wachstumsrichtung statt der Magnetfeldrichtung zur bevorzugten Spinquantisierungsachse. Dies äussert sich unter anderem in einer verschwindenden Aufspaltung der Schwerloch-Spins im in-plane-Magnetfeld (Voigt-Geometrie) [Pey93, Kuh94].

Eine Reduktion der Halbleiter-Dimensionalität wirkt sich nicht zuletzt auch auf die Bildung magnetischer Polaronen aus. Wie theoretische Arbeiten zeigen, sollte die Stabilität von FMPs mit abnehmender Dimensionalität zunehmen [Gui95]. Tatsächlich fand man bei semimagnetischen Quantenfilmen eine Erhöhung der EMP-Bindungsenergie mit abnehmender Quantenfilm-Schichtdicke [Mac93]. Bei Quantenpunkten sind gar noch deutlichere Polaroneneffekte zu erwarten. Neben der stärkeren Lokalisierung ergibt sich nämlich als weiterer Dimensionsvorteil eine längere Exzitonlebensdauer als im Quantenfilm. Daher kann das Polaron im Quantenpunkt leichter seinen Gleichgewichtszustand erreichen.

In den letzten Jahren wurden nun erstmals auch quasi-null-dimensionale Strukturen in Form von Quantenpunkten hergestellt und analysiert. Da bei einem Halbleiter mit der Dimensionalität d und einer charakteristischen Längenskala l die Stärke von Kontakt-Wechselwirkungen mit l^{-d} skaliert [Hof00], ist bei Quantenpunkten mit besonders ausgeprägten sp-d-Austauscheffekten zu rechnen. So kann z.B. die Kopplungsenergie zwischen einem Quantenpunkt-Exziton und einem *einzelnen* lokalisierten Mn^{2+} -Spin beträchtliche Werte von einigen meV annehmen [Bha03]. Des weiteren resultiert das stark reduzierte Ladungsträger-Volumen V in einer zunehmenden Bedeutung von Magnetisierungsfluktuationen im Mn^{2+} -Spin-System, die mit $\delta M/M \propto 1/\sqrt{V}$ skalieren [Lan83]. Während diese "finite-size"-Effekte spezifisch für semimagnetische Quantenpunkte gelten, so kommt noch die Diskretisierung der elektronischen Niveaus, wie sie auch von nichtmagnetischen Quantenpunkten bekannt sind, hinzu. In der Summe versprechen semimagnetische Quantenpunkte also eine Vielzahl neuer physikalischer Phänomene.

Die ersten experimentellen Arbeiten widmeten sich unter anderem Mn-dotierten II-VI-Nanokristallen, die sich in Lösung befanden [Bha94] oder in einer Glasmatrix eingeschlossen waren [Oka98]. Erste Anhaltspunkte für die Bildung von magnetischen Polaronen [Oka98] ergaben sich hier beispielsweise anhand einer magnetfeldabhängigen Stokesver-

schiebung im Lumineszenzspektrum. Des weiteren konnten bei jüngeren EPR⁶-Messungen große Spinaufspaltungen nachgewiesen werden [Nor01]. Erste Hinweise auf "Quantum-size"-Effekte in der Austauschwechselwirkung [Hof00] und den magnetischen Eigenschaften [Jia03] konnten ebenfalls gefunden werden. Bei diesen Messungen wurde jedoch jeweils ein ganzes Ensemble von Quantenpunkten analysiert, da hier die Quantenpunkte nicht einzeln adressiert werden können. Als eine sehr attraktive Alternative zu den Mn-dotierten Nanokristallen erwiesen sich hier epitaktisch gewachsene, semimagnetische Quantenpunkte, vergraben in einer Volumenhalbleitermatrix. Dabei handelt es sich z.B. um natürliche CdMnTe/CdMgTe-Quantenpunkte [Mak00] oder auch selbstorganisierte Quantenpunkte basierend auf verspannten (Cd,Mn)Se/(Zn,Mn)Se- [Kra01, Bac01] bzw. CdMnTe/ZnTe-Heterostrukturen [Mac03]. Durch eine lithographische Prozessierung des Halbleiters ist es dabei prinzipiell möglich *einzelne* Quantenpunkte auszuwählen (siehe Abschn. 3.2) und wiederholt zu spektroskopieren. Erst diese Technik erlaubt es, die Spin-Spin-Wechselwirkung zwischen einem quasi-nulldimensionalen Exziton mit wenigen Mn²⁺-Spins in seiner Umgebung detailliert zu untersuchen. Mit dieser Methode der Einzelpunkt-Spektroskopie gelang es Maksimov *et al.* erstmals die Polaronbildung in individuellen, natürlichen CdMnTe/CdMgTe-Quantenpunkten nachzuweisen [Mak00].

4.3 Selbstorganisierte CdSe/ZnMnSe-Quantenpunkte

Die Standardstruktur zur Darstellung selbstorganisierter Quantenpunkte auf II-VI-Basis ist das CdSe/ZnSe-System [Xin96]. Auch hier konnte vor geraumer Zeit der epitaktische Einbau von Mangan in das CdSe-Material realisiert werden [Oka99]. Allerdings waren diese Strukturen gekennzeichnet von einer geringen Quanteneffizienz, welche auf die Beteiligung der Mn-d-Schale an einem Augerprozess [Naw95] zurückzuführen ist. Als besonders kritischer Parameter erwies sich die Rekombinationsenergie der Quantenpunkte. Liegt diese oberhalb der Energie des internen Mn-Übergangs bei 2.1 bis 2.2 eV, so rekombinieren die Exzitonen zumeist nichtstrahlend unter simultaner Anregung des Mn-d-Orbitals. Kim und Mitarbeiter [Kim00] lösten dieses Problem konzeptionell, indem sie das Mangan nicht in den Quantenpunkt selbst, sondern in die ZnSe-Matrix einbauten. Auch durch die geschickte Wahl weiterer Epitaxieparameter, wie der nominellen CdSe-Schichtdicke und der Verspannung, wurde es so möglich die Energie der Quantenpunkt-Exzitonen unterhalb der des internen Mn-Übergangs einzustellen. Auf diese Weise konnten erstmalig semimagnetische Quantenpunkte auf der Basis von CdSe/ZnSe präpariert werden, die eine für die Einzelpunkt-Spektroskopie hinreichend hohe Quantenausbeute lieferten.

Die in dieser Arbeit behandelten semimagnetischen Quantenpunkte wurden mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) auf einem (100)-orientierten GaAs-Substrat gewachsen. Nach einem ZnSe-Puffer wurde eine Schicht Zn_{0.75}Mn_{0.25}Se deponiert, gefolgt von 2.5 Monolagen CdSe. Die quantenpunkttragende Schicht wurde schließlich wiederum mit ZnMnSe gleicher Zusammensetzung wie in der unteren Barriere überwachsen. Im Anschluss an die Epitaxie

⁶Elektron-paramagnetische Resonanz

wurde lithographisch eine Metallmaske mit Aperturen verschiedener Durchmesser ϕ auf der Halbleiteroberfläche definiert.

Mittels eines Makro-PL-Aufbaus wurden die in Abb. 4.4 dargestellten Photolumineszenzspektren der Probe bei einer Temperatur von 2 K aufgenommen. Die Anregung mit den UV-Linien eines Argon-Ionen-Lasers ($\lambda=333\text{...}364$ nm) geschah nichtresonant, also mit einer Photonenergie oberhalb der ZnMnSe-Barriere. Positioniert man den Laserfokus auf eine makroskopische Apertur ($\phi=20\ \mu\text{m}$), so erfasst man ein sehr großes Ensemble von Quantenpunkten. Aufgrund der natürlichen Variation der Quantenpunktgröße und Materialzusammensetzung bedeutet dies eine inhomogene Verbreiterung des PL Signals. Energetisch oberhalb der Quantenpunkt-Emission zeigt sich im Spektrum auch der interne Mn-Übergang, der in dieser Struktur aus bereits genannten Gründen in der Intensität stark zurückbleibt.

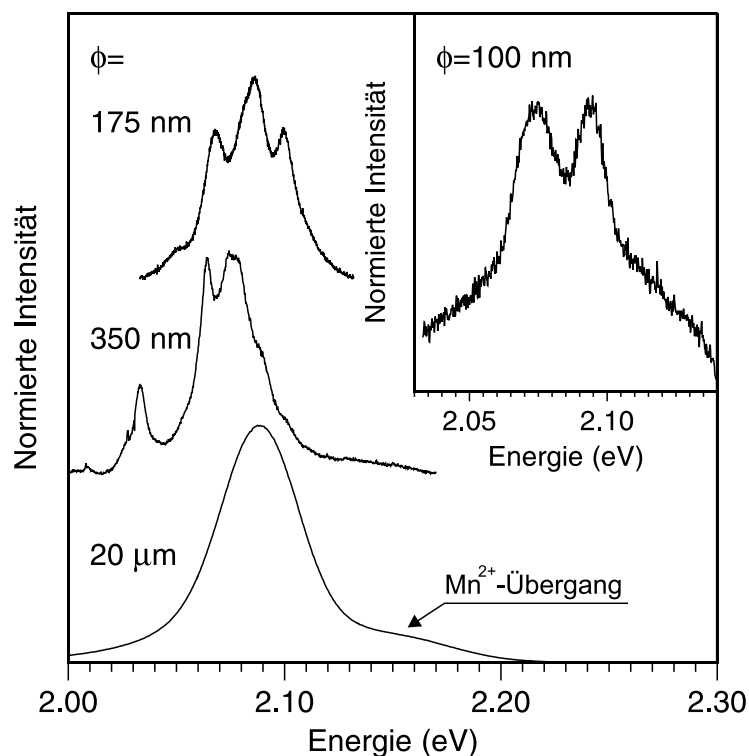


Abbildung 4.4: PL Spektren einer CdSe/Zn_{0.75}Mn_{0.25}Se-Quantenpunkt-Struktur, gemessen an Aperturen verschiedener Durchmesser ϕ bei einer Temperatur von 2 K.

Eine stetige Verkleinerung der Aperturgröße bedeutet schließlich, dass das Ensemble der erfassten Quantenpunkte immer kleiner wird, bis die PL-Emission aus individuellen Quantenpunkten sichtbar wird. Dabei wird die Anzahl der einzelnen PL-Signale mit abnehmendem Aperturdurchmesser immer stärker reduziert. So findet man bei einer Apertur von $\phi=100$ nm nur mehr zwei individuelle PL-Emissionslinien. Diese Abnahme der Linienzahl ist typisch für Quantenpunktsysteme und zugleich ein Indiz für die starke örtliche

Lokalisation der rekombinierenden Exzitonen. Eine entsprechende Beobachtung wurde auch für nichtmagnetische CdSe/ZnSe-Strukturen [Kum98] gemacht, im Einklang mit TEM⁷-Messungen, welche Cd-reiche Inseln mit Durchmessern von ca. 10 nm zeigten [Per00].

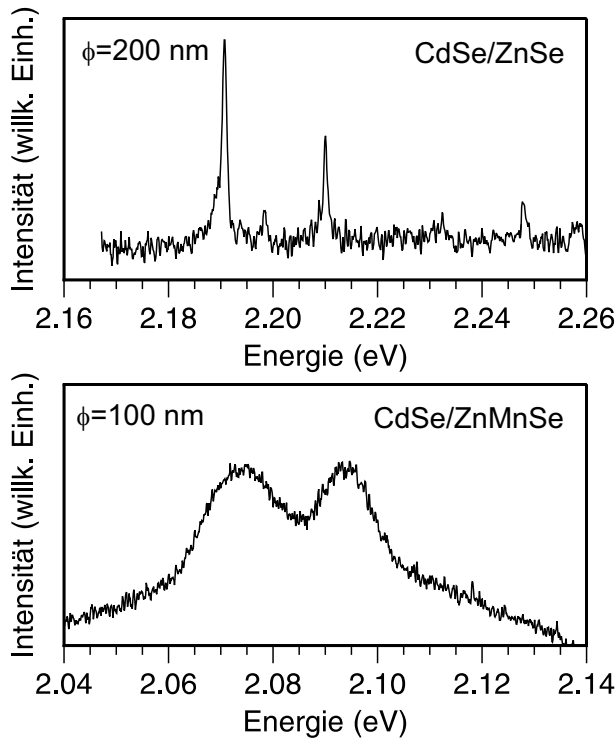


Abbildung 4.5: PL-Spektren von einzelnen Quantenpunkten basierend auf CdSe/ZnSe (oben) und CdSe/ZnMnSe (unten) bei einer Temperatur von 2 K. Die Aperturen haben einen Durchmesser von 200 nm (oben) und 100 nm (unten).

Angesichts der deltaförmigen Zustandsdichte eines einzelnen Quantenpunktes erwartet man eigentlich für dessen PL-Emission eine sehr geringe Linienbreite. Dies ist aber im offenen Widerspruch zu den Spektren aus Abb. 4.4, wo Halbwertsbreiten von 5 bis 8 meV abzulesen sind. Abb. 4.5 zeigt dazu einen direkten Vergleich von CdSe/ZnMnSe- und CdSe/ZnSe-Quantenpunkten. Beim nichtmagnetischen Fall findet man Halbwertsbreiten von etwa 1 meV. Fluktuierende elektrische Ladungen in der Quantenpunkt-Umgebung verursachen hier eine spektrale Diffusion der Exziton-Energie und folgerichtig eine Verbreiterung der Emissionslinie [Seu00a]. Typisch für CdSe/ZnSe-Quantenpunkte sind jedoch Halbwertsbreiten deutlich unterhalb von 1 meV. Die PL-Linien der semimagnetischen Quantenpunkte zeigen dagegen eine vielfach höhere Linienbreite, die kaum durch fluktuierende Ladungen erklärt werden kann. Eine entsprechende Beobachtung wurde bereits an natürlichen CdMnTe/CdMgTe-Quantenpunkten gemacht [Mak00]. Die vorrangige Ursache für dieses Linienverbreiterung ist eine spektrale Diffusion bedingt durch die thermische Fluktuation magnetischer Spins. Im Abschn. 4.6 wird dieses Phänomen eingehend behandelt.

⁷Transmission Electron Microscopy

4.4 Die optisch induzierte Nanomagnetisierung

Semimagnetische Halbleiter zeichnen sich durch die einzigartige Möglichkeit aus, durch optische Anregung eine Magnetisierung im System der lokalisierten Spins aufzubauen. So konnte z.B. anhand von SQUID-Messungen⁸ demonstriert werden, dass bei Einstrahlung zirkularpolarisierten Lichts auf einen HgMnTe-Kristall eine Magnetisierung von bis zu $6 \cdot 10^{-6}$ emu/cm³ induziert werden kann [Kre89]. Im Gegensatz zu dieser kristallweiten Magnetisierung, bedeutet die Bildung eines magnetischen Polarons den Aufbau einer sehr kleinräumigen Magnetisierung. Hier werden lediglich die Mn²⁺-Spins innerhalb der Exziton-Wellenfunktion dem Exzitonspin entsprechend polarisiert. Da sich die Magnetisierung demnach auf einer nm-Skala ausbildet ist es unmöglich diese mit den klassischen Mitteln der Magnetometrie zu ermitteln.

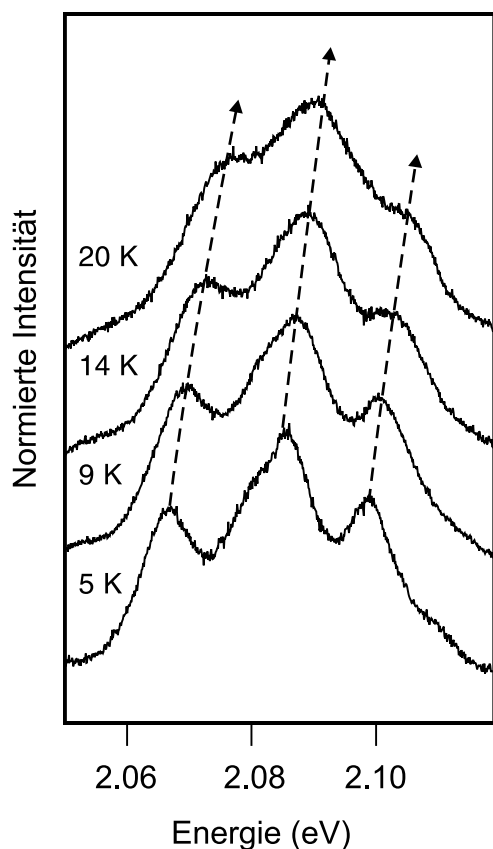


Abbildung 4.6: PL-Spektren, gemessen an einer Apertur mit $\phi=175$ nm bei verschiedenen Temperaturen. Die Linien dienen der Führung des Auges.

falls die temperaturabhängige Emissionsenergie eines einzelnen CdSe/ZnSe-Quantenpunktes wiedergegeben. Hier offenbart sich eine vielfach beobachtete schwache Rotverschiebung der

Betrachtet man jedoch ein Polaron, das an einem einzelnen Quantenpunkt lokalisiert ist, so zeigt es sich, dass man tatsächlich diese Nanomagnetisierung nicht nur optisch erzeugen, sondern auch optisch abbilden und quantitativ erfassen kann.

In Abb. 4.6 ist die temperaturabhängige PL-Emission semimagnetischer Einzelquantenpunkte dargestellt. Deutlich zu erkennen ist einerseits eine kontinuierliche Blauverschiebung der einzelnen Linien und andererseits eine Zunahme der Linienbreiten. Sämtliche Quantenpunkte weisen dabei qualitativ wie quantitativ ein sehr ähnliches Verhalten auf. Die Energieverschiebung wurde nun für einen repräsentativen Quantenpunkt (Abb. 4.7 (links)) ausgewertet und in Abb. 4.7 (rechts) eingezeichnet. Während bei tiefen Temperaturen ($T < 20$ K) ein starker Anstieg der Exzitonenergie zu beobachten ist, so bemerkt man oberhalb von $T = 20$ K nur noch eine langsame Zunahme bis schließlich eine Sättigung eintritt. Ein solches Verhalten ist in klarem Gegensatz zum typischen Verhalten nichtmagnetischer Quantenpunkte. Zum Vergleich wurde in Abb. 4.7 (rechts) gleich-

⁸Superconducting Quantum Interference Device

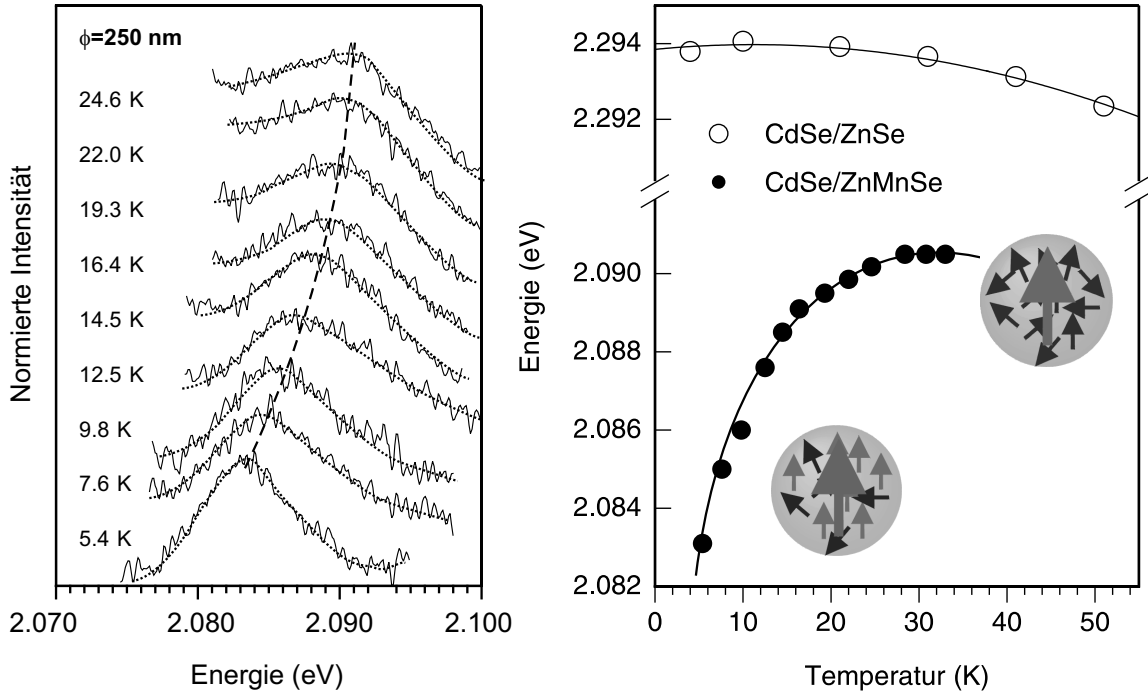


Abbildung 4.7: links: PL-Spektren eines repräsentativen Quantenpunktes bei verschiedenen Temperaturen. rechts: PL-Energie eines einzelnen CdSe/ZnMnSe- und CdSe/ZnSe-Quantenpunktes als Funktion der Temperatur. Die Linien dienen der Führung des Auges.

Exzitonenergie, die gemeinhin der Abnahme der Bandlücke E_{gap} aufgrund der Elektron-Phonon-Kopplung zugeschrieben wird. Nach einem empirischen Modell von Varshni [Var67] lässt sich folgender Ausdruck verwenden:

$$E_{gap}(T) = E_{gap}(T = 0) - \frac{a \cdot T^2}{b + T} \quad (4.21)$$

Hierbei entspricht b in etwa der Debye-Temperatur, während das Verhältnis a/b ein Maß für die Wechselwirkung zwischen Elektronen und Phononen ist. Bei niedrigen Temperaturen ($T \ll b$) ergibt sich demnach eine angenähert parabolische Verschiebung der Bandlücke mit der Temperatur. Dies stimmt mit den hier angestellten Messungen überein. Dies legt nahe, dass die Blauverschiebung der Exzitonenergie im Falle der semimagnetischen Quantenpunkte im Zusammenhang mit den Mn²⁺-Spins steht. Es bietet sich daher folgende Erklärung an: Bei tiefen Temperaturen ist das im Quantenpunkt lokalisierte Exziton in der Lage die Mn²⁺-Spins innerhalb seines Volumens über das sp-d-Austauschfeld B_{exc} zu polarisieren. Die damit verbundene Magnetisierung schlägt sich in einer Austauschenergie nieder, die dem Exziton als zusätzliche Lokalisierungsenergie bzw. Polaronbindungsenergie zugute kommt. Erhöht man jedoch die Temperatur, so geraten die Mn²⁺-Spins zunehmend in thermische Unordnung, was zu einer Reduktion der Magnetisierung im Austauschfeld führt. Damit geht dem Exziton die Polaronbindungsenergie verloren und seine Energie nimmt folgerichtig zu.

Konkrete Hinweise auf die Existenz eines magnetischen Polarons in dieser Struktur ergaben sich auch bei zeitaufgelösten PL-Experimenten an einem Quantenpunktenssemble [Seu02a]. Hierbei konnte eine transiente energetische Relaxation der Exzitonen nach Gl. 4.19 festgestellt werden, welche mit zunehmender Temperatur gleichfalls unterdrückt wurde. Dies ist in guter Übereinstimmung mit den hier vorgestellten Messungen. Zudem offenbarte sich, dass die Polaronbildungszeit τ_{MP} einen weitaus kleineren Wert aufweist, als die Exziton-Lebensdauer τ_X (z.B. bei $T=2$ K: $\tau_{MP}=130$ ps, $\tau_X=580$ ps). Das Polaron erreicht demnach lange vor der Rekombination den Gleichgewichtszustand mit der Energie E_{MP} . Dies ist für den gesamten hier betrachteten Temperaturbereich gültig.

Angesichts dieses Umstandes sollte es nun möglich sein, die temperaturabhängige Energieverschiebung des semimagnetischen Quantenpunktes aus Abb. 4.7 mit der Gleichgewichtsaustauschenergie im Rahmen des Brillouin-Formalismus zu modellieren. Hier ist zunächst jedoch zu klären, ob die Gleichungen für die Magnetisierung (Gl. 4.6) und die Exziton-Austauschenergie (Gl. 4.14) nicht nur für das Volumenmaterial sondern auch für Quantenpunkte gültig sind. Da bei der hier vorliegenden Mn-Konzentration die Zahl der Mn^{2+} -Spins noch in der Größenordnung von 100 liegt (siehe Abschn. 4.5) bleibt die thermodynamische Mittelung zur Bestimmung der Magnetisierung und damit der Brillouinformalismus in Gl. 4.6 weiterhin ein legitimes Mittel. Voraussetzung für die Anwendbarkeit von Gl. 4.14 zur Berechnung der Austauschenergie ist die Übereinstimmung der Magnetisierungsrichtung mit der Quantisierungsachse für Elektron- und Lochspin. Das ist eine Bedingung, die aufgrund des anisotropen Schwerloch-g-Faktors nicht ohne weiteres gegeben ist. Dieser lässt für die Schwerlochspin nur eine Orientierung parallel bzw. antiparallel zur Wachstumsrichtung zu. Da die Polaron-Magnetisierung jedoch der Richtung des Lochspins folgen muss, entspricht die Magnetisierungsrichtung auch der Spinquantisierungsachse. Der Elektron-g-Faktor ist auch im Quantenpunkt nahezu isotrop, so dass auch hier die Spinquantisierungsachse durch die Magnetisierungsrichtung vorgegeben wird. Damit ist also Gl. 4.14 zur Beschreibung der Polaron-Austauschenergie geeignet. Es ergibt sich also:

$$E_{exc}^{m_J} = -m_J \gamma \cdot \frac{\alpha - \beta}{2 \cdot \mu_B g_{Mn}} \cdot M(B_{exc}, T) \quad (4.22)$$

$$E_{exc} = -\frac{1}{2} \gamma N_0 (\alpha - \beta) g_{Mn} \mu_B x S_0 \cdot B_{5/2} \left(\frac{5 g_{Mn} \mu_B B_{exc}}{2 k_B \cdot (T + T_0)} \right) \quad (4.23)$$

Hierbei wurde der Exziton-Spin mit $m_J = +1$ gleichgesetzt, da nur in diesem Fall eine negative Austauschenergie, also ein gebundener Zustand, auftritt. Des weiteren entspricht der zusätzlich eingefügte Faktor γ dem Volumenanteil der Exziton-Wellenfunktion, der mit den Mn^{2+} -Spins überlappt. Die Brillouin-Parameter für $Zn_{0.75}Mn_{0.25}Se$ wurden aus der Literatur entnommen: $S_0=0.41$ [Fat94], $T_0=3.6$ K [Kla98], $N_0\alpha=260$ meV [Twa84], $N_0\beta=-1310$ meV [Twa84].

Die experimentelle Verschiebung des semimagnetischen Quantenpunktes aus Abb. 4.8 wurde nun zunächst um den Varshni-Effekt korrigiert. Dazu wurden die Referenzdaten des CdSe/ZnSe-Quantenpunktes herangezogen. Die resultierende Verschiebung ist somit ausschließlich austauschbedingt, so dass eine Brillouin-Modellierung nach Gl. 4.23 durchgeführt werden konnte. Diese ist im Bildeinsatz von Abb. 4.8 für ein Austauschfeld von $B_{exc}=2.6$ T und einen γ -Wert von 0.34 dargestellt (Linie). Da die experimentellen Werte (Punkte) sehr gut reproduziert werden, bestätigt sich die Interpretation der Energieverschiebung als reine Änderung der Austauschenergie. Hält man sich nun vor Augen, dass die Austauschenergie, von Konstanten abgesehen, nur von der Magnetisierung innerhalb des Exziton-Volumens abhängt, so wird folgendes klar: Die beobachtete Energieverschiebung gibt tatsächlich die Magnetisierung auf einer 10nm-Skala (Quantenpunkt-Durchmesser) wieder. Man kann demnach diese Nanomagnetisierung optisch abbilden.

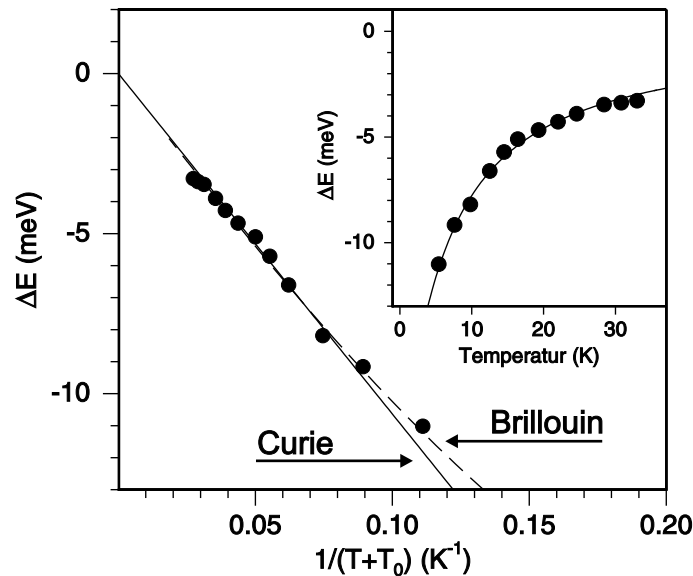


Abbildung 4.8: PL-Energieverschiebung eines Einzel-Quantenpunktes als Funktion der inversen effektiven Temperatur $T + T_0$. Die Linien entsprechen Anpassungen mit dem Curie-Gesetz nach Gl. 4.24 (durchgezogene Linie) und der Brillouinfunktion nach Gl. 4.23 (gestrichelte Linie). Das Austauschfeld B_{exc} entspricht jeweils 2.6 T. Bildeinsatz: Temperaturabhängige PL-Energieverschiebung eines Einzel-Quantenpunktes. Die Linie repräsentiert eine Anpassung basierend auf Gl. 4.23.

Dies wird nochmals deutlich, wenn man die Brillouinfunktion für den Grenzfall kleiner Argumente linear nähert. Diese Approximation ist gerechtfertigt, wenn die Zeemanenergie der Mn^{2+} -Spins klein ist gegen die effektive thermische Energie $k_B(T + T_0)$. In diesem Fall erhält man nun für die Magnetisierung das bekannte Curie-Gesetz:

$$M(B, T) = N_0 x S_0 \cdot \frac{S + 1}{3} \cdot \frac{(g_{Mn} \mu_B)^2}{k_B(T + T_0)} \cdot B \quad (4.24)$$

Wählt man nun für die Energieverschiebung eine $1/(T + T_0)$ -Auftragung (siehe Abb. 4.8), so ergibt sich ein linearer Zusammenhang, wie man es für die Magnetisierung erwartet. Es liegt also sozusagen ein "optisches Curie-Gesetz" vor. In Abb. 4.8 ist die Anpassung der experimentellen Energieverschiebung sowohl mit der Brillouinfunktion (Gl. 4.23) als auch mit dem Curie-Gesetz (Gl. 4.22 und Gl. 4.24) dargestellt. Mit einem Feld von $B = B_{exc} = 2.6$ T beträgt hierbei die Abweichung für eine Temperatur von $T = 5.5$ K etwa 7 %. Mit zunehmender Temperatur nimmt dieser Fehler kontinuierlich ab.

4.5 Das Quantenpunkt-Exziton als Sonde für die Nanomagnetisierung

Neben der optisch induzierten Magnetisierung via Exziton-Austauschfeld \vec{B}_{exc} , gibt es natürlich auch die Möglichkeit durch Anlegen eines externen Magnetfeldes \vec{B}_{ext} das Mn^{2+} -Spinsystem zu polarisieren. Dieses steht dann also unter dem Einfluss eines Gesamtfeldes, das als Vektorsumme formuliert werden kann: $\vec{B} = \vec{B}_{exc} + \vec{B}_{ext}$. Die Richtung des Austauschfeldes wird hierbei vom Exziton-Spin diktiert. In Faraday-Geometrie erzeugt ein $m_J = +1$ -Spin ein Austauschfeld, das parallel zum externen Feld orientiert ist, wohingegen ein $m_J = -1$ -Spin eine antiparallele Konfiguration bedeutet. Die Austauschenergie lautet damit also:

$$E_{exc}^{m_J} = -m_J \cdot \frac{\alpha - \beta}{2 \cdot \mu_B g_{Mn}} \cdot M(B_{ext} + m_J B_{exc}, T) \quad (4.25)$$

Für $m_J = +1$ -Exzitonen verstärkt demnach das externe Magnetfeld die Polaron-Magnetisierung und erhöht die (negative) Austauschenergie um ein weiteres. Aufgrund der effektiven Spinrelaxation der Exzitonen (siehe Abschn. 4.1.3), wird der höherenergetische $m_J = -1$ -Zustand schon bei geringen Feldstärken kaum noch besetzt. In Abb. 4.9 (rechte Hälfte) ist die magnetfeldabhängige Verschiebung der σ^+ -PL eines einzelnen Quantenpunktes dargestellt. Es tritt, wie durch Gl. 4.25 für $m_J = +1$ -Exzitonen vorausgesagt, eine deutliche Rotverschiebung des Signals mit dem Magnetfeld auf. Dies entspricht dem riesigen Zeemaneffekt, der so typisch ist für semimagnetische Halbleiter. In der linken Hälfte der Abb. 4.9 ist nochmals die temperaturabhängige Blauverschiebung der PL bei Abwesenheit eines Magnetfeldes eingezeichnet. Die durchgezogene Linie in beiden Bildhälften entspricht einer gemeinsamen Anpassung nach Gl. 4.25 mit den Parametern $B_{exc} = 2.6$ T und $\gamma = 0.34$. Seitens der Magnetfeld-Daten wurde eine Temperatur von $T = T_{Mn} = 5$ K, trotz einer Heliumbad-Temperatur von 2 K angenommen. Wie im späteren Abschn. 4.7 noch gezeigt wird, liegt bei den hier verwendeten optischen Anregungsdichten eine Heizung des Mn^{2+} -Spinsystems vor, die zu einer erhöhten Spintemperatur führt.

Offensichtlich kann also sowohl die Temperatur- als auch die Magnetfeldabhängigkeit der PL-Energie eines einzelnen Quantenpunktes mit ein und demselben Brillouin-

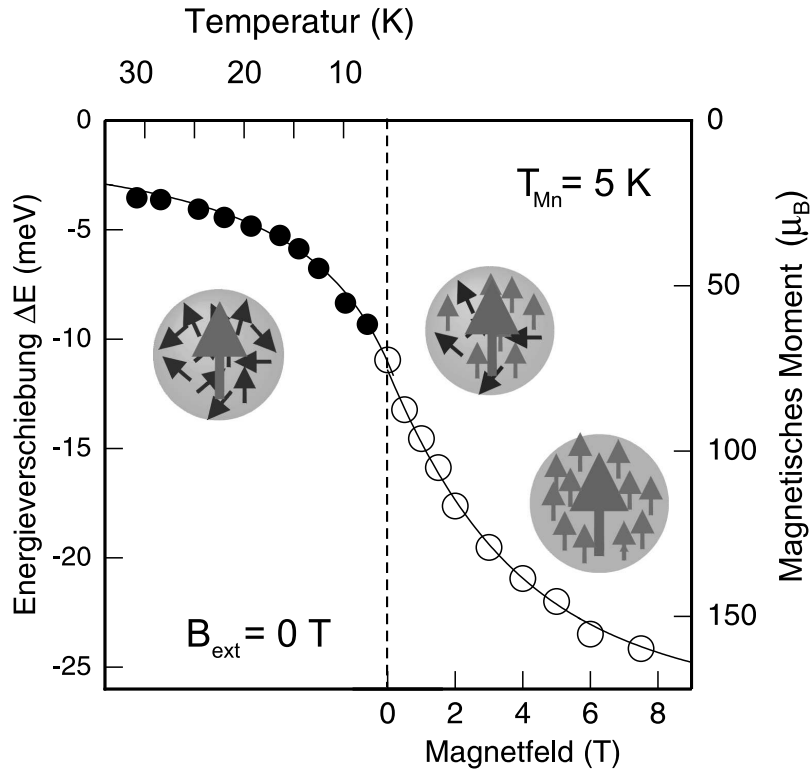


Abbildung 4.9: Energieverschiebung eines einzelnen Quantenpunktes (linke Achse) als Funktion der Temperatur (Punkte) und externem Magnetfeld (offene Kreise). Die rechte Achse gibt das magnetische Moment im Exzitonvolumen wieder, berechnet nach Gl. 4.26. Die durchgezogene Linie stellt eine Anpassung mit dem Brillouin-Modell dar. Die eingesetzten Bilder deuten symbolhaft den jeweiligen Polarisierungsgrad der Mn^{2+} -Spins im Exziton-Volumen an.

Modell nach Gl. 4.25 beschrieben werden. Dies unterstreicht nochmals die bereits gemachte Feststellung, dass die PL-Energie als Maßstab für die Magnetisierung eines nm-skalierten Volumens herangezogen werden kann. Tatsächlich kann die experimentelle PL-Energieverschiebung mit Hilfe des ermittelten Austauschfeldes B_{exc} nun sogar quantitativ Aufschluss geben über das jeweilige magnetische Moment μ_X^{Mn} im Exziton-Volumen. In Anlehnung an Gl. 4.20 ergibt sich:

$$\mu_X^{Mn} = -E_{exc}/B_{exc} \quad (4.26)$$

Wie in Abb. 4.9 abzulesen ist, erlaubt diese Methode erstaunlicherweise den optischen Zugriff auf magnetische Momente von wenigen 10 Bohrmagnetons, die auf einer 10nm-Skala lokalisiert sind. Extrapoliert man die Brillouinkurve in Abb. 4.9 zu hohen Magnetfeldern, so ergibt sich hier ein Sättigungsmoment von $180 \mu_B$. Da das effektive, gemittelte Moment pro Mn^{2+} -Spin mit $g_{Mn} \cdot S_0 = 0.82 \mu_B$ angegeben werden kann, resultiert damit eine Anzahl von ca. 220 Mn^{2+} -Spins, welche sich innerhalb des Exzitonvolumens befinden.

Es sei an dieser Stelle betont, dass das Exziton hier nur deshalb als Sonde für die lokale Magnetisierung fungieren kann, weil es in einem Quantenpunkt lokalisiert ist. Wesentliche Voraussetzung ist nämlich, dass die Exziton-Wellenfunktion als "Messinstrument" nicht selbst von den externen Parametern wie Temperatur und Magnetfeld beeinflusst wird. Diese Bedingung kann jedoch nur in einem Quantenpunkt erfüllt werden. So verhindert das Einschlusspotential einerseits die thermische Aktivierung des Exzitons bei Erhöhung der Temperatur. Zum anderen aber ist der laterale Exziton-Durchmesser hier bestimmt durch den Quantenpunkt-Einschluss und nicht durch den magnetischen Einschluss mit der charakterischen Länge $l_m = \sqrt{\hbar/(eB)}$ (siehe Abschn. 2.3.1). Dies schließt eine magnetfeldbestimmte Wellenfunktion aus.

4.6 Die thermische Fluktuation der Nanomagnetisierung

Semimagnetische Quantenpunkte weichen in ihrer Emissionscharakteristik entschieden ab von vergleichbaren nichtmagnetischen Strukturen. Obwohl es mit der Nanoaperturtechnik gelingt, die inhomogene Verbreiterung der PL-Emission aufgrund von Fluktuationen der Quantenpunktgrößen und der Komposition zu vermeiden, zeigen sich im Spektrum keine schmalbandigen PL-Linien wie sie für Quantenpunkte eigentlich typisch sind. Stattdessen begegnet man ungewöhnlich großen Halbwertsbreiten von einigen meV (siehe Abschn. 4.3). Dieses Phänomen erwies sich in der Vergangenheit als gravierendes Hindernis bei der spektroskopischen Analyse von semimagnetischen Einzelquantenpunkten.

Spektrale Verbreiterungseffekte sind auch bei nichtmagnetischen Quantenpunkten bekannt. Während Streuprozesse unter Phonon-Beteiligung [Gam96b] bei tiefen Temperaturen noch eine geringe Rolle spielen, so erwiesen sich vor allem fluktuierende Ladungen in der Quantenpunkt-Umgebung als häufige Ursache für eine spektrale Diffusion [Emp96, Seu00a]. Linienbreiten von bis zu einigen meV wurden diesem Mechanismus zugeschrieben. Das im Quantenpunkt lokalisierte Exziton ist also sehr sensitiv bezüglich seiner unmittelbaren Nachbarschaft. Im Falle eines semimagnetischen Quantenpunktes ist diese Nanoumgebung nun zusätzlich mit magnetischen Spins ausgestattet. Aufgrund der sp-d-Kopplung bedeutet aber jede zeitliche Variation der Magnetisierung auch eine entsprechende Variation der Exzitonenergie. Ist deren Zeitskala kleiner als die Integrationszeit im Experiment, so bedeutet dies eine spektrale Verbreiterung des Signals. Als Ursachen für eine zeitliche Variation der Magnetisierung kommen hierbei zwei Effekte in Frage: 1) die Bildung des magnetischen Polarons und 2) die statistische Fluktuation der Mn^{2+} -Spins.

Die Entwicklung des magnetischen Polarons kommt einer transienten energetischen Relaxation des Exzitons gleich (siehe Gl. 4.19). Da das Exziton in verschiedenen Stadien dieses Prozesses und damit mit verschiedener Energie rekombinieren kann, ergibt sich zeitlich integriert eine energetische Dispersion der Photolumineszenz. Mit einem Blick auf

die relevanten Zeitkonstanten [Seu02a] lässt sich dieser Verbreiterungsmechanismus für die hier betrachtete Probe jedoch ausschließen. Angesichts einer gegen die Rekombinationszeit ($\tau_X=580$ ps) sehr kurzen Polaronbildungszeit ($\tau_{MP}=130$ ps), erreicht die große Mehrzahl der Exzitonen tatsächlich die Gleichgewichtsenergie E_{MP} deutlich vor dem Rekombinationsereignis. Detaillierte Modellrechnungen bestätigen hier einen nur sehr geringen PL-Verbreiterungseffekt [Wel03]. Wenn dieser dynamische Verbreiterungsprozess für die vorliegende Quantenpunktstruktur auch keine Rolle spielt, so kann er allerdings in anderen Fällen beitragen und muss demnach berücksichtigt werden.

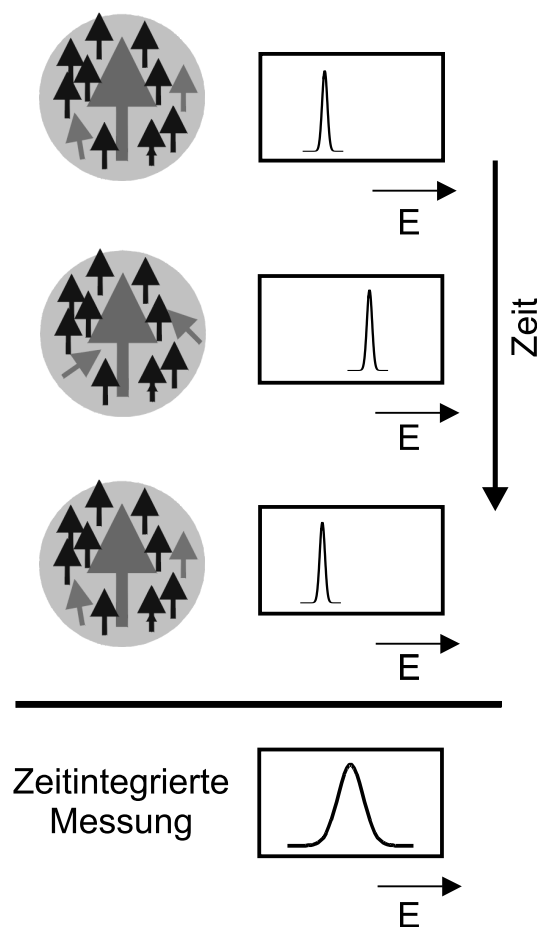


Abbildung 4.10: Veranschaulichung der PL-Verbreiterung durch Magnetisierungsfluktuationen.

Abb. 4.10 stellt schematisch die Linienverbreiterung durch Spinfluktuationen dar. Selbst bei kryogenen Temperaturen bewirkt die thermische Energie der Mn^{2+} -Spins deren statistische Fluktuation um ihre Gleichgewichtslage. Für den Teil des Mn^{2+} -Spinsystems, der von der Wellenfunktion des Quantenpunkt-Exzitons abgebildet wird, bedeutet dies gleichfalls eine Fluktuation des mittleren Spins, also der Magnetisierung ΔM um den Gleichgewichtswert M . Da die Austauschenergie des Exzitons direkt von der Magnetisierung abhängt, kommt es folgerichtig auch zu einer zeitlichen Fluktuation der Exziton-Energie. Die Zeitintegration des Experiments liefert schließlich ein verbreitertes PL-Signal.

Allgemein gilt, dass statistische Fluktuationen in einem thermodynamischen System stets mit abnehmender Größe des Systems an Bedeutung gewinnen. Da innerhalb der Wellenfunktion des Quantenpunkt-Exzitons nur wenige 10 bis 100 Mn^{2+} -Spins liegen, bildet sich also die fluktuierende Magnetisierung sehr stark auf das Exziton bzw. seine PL-Halbwertsbreite ab. Dies eröffnet aber gerade die Möglichkeit, durch Analyse der Linienbreite Aufschluss über die statistische Verteilung der Magnetisierung zu bekommen.

4.6.1 Die Theorie der fluktuationsbestimmten Halbwertsbreite

Die Fluktuation der Magnetisierung

Nach den Gesetzen der statistischen Physik ist das quantitative Maß der Magnetisierungsfluktuationen alleine bestimmt durch makroskopische Größen, die prinzipiell messbar sind. So lautet das Fluktuations-Dissipations-Theorem (FDT) für ein magnetisches System [Lan83]:

$$\langle \delta M^2 \rangle = \frac{\partial M(B, T)}{\partial B} \cdot \frac{k_B T}{V_M} \quad (4.27)$$

Hierbei ist $\langle \delta M^2 \rangle$ die mittlere quadratische Fluktuationmagnetisierung projiziert auf eine beliebige Achse und $\partial M / \partial B$ entspricht (von Konstanten abgesehen) der magnetischen Suszeptibilität entlang derselben Achse. Des weiteren ist mit V_M das Volumen des betrachteten magnetischen Systems gemeint. Da V_M im vorliegenden Fall durch den Anteil der Exziton-Wellenfunktion in der Mn-haltigen Barriere bestimmt wird, gilt $V_M = \gamma \cdot V_X$. Folgende Abhängigkeiten ergeben sich aus dem FDT: 1) Die Fluktuationen nehmen mit der Suszeptibilität $\partial M / \partial B$ des Mn^{2+} -Spinsystems zu. Da mit der Aufmagnetisierung eines Paramagneten stets die Suszeptibilität also die Fähigkeit zu einer weiteren Magnetisierung abnimmt, bedeutet dies zwangsläufig eine Reduktion der Magnetisierungsfluktuationen im Magnetfeld. 2) Je kleiner das Systemvolumen V_M ist, desto stärker fallen die Fluktuationen der Magnetisierung aus. Dieser "finite-size"-Effekt erklärt die erhöhte Bedeutung von Fluktuationen bei nanoskaligen Systemen. 3) Da die Suszeptibilität mit der Temperatur langsamer abnimmt als die thermische Energie zunimmt, ergibt sich ein Anstieg der Fluktuationen mit der Temperatur.

Sinnvoll ist eine Aufteilung der Fluktuationmagnetisierung in einen longitudinalen Anteil (parallel zur Magnetisierungsachse) und einen transversalen Anteil (senkrecht zur Magnetisierungsachse). Das FDT gibt es nun also in zweifacher Ausführung:

$$\langle \delta M_{\parallel}^2 \rangle = \frac{\partial M_{\parallel}(B, T)}{\partial B_{\parallel}} \cdot \frac{k_B T}{V_M} \quad (4.28)$$

$$\langle \delta M_{\perp}^2 \rangle = \frac{\partial M_{\perp}(B, T)}{\partial B_{\perp}} \cdot \frac{k_B T}{V_M} \quad (4.29)$$

Modelliert man die statistische Verteilung der Magnetisierung mit einer Gaussfunktion [Mer96], so beträgt deren Halbwertsbreite :

$$FWHM_{mag} = \sqrt{8 \ln 2 \langle \delta M^2 \rangle} \quad (4.30)$$

Die Fluktuation der Austauschenergie in Faraday-Geometrie

Die Fluktuation der Magnetisierung bildet sich nun über die Exziton-Mangan-Kopplung auf die Exziton-Energie ab. Die Austauschenergie des Exzitons wird dabei lediglich von

dem Anteil der Magnetisierung parallel zum Austauschfeld \vec{B}_{exc} bestimmt. Die Faraday-Geometrie bildet daher gegenüber der Voigt-Geometrie die einfachere experimentelle Situation. Hier sind das externe Magnetfeld \vec{B}_{ext} , das Austauschfeld \vec{B}_{exc} und damit auch die Magnetisierung parallel orientiert. Dies bedeutet, dass sich nur die longitudinalen Magnetisierungsfluktuationen auf die Austauschenergie des Exzitons auswirken (Abb. 4.11). Die Halbwertsbreite der Magnetisierungsverteilung $FWHM_{mag}$ lässt sich somit unter Anwendung von Gl. 4.15 in eine Halbwertsbreite der Austauschenergie $FWHM_{exc}$ umrechnen. Des weiteren können Gl. 4.28 und Gl. 4.30 eingesetzt werden. Für den Spezialfall der Faraday-Geometrie kann man also schreiben:

$$FWHM_{exc} = \gamma V_X \cdot B_{exc} \cdot FWHM_{mag} \quad (4.31)$$

$$FWHM_{exc} = B_{exc} \cdot \sqrt{8 \ln 2 \cdot \frac{\partial M_{\parallel}}{\partial B_{\parallel}} \cdot \gamma V_X \cdot k_B T} \quad (4.32)$$

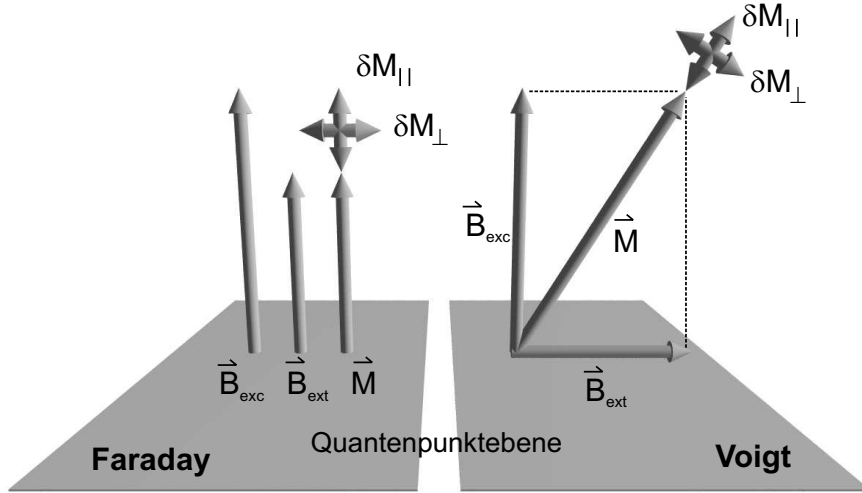


Abbildung 4.11: Schematisches Bild zur Veranschaulichung der relevanten Magnetfeld- und Magnetisierungsvektoren in Faraday- und Voigt-Geometrie.

Als nächsten Schritt substituiert man nun in der letzten Gleichung die magnetische Suszeptibilität $\partial M_{\parallel}/\partial B_{\parallel}$ durch die experimentell leicht zugängliche differentielle Zeemanverschiebung $\partial E/\partial B$. Dazu greift man auf die differentielle Form der Gl. 4.15 zurück, so dass folgender Ausdruck als Ergebnis resultiert:

$$FWHM_{exc} = \sqrt{8 \ln 2 \cdot B_{exc} \cdot k_B T \cdot \frac{\partial E}{\partial B}} \quad (4.33)$$

Diese Gleichung zeigt also eine Relation zwischen der Energieverschiebung und der PL-Halbwertsbreite im Magnetfeld auf. In ähnlicher Weise lässt sich auch ein Ausdruck für den Fall einer variablen Temperatur finden:

$$FWHM_{exc} = \sqrt{8 \ln 2 \cdot k_B T (T + T_0) \cdot \frac{\partial E}{\partial T}} \quad (4.34)$$

Die Fluktuation der Austauschenergie in Voigt-Geometrie

Legt man ein Magnetfeld senkrecht zur Wachstumsrichtung an, so ergibt sich ein Magnetisierungsvektor, der nicht mehr parallel zum Austauschfeld \vec{B}_{exc} orientiert ist. Dieses erhält nämlich aufgrund der Anisotropie des Schwerloch-g-Faktors die Wachstumsrichtung als Vorzugsachse. Das Gesamtfeld $\vec{B}_{exc} + \vec{B}_{ext}$ und damit die Magnetisierung ist daher gegen \vec{B}_{exc} geneigt. In Voigt-Geometrie tragen aus diesem Grund sowohl die longitudinalen als auch die transversalen Magnetisierungsfluktuationen zur PL-Linienbreite bei (Abb. 4.11).

4.6.2 Die Abbildung der Fluktuationen auf die PL-Linie

Abb. 4.12 zeigt die Magneto-PL-Spektren einzelner semimagnetischer Quantenpunkte gemessen in Faraday-Geometrie bei Detektion der σ^+ -Polarisation. Neben der starken Rotverschiebung aufgrund des riesigen Zeemaneffektes fällt hier eine dramatische Abnahme der Linienbreiten ins Auge.

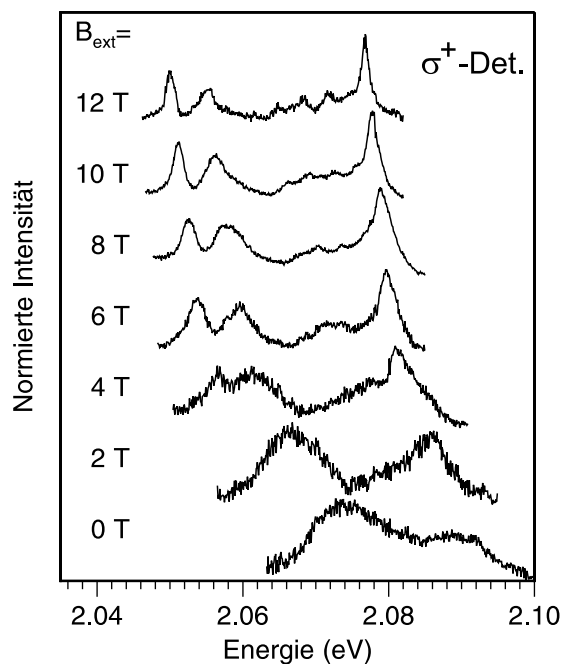


Abbildung 4.12: Magneto-PL-Spektren einer Apertur mit $\phi=250$ nm (Faraday-Geometrie). Die Messungen wurden am Institute of Physics in Chernogolovka durchgeführt.

Bei 0 T beträgt die Halbwertsbreite der einzelnen Linien noch einige meV, so dass es zu einem starken spektralen Überlapp kommt, der die quantitative Auswertung erschwert. Bei Erhöhung der Magnetfeldstärke findet man jedoch eine deutliche Verschmälerung der Linien und damit ein Aufbrechen vormals breiter Signale in mehrere einzelne Linien. Erst jetzt sind also wirklich einzelne Quantenpunkte identifizierbar. Im 12T-Feld liegen schließlich Halbwertsbreiten deutlich unterhalb von 2 meV vor, was durchaus vergleichbar ist mit Werten, wie sie für nichtmagnetische CdSe/ZnSe-Quantenpunkte gefunden wurden [Seu00a]. Das vorgestellte Fluktuationsmodell gibt eine unmittelbare Erklärung für die Abnahme der Linienbreite im Magnetfeld. So kommt man nämlich mit Erhöhung der Magnetisierung deren Sättigung immer näher.

Dies hat ein Absinken der Suszeptibilität zur Konsequenz und mündet nach Gl. 4.27 in einer Reduktion der Fluktuationen. Interessant ist ein qualitativer Vergleich des *unteren* Magnetfeld-Intervalls von 0 bis 6 T mit dem *oberen* Intervall von 6 bis 12 T. Während man im unteren Ausschnitt bei einer starken Energieverschiebung sehr breite Linien beobachtet, so findet man im oberen Ausschnitt bei nur geringer Zeemanverschiebung recht schmale Linien. Es deutet sich also eine Korrelation zwischen der Stärke der Zeemanverschiebung und der Linienbreite an. Dies ist qualitativ im Einklang mit den Voraussagen der Gl. 4.33.

Im folgenden soll nun dieser Zusammenhang detailliert betrachtet werden. Gemäß Gl. 4.33 des Fluktuationsmodells sollte es einen linearen Zusammenhang geben zwischen der quadrierten PL-Halbwertsbreite eines einzelnen Quantenpunktes und der differentiellen Zeemanverschiebung $\partial E/\partial B$. Eine entsprechende Auftragung wurde nun in Abb. 4.13 (links) gewählt und die experimentellen Werte eines beliebigen Quantenpunktes (QP1) eingetragen. Tatsächlich offenbart sich die erwartete funktionale Abhängigkeit der beiden Größen. Dies legt also nahe, dass die PL-Halbwertsbreite der einzelnen semimagnetischen Quantenpunkte bestimmt ist durch die Fluktuation der Magnetisierung innerhalb des nm-skalierten Exzitonvolumens.

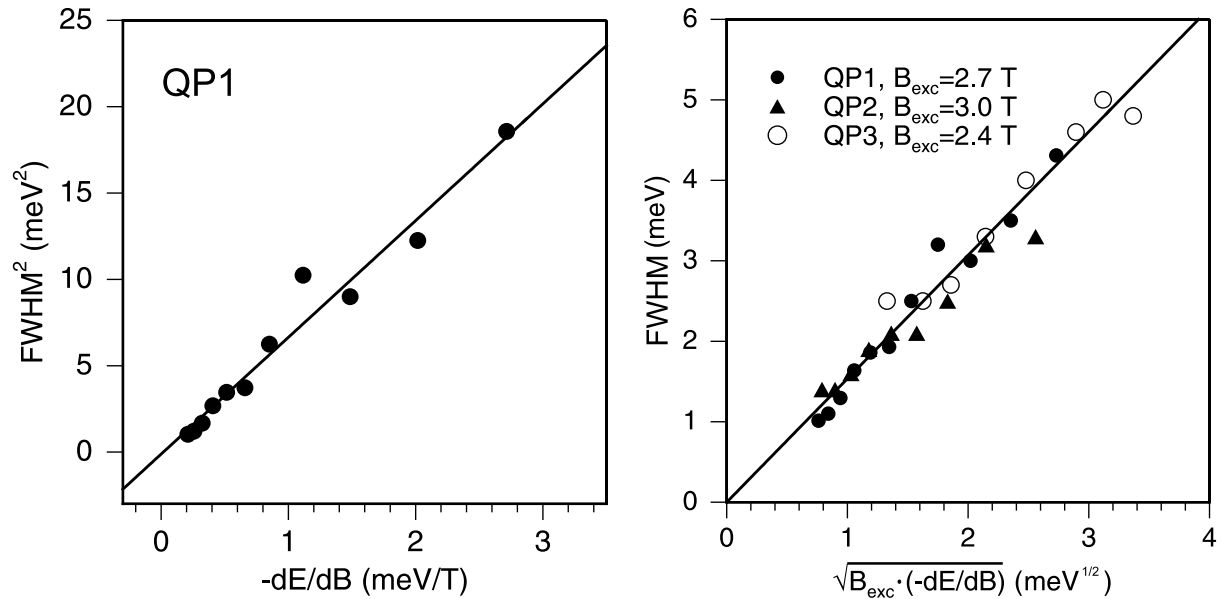


Abbildung 4.13: links: Die quadrierte PL-Halbwertsbreite eines einzelnen Quantenpunktes als Funktion der differentiellen Zeemanverschiebung. Die Linie entspricht einer linearen Anpassung. rechts: Die PL-Halbwertsbreite von drei einzelnen Quantenpunkten in Abhängigkeit des Arguments $(B_{\text{exc}} \cdot (-dE/dB))^{1/2}$. Der jeweilige quantenpunkt-individuelle Wert von B_{exc} wurde anhand einer Anpassung (vgl. rechtes Bild) ermittelt. Die Linie dient zur Führung des Auges.

Eine lineare Anpassung der Daten, basierend auf Gl. 4.33 erlaubt es nun, ein Austauschfeld B_{exc} von 2.7 T zu extrahieren. Im Abschn. 4.5 gelang dies bereits mittels Brillouin-Modellierung der Energieverschiebungen für einen anderen Quantenpunkt, wobei ein Wert von $B_{exc}=2.6$ T bestimmt wurde. Es liegt demnach eine sehr gute Übereinstimmung vor, welche die Konsistenz der Rechnungen demonstriert. Die Auswertung der Halbwertsbreite für weitere Quantenpunkte ist in Abb. 4.13 (rechts) zusammengefaßt dargestellt. Hierbei wurde das individuelle Austauschfeld der jeweiligen Quantenpunkte aus einer linearen Anpassung entsprechend Abb. 4.13 (links) entnommen und zur Reskalierung der Abszisse verwendet. Damit zeigt sich der universelle, quantenpunktunabhängige Zusammenhang zwischen der Linienbreite und $(B_{exc} \cdot (-\partial E/\partial B))^{1/2}$. Augenscheinlich kann man den Mittelwert des Austauschfeldes mit 2.7 T beziffern mit einer recht geringen Quantenpunkt-Variation von ca. ± 0.3 T.

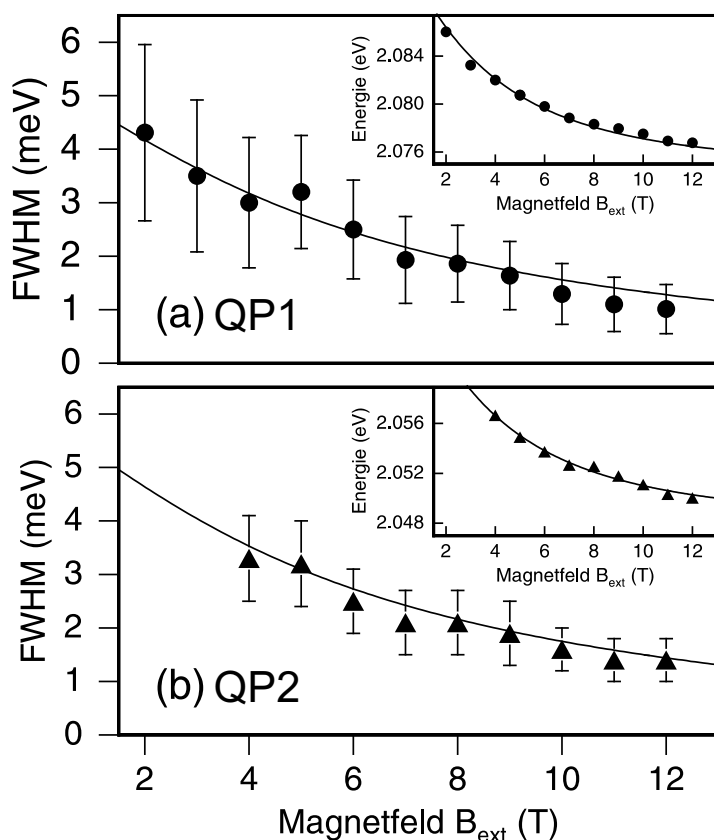


Abbildung 4.14: Die PL-Halbwertsbreite zweier Einzel-Quantenpunkte (QP1 und QP2) als Funktion der Magnetfeldstärke. Die Linien repräsentieren die theoretische Rechnung basierend auf Gl. 4.33 unter Verwendung von $\partial E/\partial B$ und B_{exc} , ermittelt aus der Anpassung der experimentellen Zeemanverschiebungen (Bildeinsätze).

Die kontinuierliche Abnahme der Linienbreite im Magnetfeld wird von Abb. 4.14 nochmals am Beispiel zweier Quantenpunkte im Detail dargestellt. Die experimentellen Werte der PL-Halbwertsbreite (Symbole) werden hier verglichen mit einer Rechnung auf der Basis von Gl. 4.33 (Linie). Die benötigten Daten ($\partial E/\partial B$ und B_{exc}) wurden dabei ausschließlich mittels einer Brillouin-Anpassung (Gl. 4.25) der Zeemanverschiebung in Erfahrung gebracht (Bildeinsätze). Man findet eine ausgezeichnete Übereinstimmung von Rechnung und Experiment. Damit erweist sich das Fluktuationsmodell als sehr tragfähig und man

kann demnach feststellen, dass die Linienverschmälerung im Magnetfeld alleine auf eine Reduktion der Magnetisierungsfluktuationen zurückzuführen ist. Diese ist bedingt durch eine Abnahme der magnetischen Suszeptibilität.

Aufgrund der strikt linearen Abhängigkeit der Austauschenergie von der Magnetisierung, gibt der funktionale Verlauf der PL-Halbwertsbreite in Abb. 4.14 direkt das funktionale Verhalten der Magnetisierungsfluktuationen wieder. Da das Exziton diese Fluktuationen auf einer nm-Skala abtastet, ist das entsprechende fluktuierende magnetische Moment μ_f äußerst gering. Dennoch kann man auch eine so kleine magnetische Größe quantitativ erschließen. Mit der Kenntnis des Austauschfeldes lässt sich nämlich rechnen:

$$\mu_f = \pm \frac{FWHM}{2 \cdot B_{exc}} \quad (4.35)$$

Mit $B_{exc}=2.7$ T ergibt sich beispielsweise für den Quantenpunkt QP1 aus Abb. 4.14 bei $B=0$ T ein Fluktuationmoment von $\mu_f=\pm 17\mu_B$ und bei $B=12$ T beträgt $\mu_f=\pm 4\mu_B$. Es sind also Schwankungen des magnetischen Moments von wenigen Bohrmagnetonen auflösbar.

Ergänzend zu den hier vorgestellten Magneto-PL-Messungen in Faraday-Geometrie wurden von Dorozkhin *et al.* an demselben Probenstück Messungen in Voigt-Geometrie durchgeführt [Dor03]. Es gelang wiederum eine konsistente Modellierung der Zeemanverschiebung und der PL-Linienbreite im Magnetfeld mittels Brillouin-Modell und Fluktuationsmodell. Interessanterweise zeigte sich im Vergleich zu den Messungen in Faraday-Geometrie eine weitaus geringere Abnahme der PL-Linienbreite im Magnetfeld. Zu erklären ist dies mit dem zusätzlichen Beitrag der transversalen Magnetisierungsfluktuationen, welche im Magnetfeld prinzipiell weniger stark unterdrückt werden.

Während ein Magnetfeld die statistischen Fluktuationen der Mn^{2+} -Spins unterdrückt, erwartet man bei einer Temperaturerhöhung intuitiv den gegenteiligen Effekt. Mit Gl. 4.34 bietet das Fluktuationsmodell auch hier eine adäquate Beschreibung. Wiederum findet sich eine direkte Korrelation zwischen der Energieverschiebung und der PL-Halbwertsbreite, diesmal jedoch in Abhängigkeit der Temperatur. Wertet man also die temperaturinduzierte Blauverschiebung der PL-Linie eines einzelnen Quantenpunktes aus (siehe Bildeinsatz Abb. 4.15), so lässt sich die Änderung der PL-Halbwertsbreite mit der Temperatur ohne weiteres berechnen (Abb. 4.15). Während im Bereich tiefer Temperaturen bis ca. 15 K eine signifikante Zunahme der Linienbreite vorausgesagt wird, findet darüberhinaus kaum noch eine Verbreiterung statt. Letzteres ist durchaus anschaulich, bedenkt man, dass im Grenzfall hoher Temperaturen die thermische Energie zwar linear mit der Temperatur ansteigt, die Suszeptibilität gemäß dem Curie-Gesetz (siehe Gl. 4.24) aber mit der inversen Temperatur skaliert. Der Vergleich mit den experimentellen Werten zeigt eine qualitative Übereinstimmung mit der berechneten Kurve. Jedoch liegen die gemessenen Linienbreiten systematisch über den berechneten Werten. Dies ist auf den spektralen Überlapp des analysierten Quantenpunktsignals mit benachbarten Linien zurückzuführen.

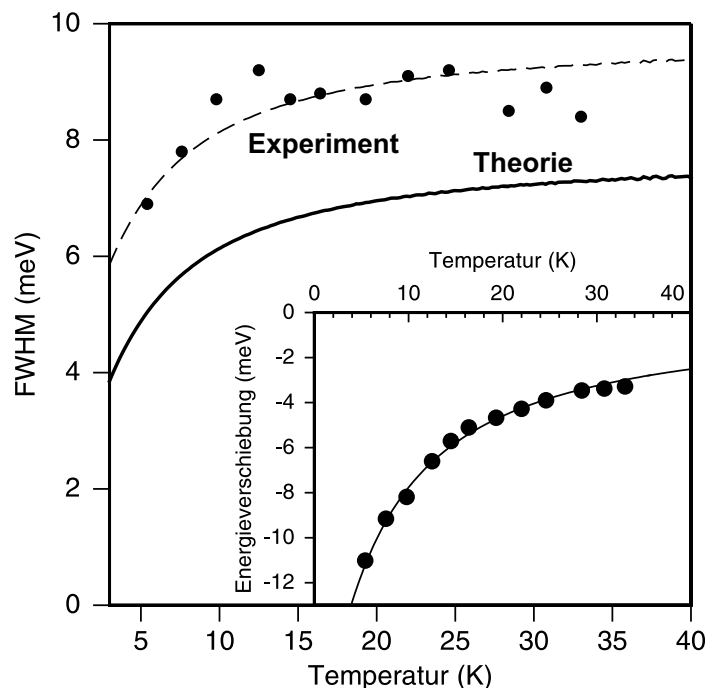


Abbildung 4.15: Die experimentelle und theoretische PL-Halbwertsbreite eines einzelnen Quantenpunktes als Funktion der Temperatur (siehe auch Abb. 4.7). Die Rechnung wurde anhand von Gl. 4.34 unter Verwendung der experimentellen Werte für $\partial E/\partial T$ (siehe Bildeinsatz) durchgeführt.

4.6.3 Die fluktuationbasierte Messung des Exziton-Volumens

Durch Analyse der Linienbreite eines einzelnen Quantenpunktes kann also quantitativ die Stärke der Magnetisierungsfluktuationen bestimmt werden. Wie in Gl. 4.27 bereits sichtbar hängt diese jedoch explizit von dem Volumen des betrachteten Spinsystems ab. Je kleiner dieses ist, desto ausgeprägter sind die Fluktuationen der Magnetisierung: $\langle \delta M^2 \rangle \propto 1/V$. Für die PL-Halbwertsbreite bedeutet dies gleichfalls eine $1/\sqrt{V}$ -Abhängigkeit. Da im vorliegenden Fall die räumliche Auswahl dieses Spinsystems von der Exziton-Wellenfunktion vorgenommen wird, eröffnet sich damit die Möglichkeit deren Ausdehnung zu ermitteln. Dazu greift man auf Gl. 4.33 zurück und berechnet zunächst das Austauschfeld B_{exc} aus dem Anstieg der quadrierten Halbwertsbreite über der differentiellen Zeemanverschiebung (siehe letzter Abschnitt). Da das Austauschfeld selbst nach Gl. 4.16 von bekannten Konstanten abgesehen nur vom Exziton-Volumen abhängt kann dieses nun extrahiert werden. Für ein mittleres Feld $B_{exc}=2.7$ T erhält man nach dieser Methode ein Volumen V_X von 2500 Elementarzellen bzw. 140 nm^3 (kubische Gitterkonstante von CdSe: $a=6.052 \text{ \AA}$ [Lan87a]). Nimmt man nun für die Höhe der Quantenpunkte ein Maß von 1 bis 2 nm an, wie es TEM-Aufnahmen nahelegen [Kum98], so ergibt sich mit einer Näherung der Quantenpunkt-Geometrie als Zylinder ein lateraler Exziton- bzw. Quantenpunkt-Durchmesser von 9 bis 13 nm. Dieser Wert ist gut mit TEM-Messungen an CdSe/ZnSe-Quantenpunkten vereinbar [Kum98]. Diese zeigen typischerweise linsenförmige, Cd-reiche Inseln mit lateralen Abmessung von ca. 10 nm auf.

4.7 Die optische Entmagnetisierung

Das magnetische Polaron ist ein illustres Beispiel für die mögliche Einflussnahme der Exzitonen auf die Mn^{2+} -Spins. In diesem Fall kommt es zum Aufbau einer Magnetisierung innerhalb des Exzitonvolumens. Wie im folgenden gezeigt werden soll, kann eine optische Anregung allerdings auch entmagnetisierend wirken, indem sie eine Heizung des Mn^{2+} -Spinsystems verursacht.

In Abb. 4.16 sind PL-Spektren eines einzelnen Quantenpunktes bei verschiedenen Anregungsleistungen und konstanter He-Badtemperatur von 2 K dargestellt. Die Laseranregung geschah hierbei unpolarisiert und mit einer Photonenergie ($\lambda=488$ nm) unterhalb der ZnMnSe-Bandlücke. Mit zunehmender Leistung zeigt sich zum einen eine kontinuierliche Verschiebung der PL-Linie zu höheren Energien und zum anderen eine stete Zunahme der Halbwertsbreite. Dieses Verhalten ist damit qualitativ identisch mit den Beobachtungen, die bei Erhöhung der Temperatur gemacht wurden (siehe Abschn. 4.4). Die Energieverschiebung wurde dort mit der thermischen Reduktion der Polaronmagnetisierung erklärt, während die Linienverbreiterung auf eine Erhöhung der Spinfluktuationen zurückgeführt wurde. Die Vermutung liegt also nahe, dass hier ein optischer Heizungseffekt vorliegt. Allerdings ist eine laserinduzierte Erwärmung des Gitters von einem derartigen Ausmaß angesichts der moderaten Laserleistung und der effektiven Kühlung im Flüssigheliumbad kaum vorstellbar. Andererseits ist diese auch gar nicht notwendig, da alleine die Spintemperatur im Mn^{2+} -System entscheidend ist für die sp-d-Austauscheffekte, wie das magnetische Polaron oder der riesige Zeemaneffekt.

Tatsächlich bildet das System der Mn^{2+} -Spins bei Anwesenheit eines Magnetfeldes ein eigenständiges thermodynamisches Reservoir. Die Spintemperatur ergibt sich dabei aus der statistischen Besetzung der zeeman-aufgespaltenen Spinzustände ($m_S = \pm 5/2, \pm 3/2, \pm 1/2$)

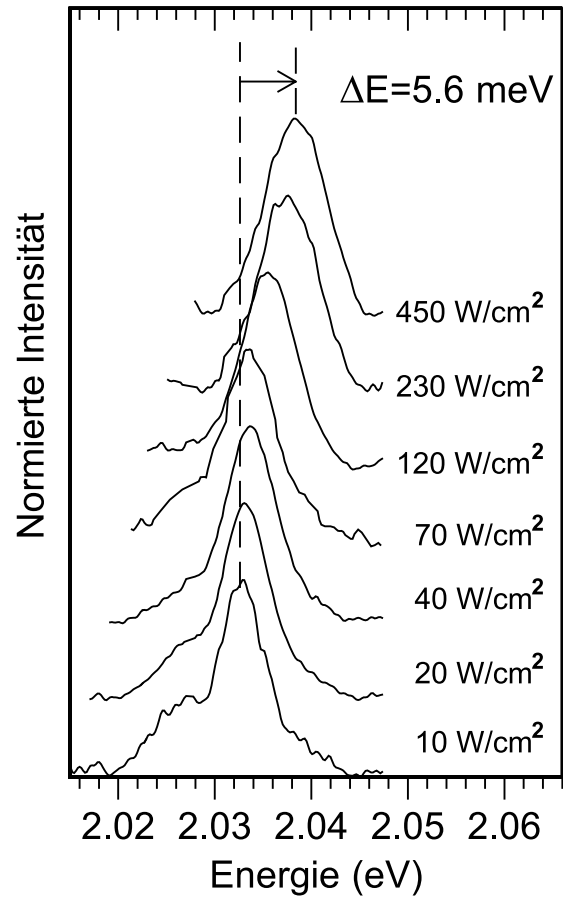


Abbildung 4.16: PL Spektren eines einzelnen Quantenpunktes bei unpolarisierter Anregung mit $\lambda=488$ nm und verschiedenen Anregungsleistungen. Die Gittertemperatur beträgt 2 K.

gemäß dem Boltzmann-Faktor $\exp(-m_S g_{Mn} \mu_B B / k_B T_{Mn})$. Bei einer Spintemperatur von $T_{Mn} = 0$ K wird nur der unterste Spinzustand $m_S = -5/2$ besetzt entsprechend einer vollständigen Spinpolarisation. Dagegen bedeutet eine unendliche Spintemperatur eine Gleichbesetzung aller Spinzustände m_S und damit eine vollständige Spinunordnung.

Wie verschiedene Untersuchungen erwiesen, kann die Mn^{2+} -Spintemperatur von freien Ladungsträgern, erzeugt durch Laseranregung, beeinflusst werden [Kul99b, Koe00, Kel01]. Dies basiert auf den Nicht-Diagonalelementen des Austausch-Hamiltonoperators (Gl. 4.8), welche eine Spinflip-Streuung zwischen den freien Ladungsträgerspins und den Mn^{2+} -Spins herbeiführen [Sem81]. Im Rahmen dieses Mechanismus kann eine Heizung des Mn^{2+} -Spinsystems, wie sie sich im Experiment andeutet, wie folgt verstanden werden. Aufgrund der unpolarisierten optischen Anregung erhalten die erzeugten freien Ladungsträger eine beliebige Spinorientierung. Mittels Spinflip-Streuung wird diese Spinunordnung teilweise in das geordnete Mn^{2+} -Spinsystem transferiert. Dies bedeutet, dass höherenergetische Spinzustände m_S stärker besetzt werden, was einer erhöhten Spintemperatur gleichkommt.

Gleichzeitig wird das Spinsystem jedoch gekühlt durch die Ankopplung an das Gitter. Die Effizienz dieses Prozesses ist bestimmt durch die Spin-Gitter-Relaxationszeit τ_{SLR} , welche stark von der Mn-Konzentration abhängt [Str92, Sca96]. Beispielsweise konnte für CdMnTe mit einem Mn-Gehalt von $x=0.01$ ein τ_{SLR} -Wert in der Größenordnung von 10^{-5} s ermittelt werden. Dagegen beträgt für $x=0.05$ die Relaxationszeit bereits 10^{-7} s. Letztlich wird die Spintemperatur also durch das Wechselspiel der optischen Heizung und der Gitterkühlung bestimmt.

Vergleicht man die Energieverschiebungen, die bei Variation der Temperatur beobachtet wurden mit jenen die bei Änderung der Anregungsleistung auftreten ($\Delta E = 5.6$ meV), so kann man bei einer Anregungsdichte von 450 W/cm² auf einen spinheizungsbedingten Temperaturanstieg von ca. 10 K schließen. Die Zunahme der Linienbreite von 5 auf 8 meV weist gleichfalls auf einen Effekt in dieser Größenordnung hin. Spinheizungseffekte aufgrund unpolarisierter optischer Anregung wurden bereits an semimagnetischen Quantenfilmen mit geringer Mn-Konzentration beobachtet. Hierbei zeigte sich im externen Magnetfeld eine verminderte Zeemanverschiebung bei Erhöhung der Anregungsleistung [Kel01]. Betrachtet man jedoch die dort festgestellten Spinheizungseffekte, so ist bei einer sehr hohen Mn-Konzentration von $x=0.25$, wie sie hier vorliegt, eigentlich kaum eine nennenswerte Temperaturerhöhung zu erwarten. Einerseits ist die Spin-Gitter-Relaxationszeit äußerst kurz und zum anderen fällt die Wärmekapazität des Mn^{2+} -Spinsystems auf den ersten Blick sehr groß aus. Zu beachten ist jedoch, dass lediglich die Mn^{2+} -Spins, welche einem Magnetfeld ausgesetzt sind zum Mn^{2+} -Spin-Wärmereservoir beitragen. Da bei dem vorgestellten Experiment (Abb. 4.16) kein externes Feld angelegt wurde, gehören also nur die Mn^{2+} -Spins im Austauschfeld der Quantenpunkt-Exzitonen zum Wärmereservoir. Dementsprechend ist die Wärmekapazität der Mn^{2+} -Spins im Nullfeld weitaus geringer als im externen Feld. Dies könnte also den starken Spinheizungseffekt trotz hoher Mn-Konzentration plausibel machen.

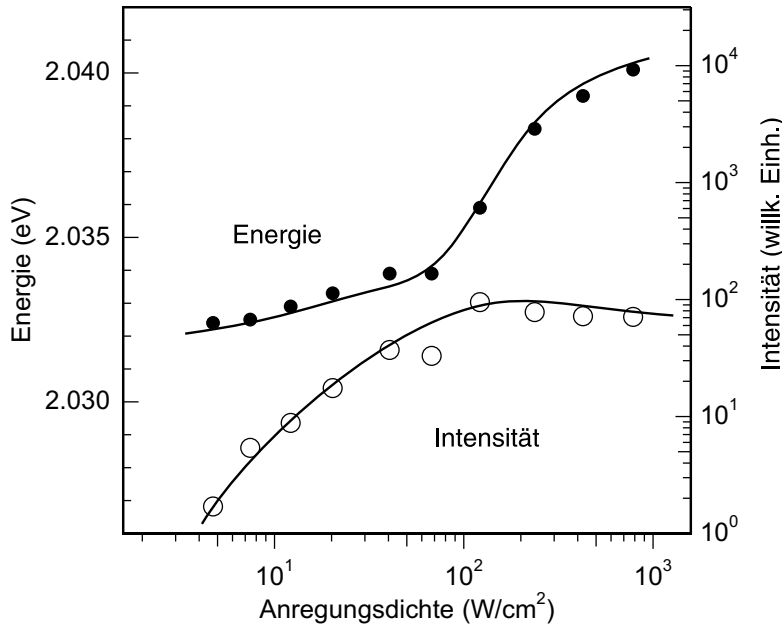


Abbildung 4.17: PL Energie und Intensität eines einzelnen Quantenpunktes als Funktion der Leistungsdichte.

Die Energieverschiebung des Quantenpunktes ist in Abb. 4.17 als Funktion der Anregungsdichte nochmals dargestellt. Zusätzlich wurde die PL-Intensität der Linie ausgewertet und aufgetragen. Man stellt fest, dass die Verschiebung der Exzitonenergie unterhalb einer Dichte von 10^2 W/cm² eher gering ist, darüber jedoch wesentlich stärker ausfällt. Interessanterweise, zeigt auch der Intensitätsverlauf gerade bei dieser kritischen Dichte den Übergang vom linearen Anstieg in die Sättigung. Dies deutet einen Zusammenhang zwischen der Quantenpunktbesetzung und der Spinheizungseffizienz an. Während im Bereich des linearen Intensitätsanstieges im zeitlichen Mittel sich *maximal* ein Exziton im Quantenpunkt befindet, so trifft man im Regime der Sättigung *minimal* ein Exziton an.

Lokalisieren zwei Exzitonen in einem Quantenpunkt, so stellt das Biexziton mit einer antiparallelen Ausrichtung der beiden Exzitonspins den Grundzustand dar. Jedoch zeigte sich, dass im vorliegenden Fall keine Biexzitonen gebildet werden. So sollten entgegen der Beobachtung, Biexzitonen im PL-Spektrum als Linien mit einem überlinearen Intensitätsanstieg bei Erhöhung der Anregungsleistung auftreten. Des weiteren wäre zu erwarten, dass Biexzitonen im Magnetfeld anders als Exzitonen sowohl σ^+ - als auch σ^- -Licht emittieren, da beide Spinorientierungen vorliegen. Auch hierfür fanden sich im Experiment keine Belege. Eine mögliche Erklärung für das Fehlen der Biexzitonen bietet der Augerprozess, welcher eine Mehrfachbesetzung von Quantenpunkten verhindern kann [Kli00, Wan03]. Dies bedeutet also, dass eine weitere Lokalisation von Exzitonen in die Quantenpunkte nicht möglich ist. Die Exzitonen bleiben delokalisiert und können weiter zur Spinheizung beitragen. Die starke Zunahme der Spinheizung bei Sättigung der PL-Intensität ist also auf das vermehrte Vorkommen delocalisierter Ladungsträger zurückzuführen.

Kapitel 5

Ferromagnet-DMS-Hybride

Metallische Steuerelektroden, sogenannte Gates, werden heutzutage routinemäßig auf den Halbleiter aufgebracht, um in diesem die Ladungsträger elektrostatisch zu manipulieren. Prominente Beispiele hierfür sind der Feldeffekt-Transistor oder der CCD-Chip¹. In Analogie zu diesen elektrostatischen Gates sollte es gleichfalls möglich sein, magnetische Gates [Cro97] zu realisieren, indem man ein ferromagnetisches Metall (FM) als Elektrodenmaterial verwendet. Das vom Ferromagneten erzeugte magnetische Streufeld durchsetzt dann den Halbleiter und modifiziert lokal die elektronischen Zustände der Ladungsträger. Ein solcher Effekt konnte bereits mittels Transport-Messungen an einem 2DEG² nachgewiesen werden [Ye95]. Als Besonderheit der magnetischen im Gegensatz zu elektrischen Feldern ist deren Fähigkeit hervorzuheben eine Aufspaltung der Spin-Niveaus zu bewirken. Dies erlaubt es statt der elektrischen Ladung den Spin der Teilchen zu kontrollieren. Mit der lithographischen Miniaturisierung des Ferromagneten können zudem die Spins prinzipiell auf mesoskopischen Längenskalen selektiv adressiert werden. Solche Funktionalitäten sind gerade für die Spintronik interessant, die tatsächlich den Spin als Informationsträger zu erschließen versucht.

Entscheidend für die Stärke der Kopplung zwischen dem Ferromagneten und den Ladungsträger-Spins im Halbleiter ist in besonderem Maße deren g-Faktor. Bei gewöhnlichen Halbleitern ist dieser allerdings in der Größenordnung von 1, so dass mit realistischen Streufeldern nur sehr geringe Spinaufspaltungen induziert werden können. Deshalb schlugen Crowell *et al.* [Cro97] erstmals die Verwendung semimagnetischer Halbleiter vor, die mit Mn²⁺-Spins dotiert sind. Die Austauschkopplung zwischen diesen lokalisierten Spins und den Ladungsträger-Spins liefert effektive g-Faktoren in der Größenordnung von 100 (siehe Kapitel 4). Auf diesem Wege sind also Spinaufspaltungen im meV-Bereich darstellbar, welche damit auch optisch nachweisbar sein sollten. Entsprechende Hinweise fand man kürzlich bei spektroskopischen Untersuchungen an einem semimagnetischen Quantenfilm in der Nähe von mikrometergroßen Fe-Strukturen [Kos01b, Kud02]. Dabei erschien bei lokaler Anregung am Rand des Ferromagneten ein energetisch verschobenes PL-Signal,

¹CCD: Charge Coupled Device

²2DEG: 2-Dimensional Electron Gas

welches Quantenfilm-Exzitonen unter dem Einfluss des magnetischen Streufeldes zugeschrieben wurde. Bedingt durch die großen Abmessungen der ferromagnetischen Strukturen traten nennenswerte Streufelder lediglich an den FM-Kanten auf. Reduziert man die geometrischen Abmessungen des Ferromagneten in den sub- μm -Bereich, so ergibt sich eine qualitativ neue Situation. Zum einen lassen magnetostatische Rechnungen erwarten, dass sich das Maximum des Streufeldes im Quantenfilm von den Kanten des FM unter dessen Mitte verschiebt. Zum anderen können sich die Eigenschaften des Ferromagneten selbst signifikant ändern, indem z.B. die Domänengröße vergleichbar wird mit der FM-Größe oder geometriebedingte Anisotropien wichtig werden. Ziel der hier vorgestellten Arbeiten war es, den Einfluss von ferromagnetischen Dysprosium-Drähten mit sub- μm -Breiten auf die exzitonischen Spin-Niveaus in einem semimagnetischen Quantenfilm zu verfolgen (siehe Abb. 5.1). Insbesondere, wurde dazu durch Abnahme des Substrates der spektroskopische Zugang auf die Rückseite des Halbleiters möglich gemacht. Damit konnten erstmalig auch die Halbleiterzonen unterhalb der lichtundurchlässigen Ferromagnete auf Streufeldefekte hin analysiert werden.

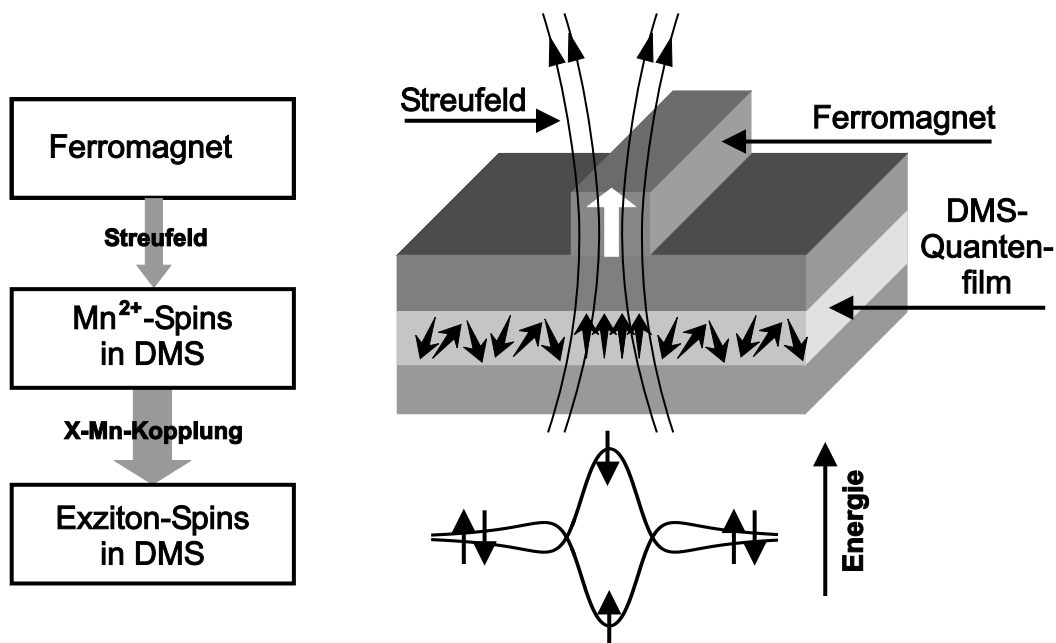


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung einer Ferromagnet-DMS-Hybridstruktur. Zu sehen ist die erwartete Auswirkung des FM-Streufeldes auf das Mn^{2+} -Spinsystem und die exzitonischen Spin-Niveaus im semimagnetischen Quantenfilm.

Im folgenden sollen zunächst die Grundlagen zu den Ferromagneten diskutiert werden. Dies schließt die Berechnung von Streufeldern sowie die Betrachtung der Magnetisierungscharakteristik ein. Nach Schilderung der Probenpräparation folgen die Messungen an einem ferromagnetischen Drahtgitter und die orts aufgelöste Spektroskopie an einem einzelnen FM-Draht.

5.1 Grundlagen mikroskopischer Ferromagnete

5.1.1 Das Streufeld eines homogen magnetisierten Quaders

Die Berechnung des Streufeldes \vec{H}_S eines Körpers mit der Magnetisierung \vec{M} fusst auf der Lösung der bekannten Maxwell-Gleichungen, die in SI-Einheiten folgende Gestalt haben:

$$\mathbf{div} \vec{B} = \mathbf{div} (\vec{H}_S + \vec{M}) = 0 \quad (5.1)$$

$$\mathbf{rot} \vec{H} = \vec{j} + \dot{\vec{D}} = 0 \quad (5.2)$$

Da hier weder freie Ströme \vec{j} noch Verschiebungsströme $\dot{\vec{D}}$ vorhanden sind, liegt das Streufeld \vec{H}_S als konservatives Kraftfeld vor. Daher kann man es analog zur Elektrostatik als Gradient eines skalaren Potentials ϕ schreiben, welches die Poissongleichung erfüllt.

$$\Delta \phi = -\rho_m \quad (5.3)$$

$$\rho_m = \mathbf{div} \vec{H}_S = -\mathbf{div} \vec{M} \quad (5.4)$$

Hierbei wurde eine magnetische Ladungsdichte ρ_m eingeführt, welche die Quelle des Streufeldes darstellt. Diese ad-hoc-Definition einer magnetischen Ladung entbehrt aufgrund der Nichtexistenz magnetischer Monopole natürlich einer allgemeinen Gültigkeit. Dennoch findet sie im Rahmen der Magnetostatik für den hier betrachteten Spezialfall häufig Verwendung, da die offenkundigen Parallelen zur Elektrostatik die Anschaulichkeit fördern. Die Lösung für das magnetische Feld \vec{H}_S liefert schließlich, ähnlich dem Coulomb-Gesetz, folgendes Ergebnis:

$$\vec{H}_S(\vec{r}) = -\mathbf{grad} \phi = \frac{1}{4\pi} \int \frac{\rho_m(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} (\vec{r} - \vec{r}') d^3r' \quad (5.5)$$

Durch Einsetzen von Gl. 5.4 und die Substitution $\vec{R} \equiv \vec{r} - \vec{r}'$ erhält man schließlich:

$$\vec{H}_S(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi} \int (-\mathbf{div} \vec{M}) \frac{\vec{R}}{R^3} dV \quad (5.6)$$

Im Falle eines endlichen magnetisierten Körpers mit dem Volumen V ergibt sich an dessen Oberfläche S ein Magnetisierungssprung auf $M=0$ außerhalb des Körpers. Dieses bedeutet eine Singularität in $\mathbf{div} \vec{M}$, was einen Beitrag zum Integral aus Gl. 5.6 liefert [Ber98a]:

$$\vec{H}_S(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi} \oint_S \vec{M} \cdot \vec{n} \frac{\vec{R}}{R^3} dA + \frac{1}{4\pi} \int_V (-\mathbf{div} \vec{M}) \frac{\vec{R}}{R^3} dV \quad (5.7)$$

Gl. 5.7 erfüllt damit auch die Kontinuitätsbedingungen für \vec{H}_S an den Grenzflächen. So ist die Tangentialkomponente von \vec{H}_S an der Grenzfläche stetig, während die Komponente

senkrecht zur Fläche einen Sprung um $\vec{M} \cdot \vec{n}$ erfährt.

Da bei einem homogen magnetisierten Körper keine Divergenzen der Magnetisierung im Volumen auftreten, verschwindet der zweite Term, so dass lediglich der erste Term betrachtet werden muss. Dabei handelt es sich um ein Oberflächenintegral, wobei nur die Normalkomponente der Magnetisierung beiträgt. Man interpretiert daher den Faktor $\vec{M} \cdot \vec{n}$ in der Regel als Oberflächendichte der magnetischen Ladungen σ , welche die alleinige Quelle für das Streufeld bildet. Magnetisiert man nun im speziellen einen quaderförmigen Körper parallel zu einer der Achsen des Quaders (siehe Abb. 5.2), so entstehen zwei entgegengesetzt geladene planparallele Flächen. Das resultierende Streufeld entspricht damit exakt dem elektrischen Feld eines endlich ausgedehnten Plattenkondensators. Basierend auf Gl. 5.7 ergibt sich für das Streufeld des Magneten aus Abb. 5.2 folgender Ausdruck:

$$\vec{H}_S(\vec{r}) = \frac{M}{4\pi} \int_{\substack{|x'| < b/2 \\ |y'| < \ell/2}} \frac{\vec{r} - \vec{r}'}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} dx' dy' \Big|_{z'=h/2} - \frac{M}{4\pi} \int_{\substack{|x'| < b/2 \\ |y'| < \ell/2}} \frac{\vec{r} - \vec{r}'}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} dx' dy' \Big|_{z'=-h/2} \quad (5.8)$$

Betrachtet man hier lediglich die z-Komponente, so lautet das Resultat:

$$H_S^z(\vec{r}) = \frac{M}{4\pi} \int_{\substack{|x'| < b/2 \\ |y'| < \ell/2}} \frac{z - h/2}{[(x - x')^2 + (y - y')^2 + (z - h/2)^2]^{\frac{3}{2}}} dx' dy' + \\ - \frac{M}{4\pi} \int_{\substack{|x'| < b/2 \\ |y'| < \ell/2}} \frac{z + h/2}{[(x - x')^2 + (y - y')^2 + (z + h/2)^2]^{\frac{3}{2}}} dx' dy' \quad (5.9)$$

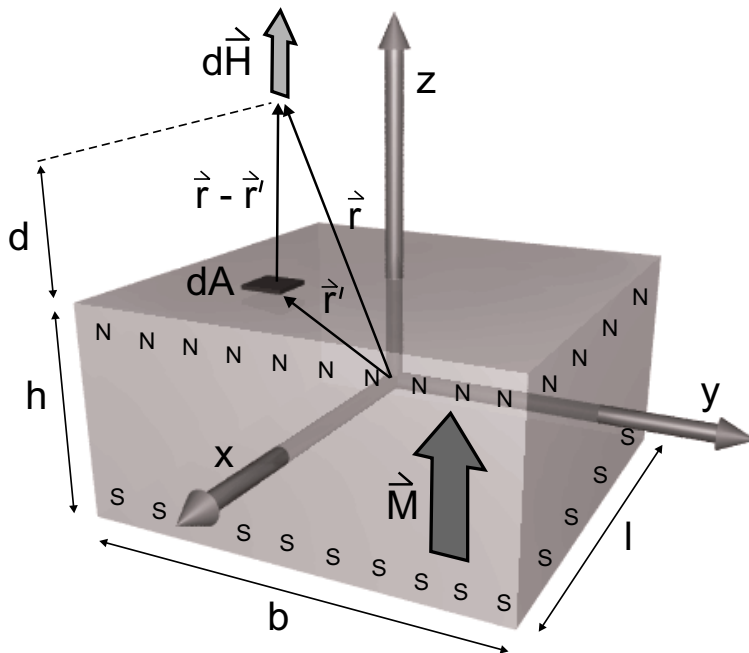


Abbildung 5.2: Berechnung des magnetischen Streufeldes eines homogen magnetisierten Quaders.

Für den Grenzfall eines flachen Drahtes ($l \rightarrow \infty$ und $h, z \ll b$) kann zur Berechnung des Streufeldes eine approximative Formel verwendet werden [Pee00].

$$H_S^z(\vec{r}) = \frac{M h}{2\pi} \left[\frac{x + b/2}{(x + b/2)^2 + z^2} - \frac{x - b/2}{(x - b/2)^2 + z^2} \right] \quad (5.10)$$

Abb. 5.3 stellt Rechnungen zum Streufeld $B_S^z = \mu_0 \cdot H_S^z$ von magnetischen Drähten basierend auf Gl. 5.9 dar. Betrachtet wird hierbei das Feld in der xy -Ebene in einem Abstand

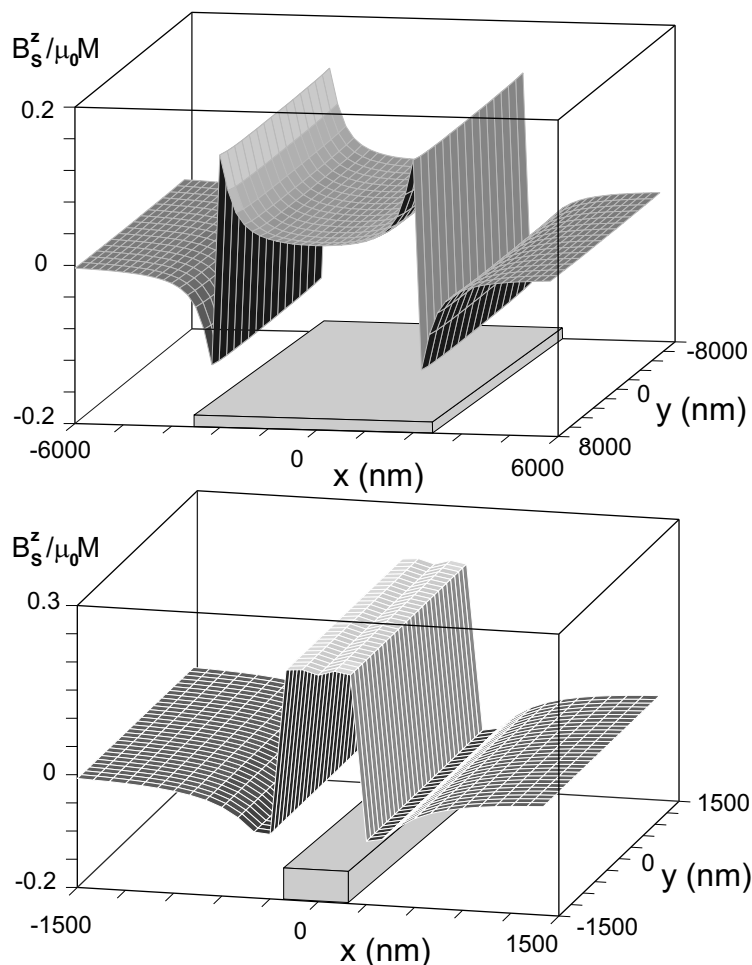


Abbildung 5.3: Magnetisches Streufeld (z -Komponente) pro Magnetisierungseinheit in der xy -Ebene für Drähte verschiedener Breiten: oben: $b=5000$ nm, unten: $b=500$ nm, sonstige Abmessungen: $h=200$ nm, $d=z-h/2=35$ nm, $l \rightarrow \infty$. Diese Rechnungen wurden numerisch unter Verwendung von Gl. 5.9 durchgeführt.

$d = z - h/2 = 35$ nm vom magnetisierten Draht, welcher der Tiefe des DMS-Quantenfilms in den nachfolgenden Messungen entspricht. Ein positives (negatives) Vorzeichen des Streufeldes B_S bedeutet, dass der Feldvektor einen Anteil in (entgegen) der Richtung des Magnetisierungsvektors besitzt. Die Rechnung im obigen Bildteil wurde für einen breiten

($b=5 \mu\text{m}$) und flachen ($h=200 \text{ nm}$) Draht durchgeführt. Deutlich zu erkennen sind hier Magnetfeldspitzen entlang der Kanten des Drahtes. Dagegen finden sich unter der Mitte des Drahtes entgegen der Intuition erheblich geringere Feldwerte. Als Ursache für das Feld treten also alleine die Kanten auf. Folgerichtig ist auch im Grenzfall einer unendlich ausgedehnten Magnetplatte der Raum außerhalb der Platte vollkommen feldfrei. Reduziert man dagegen die Breite des Drahtes bis auf sub- μm -Maße, z.B. $b=500 \text{ nm}$ (siehe Abb. 5.3 unten), so nimmt die Feldstärke unter dem Draht beträchtlich zu und die Spitzen an den Kanten verschwinden. Diese Abhängigkeit der Streufeldstärke von der Drahtbreite b ist in Abb. 5.4 (rechts) detailliert dargestellt. Mit Abnahme der Drahtbreite erhöht sich das magnetische Feld, bis ein Maximum bei $b=150 \text{ nm}$ erreicht wird. Eine weitere Verringerung von b bedeutet schließlich eine Wiederabnahme von B_S , da die Oberflächenladungen als Quelle des Magnetfeldes weniger werden. Die Reichweite des Streufeldes kann anhand von Abb. 5.4 (links) beurteilt werden. Hier wird deutlich, dass an schmalen Drähten einerseits große Felder auftreten können, die jedoch auch weniger weit in den Raum hinaus reichen. Der DMS-Quantenfilm sollte demnach nicht zu tief im Halbleiter vergraben sein.

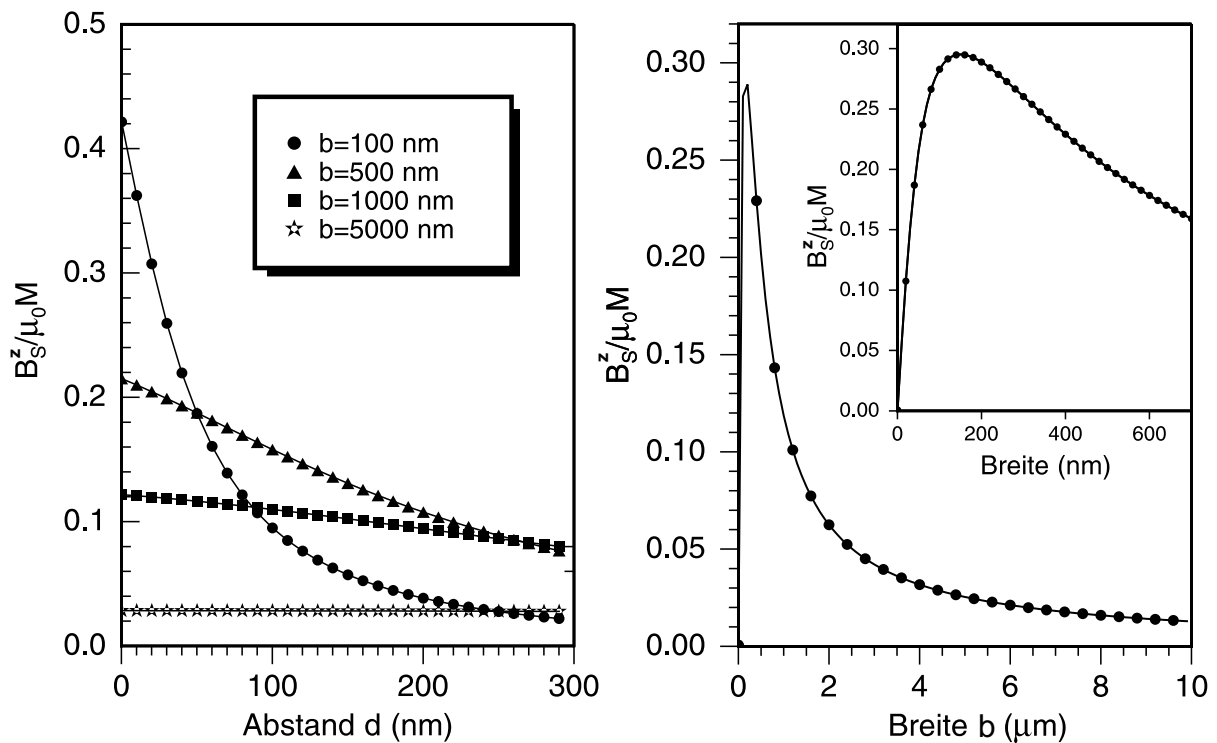


Abbildung 5.4: links: Streufeld unter der Drahtmitte ($x=0, y=0$) als Funktion des Abstandes d für Drähte unterschiedlicher Breite. rechts: Streufeld unter der Drahtmitte ($x=0, y=0$) bei einem Abstand $d=35 \text{ nm}$ in Abhängigkeit der Drahtbreite b . Die Höhe des Drahtes beträgt für beide Rechnungen $h=200 \text{ nm}$.

5.1.2 Dysprosium als Ferromagnet

Bei der Auswahl des Materials zur Herstellung der Magnetstrukturen spielt die erreichbare Magnetisierung eine herausragende Rolle, da sie die Stärke des magnetischen Streufeldes mitbestimmt. Andererseits bietet ein ferromagnetisches Material aufgrund einer remanenten Magnetisierung die Möglichkeit auch ohne Anlegen eines äußeren Magnetfeldes ein Streufeld zu erzeugen. In diesem Sinne ist Dysprosium ein geeigneter Kandidat. Es zeigt ein ferromagnetisches Verhalten unterhalb der Curie-Temperatur $T_C=85$ K [Beh58] und besitzt zudem als elementares Metall mit 10.6 Bohrmagnetonen [Beh58] das größte magnetische Moment pro Atom. Wie die Magnetisierungskurven in Abb. 5.5 zeigen, liegt die Sättigungsmagnetisierung für eine Temperatur von 4 K damit bei ca. $M_{sat}=350$ emu/g, was in SI-Einheiten $\mu_0 M_{sat}=3.75$ T entspricht³. Damit sollten also magnetische Streufelder bis zu 1 T darstellbar sein (siehe vorigen Abschnitt). Die Sättigungsfeldstärke H_{sat} weist einen Wert von ca. 1 kOe (SI: 0.1 T) auf. Während man die Curie-Temperatur und die Sättigungsmagnetisierung als intrinsische Materialeigenschaft bezeichnen kann, so zeigen die Werte, welche das Hystereseverhalten charakterisieren, große Variationen. Je nach geometrischer Größe, Form oder Vorbehandlung der Probe zum Beispiel, können sich also die remanente Magnetisierung M_R , das Koerzitivfeld H_C und die Suszeptibilität χ stark ändern.

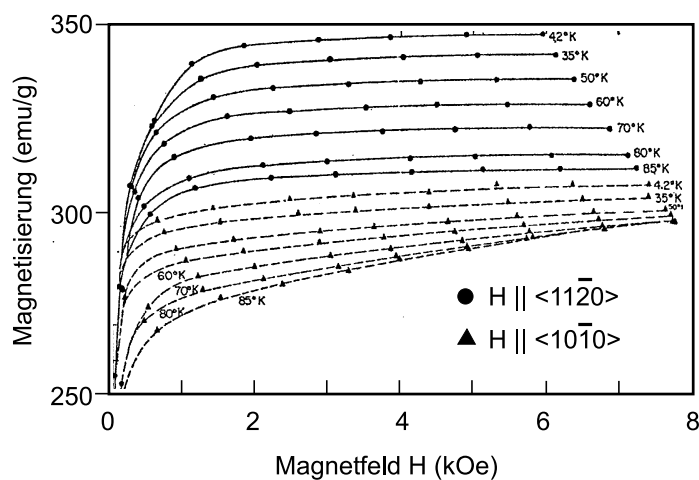


Abbildung 5.5: Kryogene Magnetisierungskurven von Dysprosium für zwei verschiedene Kristallachsen und unterschiedliche Temperaturen nach Behrendt *et al.* [Beh58].

5.1.3 Die Magnetisierung eines ferromagnetischen Quaders

Die Magnetisierungskurve eines typischen Ferromagneten ist in Abb. 5.6 dargestellt. Nach einem linearen Anstieg mit einer großen Suszeptibilität ($\chi=10^2$ - 10^3) geht die Magnetisierung schließlich in die Sättigung über. Zu beachten ist jedoch, dass die Magnetisierung hier nicht über das externe Magnetfeld H_{ext} , sondern über das interne Feld H_{int} aufgetragen

³Umrechnung CGS zu SI: $1 \text{ G}=10^{-4} \text{ T}$, $1 \text{ Oe}=10^3/(4\pi) \text{ A/m}$, $1 \text{ emu/g}=1 \text{ Am}^2/\text{kg}$

wurde. Das externe Feld wird nämlich im Innern des Magneten durch das Entmagnetisierungsfeld H_N abgeschwächt, welches genauso wie das äußere Streufeld durch die magnetischen Oberflächenladungen erzeugt wird. Man kann für das interne Feld also folgenden Ausdruck ansetzen:

$$H_{int} = H_{ext} - H_N = H_{ext} - \underline{\underline{N}} \cdot M \quad (5.11)$$

Das Entmagnetisierungsfeld hängt dabei von der Magnetisierung M und dem Entmagnetisierungstensor $\underline{\underline{N}}$ ab. Letzterer wird bestimmt durch die Probengeometrie. Für den Spezialfall eines Rotationsellipsoids entartet der Tensor zu einem Skalar, dem Entmagnetisierungsfaktor N , welcher Werte zwischen 0 und 1 annehmen kann. In Richtung der Magnetisierung gilt dabei tendenziell: Je kleiner das Aspektverhältnis (Höhe zu Breite) ist, desto größer

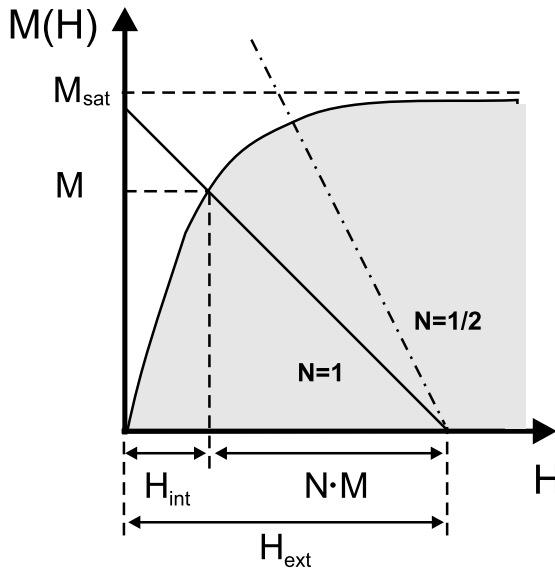


Abbildung 5.6: Graphische Bestimmung der Magnetisierung eines Ferromagneten unter Berücksichtigung der Entmagnetisierung.

ist der Entmagnetisierungstensor bzw. -faktor. Bei senkrechter Magnetisierung einer dünnen Platte beispielsweise nähert sich N dem Wert 1. Magnetisiert man dagegen einen Draht entlang seiner langen Achse, so verschwinden die Entmagnetisierungsfelder ($N \rightarrow 0$). Beliebige geformte Ferromagnete weisen demnach im allgemeinen eine Form-Anisotropie auf mit leicht und schwer zu magnetisierenden Achsen. Abb. 5.6 veranschaulicht eine Möglichkeit zur graphischen Bestimmung der Magnetisierung. Diese beruht auf dem Schnitt der Magnetisierungskurve mit der Entmagnetisierungsgeraden. Letztere besitzt eine Steigung von $1/N$ und ist an der H -Achse bei $H = H_{ext}$ aufgehängt. Abzulesen sind neben der Magnetisierung das interne Feld H_{int} und das Entmagnetisierungsfeld H_N . Die Magnetisierung läßt sich im Bereich des linearen Anstiegs mit $M = \chi \cdot H_{int}$ auch rechnerisch ermitteln. Aus Gl. 5.11 folgt damit ohne weiteres:

$$M = \frac{\chi H_{ext}}{1 + N \chi} \approx \frac{1}{N} H_{ext} = \chi_{eff} H_{ext} \quad \text{für } N \chi \gg 1 \quad (5.12)$$

Die hier eingeführte effektive Suszeptibilität χ_{eff} ist nun keine Materialkonstante mehr, sondern ein geometrieabhängiger Faktor. Da im speziellen quaderförmige Körper inhomogene Entmagnetisierungsfelder hervorbringen, wird auch die Magnetisierung, selbst im homogenen Magnetfeld, Inhomogenitäten aufweisen. Da bei den Streufeldrechnungen in Abschn. 5.1.1 aber von einer homogenen Magnetisierung ausgegangen wurde, sind diese nur als erste Näherung zu verstehen.

5.2 Probenpräparation und Messprinzip

Die Herstellung der untersuchten Hybrid-Probe umfasste im wesentlichen drei Arbeitsschritte: (1) das epitaktische Wachstum der Halbleiter-Heterostruktur (2) die lithographische Definition der ferromagnetischen Dysprosiemelemente sowie (3) das mechanische und ätztechnische Entfernen des GaAs-Substrates.

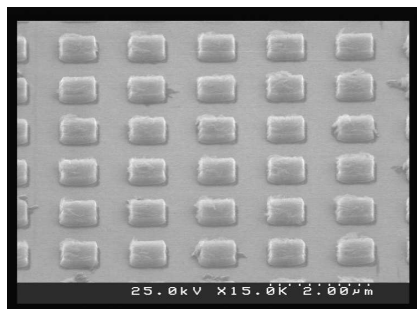
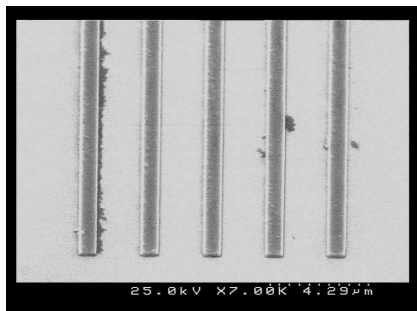


Abbildung 5.7: Elektronenmikroskopische Aufnahme von ferromagnetischen Drähten mit einer Breite von $1 \mu\text{m}$ (oben) und quadratischen Punkten mit einer Kantenlänge von 500 nm (unten).

(1) Das Wachstum der II-VI-Halbleiterstruktur wurde an der Humboldt-Universität in Berlin durchgeführt. Mittels MBE-Verfahren wurde auf einem (100)-GaAs-Substrat zunächst eine ZnSe-Pufferschicht mit einer Dicke von $1 \mu\text{m}$ aufgebracht. Es folgte der DMS-Quantenfilm, bestehend aus 13 ML $\text{Zn}_{0.77}\text{Cd}_{0.15}\text{Mn}_{0.08}\text{Se}$. Als abschließende Deckschicht wurden 25 nm ZnSe aufgewachsen.

(2) Die lithographische Darstellung der ferromagnetischen Elemente beinhaltete die Elektronenstrahlolithographie, das Aufdampfen des Metalls und einen anschließenden Lift-Off-Prozess. Dies entspricht dem Verfahren zur Herstellung der Metall-Lochmasken (siehe Abschn. 3.2.1), welche in Kapitel 4 und 6 zur Anwendung kommen. Der wesentliche Unterschied besteht in der Verwendung eines Positiv- statt eines Negativlackes, so dass die belichteten Zonen im Lack später die Ferromagnete ergeben. Nach der Belichtung startet der Aufdampfprozess mit einer 10 nm dicken Chrom(Cr)-Schicht, welche eine verbesserte Haftung garantieren soll. Es folgt das ferromagnetische Dysprosium (Dy) mit einer Dicke von 200 nm . Zum Schutz des Dy vor Oxidation wird schließlich nochmals eine 10 nm -Schicht Cr aufgebracht.

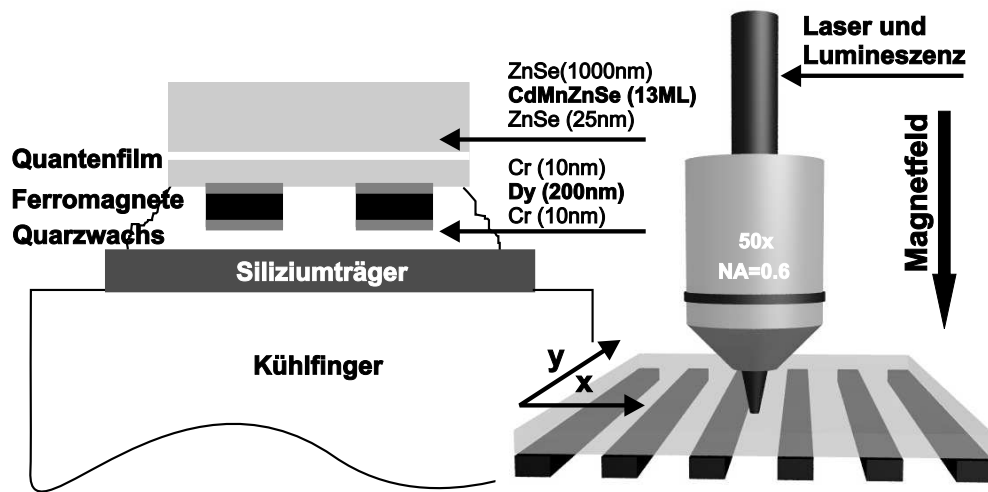


Abbildung 5.8: links: Präparierte Hybrid-Probe, montiert auf Kühlfinger des He-Durchflusskryostaten. Abzulesen sind die relevanten Maße bzw. Materialzusammensetzungen. rechts: Ortsaufgelöste Mikro-PL-Spektroskopie im senkrechten Magnetfeld.

Mittels Lift-Off-Prozess entstehen letztlich die strukturierten ferromagnetischen Elemente auf der Halbleiteroberfläche. Dabei handelt es sich sowohl um Drähte mit einer Länge l von jeweils $20\ \mu\text{m}$ als auch um quadratische Punkte. Die Drahtbreite bzw. die Kantenlänge der Punkte variiert dabei zwischen $200\ \text{nm}$ und $5\ \mu\text{m}$. Diese Elemente wurden zu einem Teil vereinzelt aufgebracht, zum anderen Teil aber auch in Feldern geordnet strukturiert. Abb. 5.7 zeigt beispielhaft elektronenmikroskopische Aufnahmen von Draht- bzw. Punktstrukturen.

(3) Um auch die Halbleiterzonen unterhalb der lichtundurchlässigen Ferromagnetstrukturen spektroskopieren zu können, war es notwendig das gleichermaßen opake GaAs-Substrat zu entfernen. Dazu wurde die Probe mittels Quarzwachs so auf einen Siliziumträger aufgeklebt, dass die Substratseite freilag. Im nächsten Schritt wurde nun eine mechanische Politur unter Verwendung einer Al_2O_3 -Schleifpaste durchgeführt. Um das noch verbliebene Substratmaterial zu entfernen, folgte ein zweifacher nasschemischer Ätzprozess mit einer GaAs-selektiven Ätzlösung $\text{NH}_4\text{OH}:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O}$ (Mischungsverhältnis 1:10:10 bzw. 1:10:75). Mit Eintreten der Transparenz der Probe wurde der Ätzprozess schließlich gestoppt.

Mit dem Mikro-Magneto-PL-Aufbau (siehe Kapitel 3) besteht nun die Möglichkeit mit hoher Ortsauflösung die PL-Emission des DMS-Quantenfilms sowohl neben als auch unter den strukturierten Ferromagneten zu untersuchen (siehe Abb. 5.8). Von diesen ausgehende magnetische Streufelder bzw. deren lokaler Einfluss auf die Exzitonzustände im Quantenfilm können somit optisch zugänglich gemacht werden. Der zusätzliche 5T-Magnet stellt nun ein variables senkrecht Magnetfeld zwischen 0 und 5 T zur Verfügung. Dies erlaubt ein vollständiges Aufmagnetisieren der Ferromagnete selbst bei entmagnetisierungsanfälli-

gen Geometrien, so dass prinzipiell remanente Magnetisierungszustände präpariert werden können. Des weiteren kann das externe Magnetfeld selbst als äußere Variable dienen.

5.3 Magnetisierung von Submikrometer-Dy-Punkten

Um unabhängig von den optischen Messungen Aufschluss über die magnetischen Eigenschaften der Dy-Strukturen zu bekommen, wurden von W. Kipferl und C.H. Back an der Universität Regensburg SQUID-Messungen⁴ durchgeführt. Zu diesem Zweck wurden Probenstücke mit jeweils einem 1×1 mm großen Dy-Punktefeld präpariert.

Die Punkte hatten eine laterale Kantenlänge von 250 nm und wurden auf einem Raster entsprechend einem Flächenfüllfaktor von 1:9 verteilt. Die Schichtung der Punkte bestand aus 20 nm Cr, 180 nm Dy und nochmals 20 nm Cr, ähnlich den optisch untersuchten Proben. Ein solches Feld einzelner Punkte lieferte schließlich in der Summe ein magnetisches Moment, welches mittels SQUID aufgelöst werden konnte. Bei bekannter Punktanzahl ergab sich auf diese Weise die gemittelte Magnetisierung eines einzelnen Dy-Punktes mit Abmessungen im Submikrometerbereich.

Sowohl bei senkrechtem als auch bei parallelem Magnetfeld wurden so komplette Magnetisierungsschleifen bei einer Temperatur von $T=10$ K vermessen (siehe Abb. 5.9). In den beiden Fällen traten mit $1.5 \cdot 10^{-5}$ emu bzw. $2.2 \cdot 10^{-5}$ emu recht ähnliche Werte für das magnetische Sättigungsmoment auf. Dies entspricht den Magnetisierungswerten: $M_{sat}^{\perp}=90$ emu/g (SI: $\mu_0 M_{sat}^{\perp}=1.0$ T) und $M_{sat}^{\parallel}=130$ emu/g (SI: $\mu_0 M_{sat}^{\parallel}=1.5$ T). Ein Vergleich mit dem Literaturwert $M_{sat}=350$ emu/g, ermittelt an makroskopischen Proben, weist auf eine deutliche Reduzierung von M_{sat} bei den vorliegenden Proben hin. Wenn auch die Ursache hierfür nicht eindeutig geklärt werden konnte, so erscheinen jedoch eine Oxidation des Dysprosiums einerseits bzw. eine antiferromagnetische Kopplung mit den Cr-Schutzschichten andererseits als mögliche Erklärungsansätze. Einen markanten Unterschied zwischen der senkrechten und der parallelen Magnetisierung findet man im Hystereseverhalten. So zeigt sich bei parallelem Magnetfeld noch ein ferromagnetisches Verhalten mit einer remanenten Magnetisierung M_R von 40 emu/g (SI: $\mu_0 M_R=0.4$ T) und einer Koerzitivfeldstärke von $H_C=1.5$ kOe (SI: 0.15 T). Demgegenüber fehlt bei senkrechtem Magnetfeld jedes Anzeichen einer Hysterese. Dies ist wohl auf eine Anisotropie der Dy-Punkte zurückzuführen, welche neben dem magnetokristallinen Anteil auch durch die Verspannung, die Grenzflächen und nicht zuletzt die geometrische Form verursacht sein kann. Da bei Dy-Drähten die Form-Anisotropie besonders stark ausgeprägt ist, mit der Drahtachse als bevorzugter Magnetisierungsrichtung, sind bei den folgenden optischen Messungen im senkrechten Magnetfeld also kaum Hystereseeffekte zu erwarten.

⁴Superconducting Quantum Interference Device

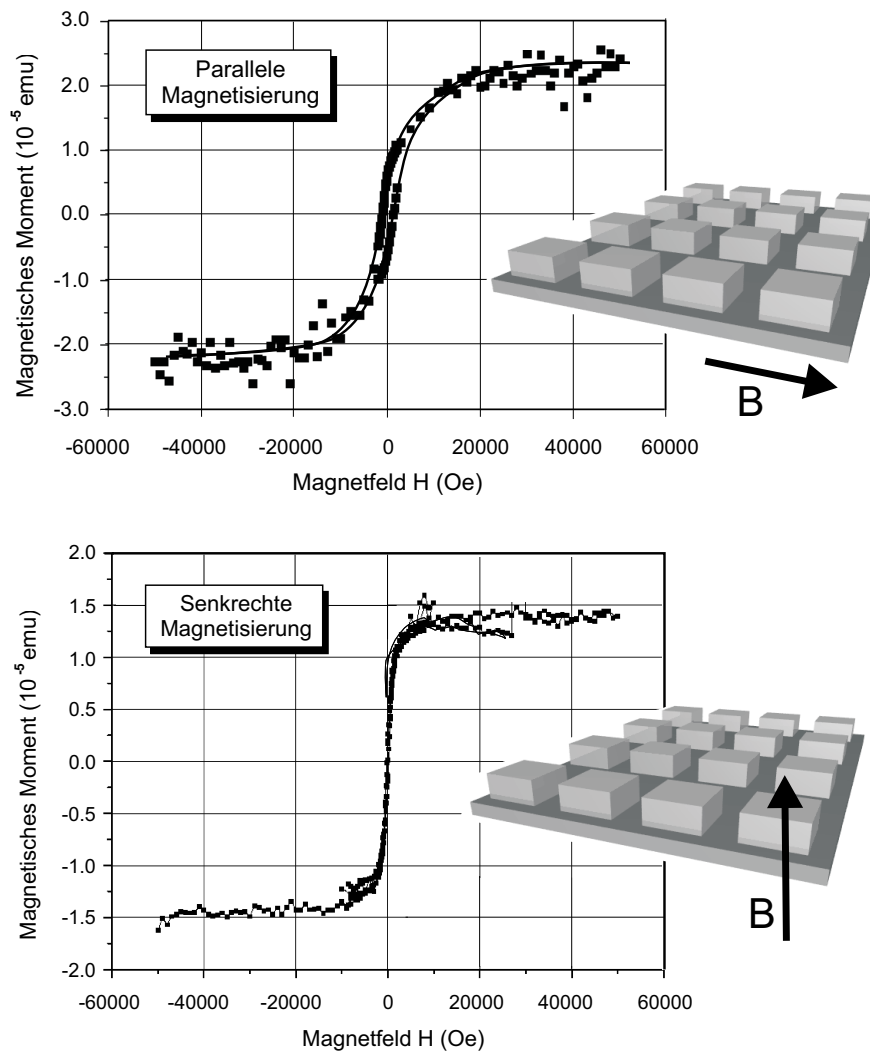


Abbildung 5.9: Das magnetische Moment eines 1×1 mm großen Dy-Punktfeldes (Aufbau und Maße siehe Text) in Abhängigkeit des externen Magnetfeldes. Bei der oberen (unteren) Messung wurde das Magnetfeld in der (senkrecht zur) Ebene des Punktfeldes angelegt. Die Messungen wurden bei einer Temperatur von 10 K mittels SQUID durchgeführt.

5.4 Ein magnetisches Streufeldgitter

Abb. 5.10a zeigt eine schematische Darstellung einer Hybrid-Struktur mit einem Feld von Dy-Drähten, während in Abb. 5.10b eine entsprechende elektronenmikroskopische Aufnahme von Drähten mit einer Breite $w=250$ nm, einer Länge $l=20$ μm und einer Periode von $a=600$ nm zu sehen ist. Magnetisiert man die Dy-Drähte durch ein senkrechtes externes Magnetfeld B_{ext} , so erzeugen diese ein magnetisches Streufeld, wie es in Abb. 5.10a durch Feldlinien angedeutet ist. Gemäß diesem Bild wird die z-Komponente des externen Feldes direkt unter den Drähten verstärkt, neben den Drähten jedoch abgeschwächt. Detaillierte

Rechnungen basierend auf Gl. 5.9 (siehe Abb. 5.10c) bestätigen ein solches oszillatorisches Verhalten des Streufeldes B_S^z in der Quantenfilmebene. Die im DMS-Quantenfilm eingebauten Mn^{2+} -Spins zeigen folgerichtig gleichfalls eine laterale Modulation der Magnetisierung, die sich über die sp-d-Austauschkopplung (siehe Abschn. 4.1.2) auf die Exzitonenergie überträgt. Genauer gesagt, kommt es zu einer spin-selektiven Modulation der Exzitonenergie. Dabei liegt das Energieminimum der Spin-up-Exzitonen ($m_J=+1$) unterhalb der Drähte, während es für die Spin-down-Exzitonen ($m_J=-1$) zwischen den Drähten

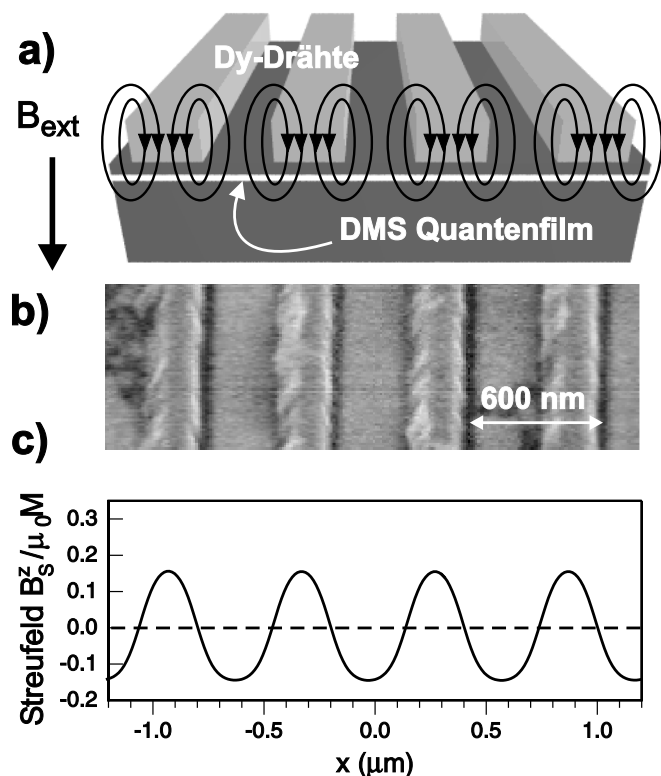


Abbildung 5.10: a) Prinzipskizze eines Dy-Drahtfeldes inklusive der Streufeldlinien bei senkrechtem externen Magnetfeld b) Elektronenmikroskopische Aufnahme eines Dy-Drahtfeldes mit einer Drahtbreite von $w=250$ nm und einer Periode von $a=600$ nm. c) Magnetisierungsnormiertes Streufeld des Drahtfeldes (Rechnung basierend auf Gl. 5.10)

erscheint. Maßgeblich für diesen Effekt ist dabei lediglich die z-Komponente des Streufeldes, da die vorliegende Quantenfilmstruktur eine ausgeprägte Anisotropie des exzitonischen g-Faktors ($g_{\parallel} \approx 0$, $g_{\perp} > 0$) aufweist und damit die z-Achse als präferentielle Spinquantisierungsachse definiert. Dies ist bedingt durch die verspannungs- und quantisierungsinduzierte Aufspaltung zwischen dem Schwerloch(hh)- und Leichtlochband(lh) im Quantenfilm [Mar90]. PLE⁵-Messungen an ähnlichen Strukturen weisen auf eine hh-lh-Aufspaltung von mindestens 40 meV hin. Wie Vergleichswerte aus der Literatur [Sir97] anzeigen, ist damit eine starke g-Faktor-Anisotropie sichergestellt. An diesem Sachverhalt ändert auch die Exziton-Mangan-Kopplung nichts, da die Austauschenergie hinter der hh-lh-Aufspaltung zurückbleibt [Kuh94].

Im folgenden wurde die PL-Emission des DMS-Quantenfilms in Abhängigkeit des senk-

⁵Photoluminescence Excitation Spectroscopy

rechten Magnetfeldes gemessen. Dazu wurde der UV-Laserfokus auf einen Durchmesser von ca. $5 \mu\text{m}$ aufgeweitet und auf dem Drahtfeld positioniert. Desgleichen erfolgte eine Referenzmessung neben dem Drahtfeld, also ohne Streufeldeinfluss. Mithilfe einer Lochblende in einer Zwischenbildebene konnte die Größe der Detektionszone auf ca. $2 \mu\text{m}$ eingestellt werden. Durch die selektive Detektion der σ^+ -Komponente des PL-Signals werden ausschließlich die Spin-up-Exzitonen abgebildet. Aufgrund einer effektiven Spinrelaxation liefern die höherenergetischen Spin-down-Zustände im Magnetfeld kaum eine PL-Emission, so dass diese hier nicht analysiert werden konnte. Das Resultat der PL-Messungen ist in Abb. 5.11 (links) dargestellt. Sowohl auf dem Drahtfeld als auch daneben findet man eine starke und kontinuierliche Rotverschiebung der σ^+ -Emission bei Erhöhung des Magnetfeldes. Dennoch zeigt sich ein Unterschied. So verschiebt sich bei dem Drahtfeld-Signal die Niederenergieflanke mit zunehmendem Magnetfeld stärker zu niedrigen Energien als das Referenzsignal.

Diese verstärkte Rotverschiebung kann interpretiert werden als eine Auswirkung des magnetischen Streufeldes der Dy-Drähte. Elektron-Loch-Paare, welche in der ZnSe-Barriere optisch erzeugt und vom Quantenfilm eingefangen werden, sind in der Lage lateral zu diffundieren [Zha03], um so vorzugsweise in Regionen minimaler Energie zu rekombinieren. Speziell für Spin-up-Exzitonen liefert das magnetische Streufeld eine reduzierte Energie direkt unterhalb der Dy-Drähte, während zwischen den Drähten deren Energie erhöht ist. Die bevorzugte Rekombination der Spin-up-Exzitonen unter den Drähten resultiert somit in einer rotverschobenen PL-Emission relativ zum streufeldfreien Referenzsignal. Da jedoch noch ein erheblicher Teil der Exzitonen zwischen den Drähten rekombiniert, wo die Energie erhöht ist, tritt die Verschiebung an der Niederenergie- im Vergleich zur Hochenergieflanke wesentlich stärker hervor. Das PL-Signal erscheint letztendlich also zu niedrigen Energien hin verbreitert. Prinzipiell zu beachten ist, dass die nanostrukturierten Ferromagnete im Halbleiter neben dem magnetischen Streufeld auch ein Verspannungsfeld aufbauen. Da eine Verspannung aber ebenfalls zu einer Modifikation der Bandlücke führen kann [Dav94], muss zwischen diesen beiden Effekten unterschieden werden. Die beobachtete Abhängigkeit der Energieverschiebung von der Magnetfeldstärke weist jedoch klar auf einen Streufeldefekt hin, da die Verspannung nicht vom Magnetfeld beeinflusst wird.

Abb. 5.11 (rechts oben) zeigt eine detaillierte Auswertung der Niederenergieflanke E_{low} (Energie bei halber Intensität) als Funktion des externen Magnetfeldes B_{ext} . Neben dem Drahtfeld kann eine Energieverschiebung der Spin-up-Exzitonen mit dem riesigen Zeeman-effekt im Feld B_{ext} in der Form $E_{m_J}^Z = -\frac{m_J}{2} \cdot g_{eff} \cdot \mu_B \cdot B_{ext}$ beschrieben werden. Man findet im vorliegenden Fall eine annähernd lineare Verschiebung von 2.7 meV/T , entsprechend einem effektiven g-Faktor von $g_{eff}=94$. Die Linearität des Zeemaneffektes birgt den Vorteil, dass Änderungen des Magnetfeldes "unverzerrt" auf die Exziton-Energie abgebildet werden. Da hier keine Nichtlinearitäten auftreten, wie sie gewöhnlich bei sehr tiefen Temperaturen ($T < 10 \text{ K}$) für DMS-Halbleiter beobachtet werden (siehe Abschn. 4.1.2), läßt sich hier eine erhöhte Proben temperatur vermuten. Dies kann durch Spinheizungseffekte (siehe Abschn. 4.7) oder einen nicht-idealen thermischen Kontakt der Probe mit

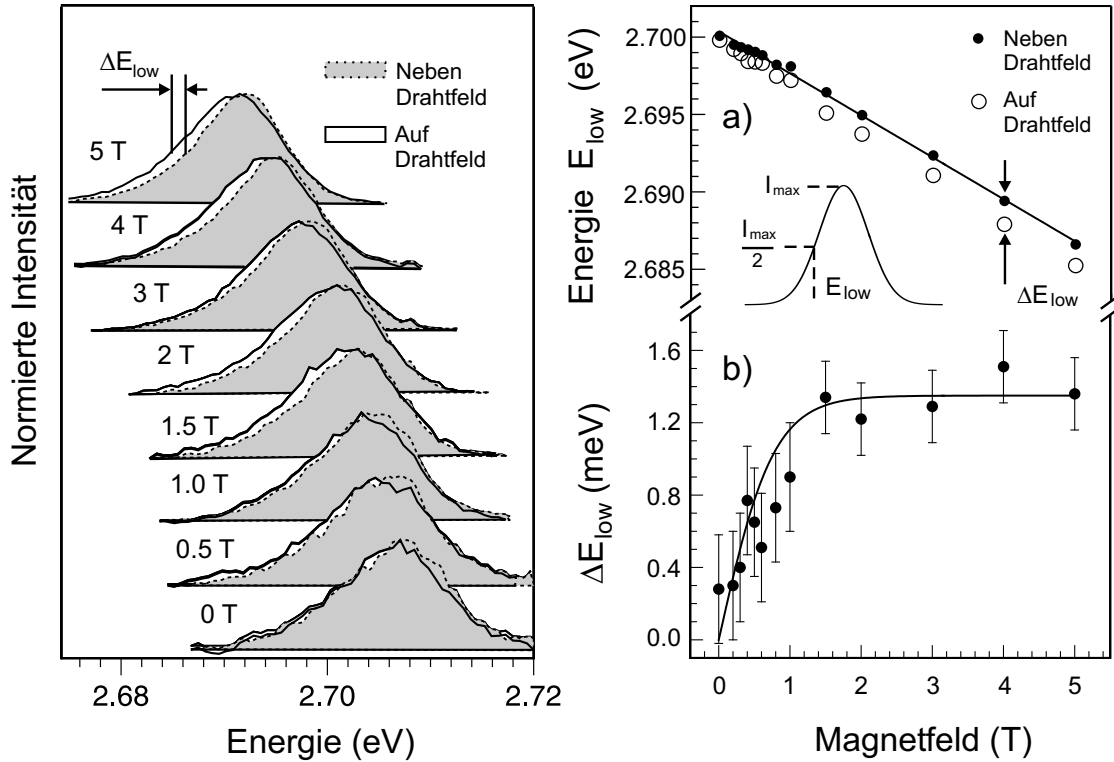


Abbildung 5.11: links: σ^+ -Spektren des DMS-Quantenfilms im Magnetfeld, gemessen auf und neben dem Drahtfeld. rechts oben: Die Niederenergieflanke E_{low} als Funktion des externen Magnetfeldes. Bildeinsatz: Definition von E_{low} . rechts unten: Energieunterschied $\Delta E_{low} = E_{low}$ (neben Drahtfeld) - E_{low} (auf Drahtfeld) als Funktion des externen Magnetfeldes.

dem Kühlfinger des Kryostaten verursacht sein. Wie in Abb. 5.11 (rechts oben) nochmals deutlich wird, kommt es auf dem Drahtfeld zu einer magnetfeldabhängigen Reduktion der Bandlücke relativ zur Referenzmessung. Diese Reduktion ΔE_{low} ist in Abb. 5.11 (rechts unten) explizit dargestellt. Während sich bei $B_{ext}=0$ T nahezu keine Energieverschiebung ΔE_{low} zeigt, nimmt sie mit dem Magnetfeld zu und sättigt schließlich bei etwa 1.2 T. Die maximale Verschiebung erreicht dabei einen Wert von ca. 1.3 meV. Tatsächlich erinnert der Verlauf der Kurve an die Magnetisierungskurve eines Ferromagneten. Gerade dieser Umstand aber bestätigt das magnetische Streufeld als Ursache der zusätzlichen Energieverschiebung. Diese kann damit geschrieben werden als $\Delta E_{low} = -\frac{m_J}{2} \cdot g_{eff} \cdot \mu_B \cdot B_S^z$.

Mit dem oben bestimmten effektiven g-Faktor kann man nun von $\Delta E_{low}=1.3$ meV ausgehend ein maximales magnetisches Feld von $B_S^z=0.48$ T errechnen. Dieses Feld ist dem externen Magnetfeld B_{ext} überlagert und entspricht dem Streufeld unter den Dy-Drähten, welches von diesen im Falle einer gesättigten Magnetisierung M_{sat} ausgeht. Auch für M_{sat} kann nun anhand der Rechnung aus Abb. 5.10c eine Abschätzung erfolgen. So gelangt man zu einem Wert von $M_{sat}=3$ T. Interessanterweise ist diese Zahl einerseits kleiner als der "Volumenwert" von 3.75 T, zugleich aber größer als der Wert der nanostrukturierten

Dy-Punkte von 1 T. Dies ist in Übereinstimmung mit Werten, welche von Ye *et al.* an ähnlichen Strukturen ermittelt wurden [Ye95]. Allerdings konnten hier keinerlei Hystereseeffekte nachgewiesen werden. Messungen von Pulizzi *et al.* [Pul00] zeigten bei Verwendung von Dy-Folien, welche in der Ebene, also entlang einer langen Achse, magnetisiert wurden, jedoch eine deutliche Hysterese. Diese gegensätzlichen Ergebnisse sind wohl in erster Linie der Form-Anisotropie zuzuschreiben. Tatsächlich ist bekannt, dass ferromagnetische Drähte, die entlang einer der kurzen Achsen magnetisiert werden, gänzlich reversible Magnetisierungsschleifen aufweisen können [Erc97].

5.5 Die ortsaufgelöste Spektroskopie am Einzeldraht

Da mittels Mikro-PL auch ein Laserfokus unterhalb von $1\ \mu\text{m}$ einstellbar ist, bietet sich prinzipiell die Möglichkeit das magnetische Streufeld eines *einzelnen* nanostrukturierten Dy-Drahtes ortsaufgelöst nachzuweisen. Dazu wurde im folgenden die Probe mit einem piezo-getriebenen Verstelltisch in 100nm-Schritten so verfahren, dass sich der UV-Laserfokus quer über einen Dy-Draht mit einer Breite von $w=700\ \text{nm}$ bewegte. Ein konstantes senkrechtes Magnetfeld von 4 T wurde hierbei angelegt und die σ^+ -polarisierte Photolumineszenz des Quantenfilms für jede Fokusposition aufgenommen.

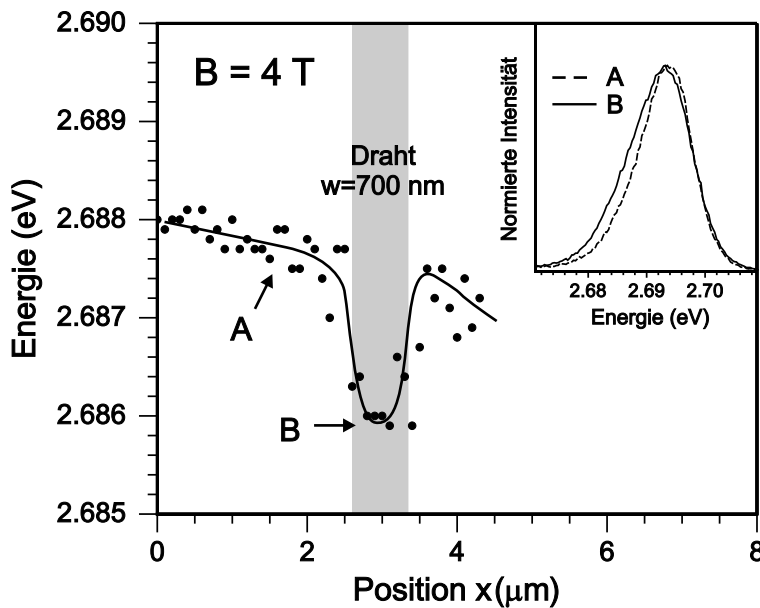


Abbildung 5.12: Variation der σ^+ -PL-Energie des DMS-Quantenfilms beim Überfahren eines einzelnen Dy-Drahtes ($w=700\ \text{nm}$) senkrecht zu dessen langer Achse. Das externe Magnetfeld hat eine Stärke von 4 T. Bildeinsatz: σ^+ -PL-Spektren neben (A) und auf (B) dem Draht.

Ähnlich wie bei den Messungen am Drahtfeld zeigt sich auf dem Draht eine Rotverschiebung der Niederenergieflanke des Spektrums relativ zum Signal neben dem Draht (siehe Bildeinsatz Abb. 5.12). Diese Verschiebung ΔE_{low} kann wiederum als zusätzliche Zeemanenergie der Spin-up-Exzitonen aufgrund des magnetischen Streufeldes unter dem Draht gewertet werden. Die kontinuierliche ortsabhängige Rotverschiebung des PL-Signals neben und auf dem Draht ist vermutlich auf eine Probeninhomogenität zurückzuführen.

Diese kann z.B. durch eine inhomogene Verspannung aufgrund der Substratentfernung verursacht sein. Die detaillierte Ortsabhängigkeit von E_{low} , dargestellt in Abb. 5.12, offenbart eine Abnahme der Energie E_{low} um ca. 1.5 meV sobald der Laserfokus auf den Draht gefahren wird und eine gleichwertige Zunahme beim Herunterfahren.

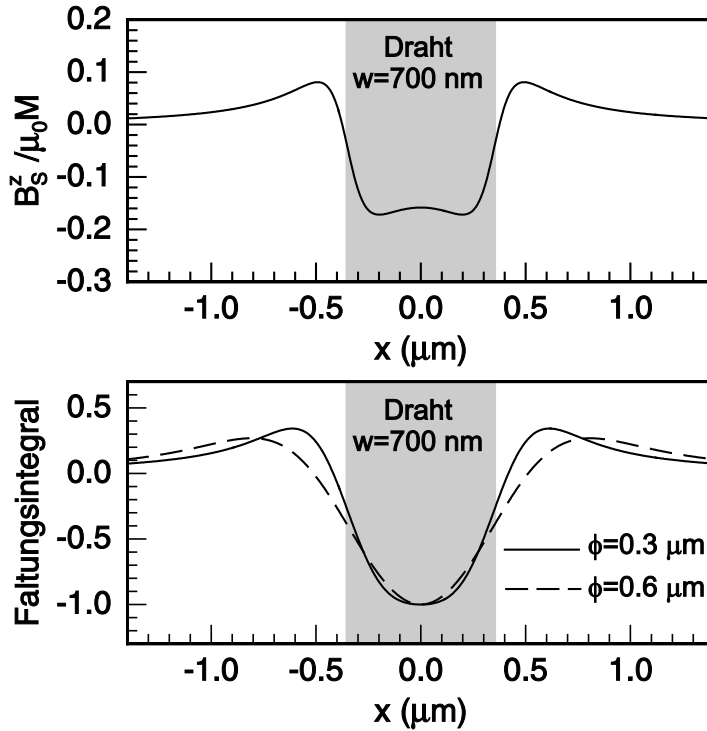


Abbildung 5.13: oben: magnetisches Streufeld (z-Komponente) eines einzelnen Drahtes mit einer Breite von $w=700 \text{ nm}$ bei vollständiger Magnetisierung. unten: Faltungsintegral von Streufeld und gaussförmigem Laserprofil für zwei Halbwertsbreiten ϕ .

Das im Falle einer homogenen Magnetisierung zu erwartende magnetische Streufeld B_{ξ}^z des Dy-Drahtes ist in Abb. 5.13 (oben) dargestellt. Selbst bei einem linearen Zeemanefekt kann der Kurvenverlauf von $B_{\xi}^z(x)$ jedoch nicht identisch sein mit der experimentellen Ortsfunktion. Die Ursache hierfür ist die endliche Ausdehnung des Laserfokus ϕ , welcher zwischen $0.3 \mu\text{m}$ und $0.6 \mu\text{m}$ liegt (siehe Abschn. 3.1.2). Vielmehr sollte sich die Messkurve aus der Faltung der Streufeldkurve $B_{\xi}^z(x)$ mit dem gaussförmigen Laserprofil $I^{Laser}(x)$ ergeben. Entsprechende Rechnungen wurden in Abb. 5.13 (unten) exemplarisch für die Maximal- und Minimalausdehnung des Laserfokus durchgeführt. In der Tat, findet man eine vernünftige qualitative Übereinstimmung zwischen diesen Faltungskurven und der Messkurve. Anhand der gemessenen Energieveränderung um 1.5 meV und der hier vorliegenden Zeemanverschiebung von 4 meV/T gelangt man schließlich zu einem Wert von $B_{\xi}^z=0.38 \text{ T}$ für das magnetische Streufeld unter dem Draht. Dies führt mit der Rechnung aus Abb. 5.13 (oben) direkt zu einer Sättigungsmagnetisierung von M_{sat} von $2.1 \text{ T}/\mu_0$.

Kapitel 6

Einzelne Lokalisationszentren in InGaN-Quantenfilmen

Kein Materialsystem hat in der Halbleitergemeinde im Laufe der letzten Jahre für so viel Furore gesorgt wie die GaN-Heterostrukturen. Seinen Ausgang nahm diese stürmische Entwicklung in den Labors von S. Nakamura, dem Mitte der 90er Jahre erstmalig die Realisierung einer lichtstarken blauen LED¹ basierend auf InGaN/GaN-Quantenfilmen gelang [Nak93]. Damit waren die SiC-LEDs mit einer 100mal geringeren Lichtausbeute um Längen geschlagen. Kommerziell verfügbar sind mittlerweile sogar Laserdioden mit Emissionslinien im blauen und ultravioletten Spektralbereich. Neuartige Technologien wie optische Datenträger mit deutlich höherer Speicherdichte oder das Laserfernsehen kamen dadurch auf die Agenda der Industrieforschung. Tatsächlich kam der Erfolg des GaN-Systems als Lichtemitter recht überraschend. Als gravierendes Handicap erachtete man hier gemeinhin die unzureichende kristalline Qualität mit ausgesprochen hohen Versetzungsdichten im Bereich von 10^{10} cm^{-2} [Les95]. Da solche Defekte oft als nichtstrahlende Zentren fungieren, war zu vermuten, dass strahlende Prozesse, also die Lumineszenz, wirksam unterdrückt würden. Die gegenteilige Erfahrung im Experiment warf die Frage nach der Ursache für diesen Widerspruch auf. Die meistformulierte Begründung beruhte schließlich auf der Annahme von nm-skalierten Lokalisationszentren, die sich im Quantenfilm ausbilden. In diesen Zentren lokalisieren die Ladungsträger, wodurch deren Verlust an nichtstrahlende Defekte vermieden wird. Aus diesem Grund kommt es also zu einer effizienten PL-Emission aus den Lokalisationszentren, die damit auch zu Rekombinationszentren werden.

Verschiedene Experimente lieferten in der Tat klare Hinweise, die diese Interpretation unterstützen. So zeigen beispielsweise InGaN/GaN-Quantenfilme große Stokesverschiebungen (Energiedifferenz zwischen Emission und Absorption) [Yan00] und eine s-förmige Energieverschiebung bei Temperaturerhöhung, die typisch ist für quantenpunktartige Systeme [Eli97]. Des weiteren gelang es mittels TEM-Messungen In-reiche Inseln mit Abmessungen von wenigen Nanometern bildlich aufzulösen [Kre02]. Die lokale Absenkung der Bandlücke

¹Light-emitting diode (engl.): Leuchtdiode

in diesen Inseln erzeugt ein dreidimensionales Einschlusspotential, das Ladungsträger effektiv einfangen kann und damit als Lokalisations- und Rekombinationszentrum wirkt.

Ein entscheidender Schritt zur Klärung der Physik der Lokalisationszentren ist zweifellos der spektroskopische Zugang zu einzelnen Zentren. Daher wurden in der jüngeren Vergangenheit einige Experimente mit sehr hoher Ortsauflösung unternommen. So wurden InGaN/GaN-Quantenfilme bereits mittels SNOM [Cro98, Kim02, Kan02], Kathodolumineszenz [Zha98, Chi97] und unter Verwendung von Nanoaperturmasken [Yu98] spektroskopisch untersucht. Allerdings konnten dort noch keine schmalbandigen Emissionslinien, wie man sie für einzelne Lokalisationszentren erwartet, beobachtet werden. So liegt die kleinste bislang gemessene Halbwertsbreite bei 11.6 meV [Kan02] und damit um mehr als eine Größenordnung über den typischen Werten für einzelne Quantenpunkte verschiedener Materialsysteme wie InAs/GaAs oder CdSe/ZnSe. Einzig an selbstorganisierten InGaN/GaN-Quantenpunkten gelang es Moriwaki *et al.* Emissionslinien mit Halbwertsbreiten von 0.1 meV nachzuweisen. Jedoch blieb der Beitrag dieser Linien zur Gesamtemission aufgrund eines dominanten Hintergrundsignals recht unklar.

Im Rahmen dieser Arbeit sollten nun, mit Hilfe der Nano-PL-Technik einzelne Lokalisationszentren in einem InGaN/GaN-Quantenfilm spektroskopisch aufgelöst werden. Es wurde schließlich die PL-Emission sowohl von einzelnen Zentren als auch vom Ensemble in Abhängigkeit von Temperatur und optischer Anregungsdichte untersucht. Hierbei zeigt sich, dass sowohl die quantenpunktartige Lokalisierung der Ladungsträger als auch starke interne elektrische Felder wesentlich für das Verständnis der optischen Eigenschaften der InGaN/GaN-Quantenfilme sind. Vor der Diskussion der experimentellen Ergebnisse soll vorbereitend ein kurzer Überblick über die Grundlagen zu den InGaN/GaN-Quantenfilmen gegeben werden.

6.1 Die Gruppe-III-Nitride

Die Familie der Gruppe-III-Nitride umfasst die binären Halbleiter GaN, AlN, InN sowie sämtliche darauf basierende Legierungen. Diese Materialsysteme unterscheiden sich in mancher Beziehung von anderen III-V und auch II-VI-Halbleitern. So findet man z.B. statt der üblichen Zinkblende-Kristallstruktur mit einem kubischen Bravais-Gitter zumeist einen Aufbau nach dem Wurtzit-Typus mit einer hexagonalen und damit niedrigeren Symmetrie (Abb. 2.1). Nur beim Wachstum des Kristalls auf ausgewählten Substratflächen kann auch die Zinkblende-Struktur realisiert werden. Man unterscheidet daher z.B. zwischen α -GaN (Wurtzit) und β -GaN (Zinkblende). Obgleich bei beiden Kristallstrukturen eine tetraedische Koordination vorliegt, bilden sich deutlich unterschiedliche Bandstrukturen aus, was bereits durch die Bandlücke angezeigt wird: $E_g(\alpha\text{-GaN})=3.44$ eV bzw. $E_g(\beta\text{-GaN})=3.17$ eV [Gil98].

Für GaN konnten sehr große effektive Massen bestimmt werden: $m_e=0.3 m_0$ und $m_{hh} = 1.5 m_0$ [Cin00]. Auch die Exziton-Bindungsenergie E_B^X nimmt Werte an, die weit über denen typischer III-V-Halbleiter wie GaAs liegen. Für freie A-Exzitonen beispielsweise wurden Bindungsenergien zwischen 20 meV und 28 meV experimentell ermittelt [Jia00]. Dementsprechend klein ist schließlich der exzitonische Bohrradius mit 3.4 nm [Chi96]. Damit können exzitonische Effekte also, ähnlich wie bei den breitbandlückigen II-VI-Halbleitern, bereits bei Raumtemperatur die Interbandübergänge stark beeinflussen. Da nun eine direkte Bandstruktur vorliegt, also Valenzbandmaximum und Leitungsbandminimum am Γ -Punkt übereinanderliegen, können diese Übergänge sehr effektiv unter Photonemission stattfinden, d.h. das Exziton rekombiniert strahlend.

Die Bandlücke der AlGaInN-Verbindungen variiert je nach Materialzusammensetzung zwischen 1.95 eV und 6.2 eV (Abb. 6.1)². Daher ist das System der III-V-Nitride besonders nützlich bei der Erschließung des kurzwelligeren Spektralbereiches durch lichtemittierende Dioden. So sind heute ultraviolette, blaue, grüne und gelbe LEDs mit hoher Lichtausbeute über 10 cd im Handel erhältlich. Sie basieren alle auf ternären InGaN-Quantenfilmen. Durch die Beschichtung von blauen oder ultravioletten LED-Chips mit einem Lumineszenzfarbstoff sind mittlerweile auch weiße LEDs problemlos herstellbar.

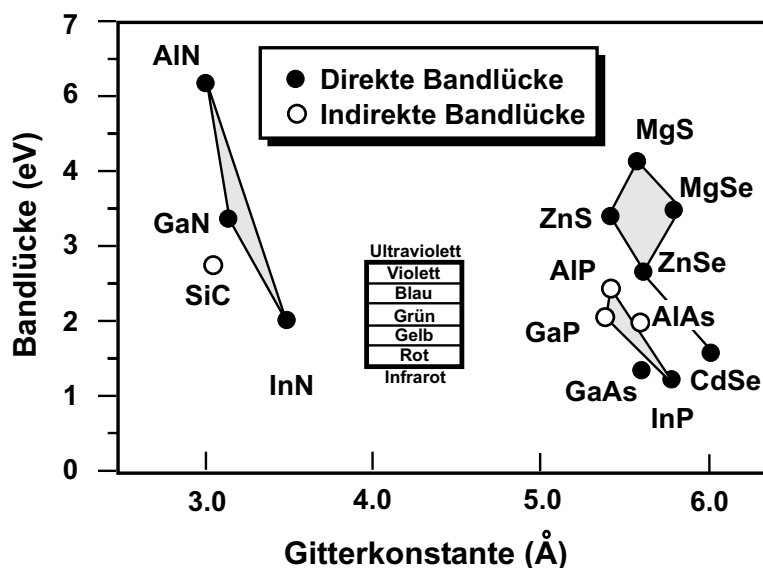


Abbildung 6.1: Bandlücke von verschiedenen III-V und II-VI-Verbindungshalbleitern als Funktion der chemischen Bindungslänge. Gekennzeichnet ist die jeweilige Art der Bandlücke (direkt bzw. indirekt) [Gil98].

Die größte Schwierigkeit beim Wachstum von III-Nitrid-Schichten ist zweifellos das Fehlen eines geeigneten Substrates. Zumeist wird hierzu von der (0001)-Saphirfläche (Al_2O_3) Gebrauch gemacht, welche mit GaN eine hohe Gitterfehlpassung von 13% aufweist. Dies resultiert in einer schlechten Kristallqualität mit hohen Defektdichten. Als Substrat-Alternative hat sich in jüngster Zeit SiC erwiesen. Die Gitterfehlpassung beträgt in diesem Fall lediglich 3.5%. Zudem weist SiC im Vergleich zu Saphir eine deutlich höhere

²Neuere Messungen deuten sogar auf eine noch kleiner Bandlücke von InN hin ($E_g=0.9$ eV) [Dav02]

re elektrische und thermische Leitfähigkeit auf. Auch die Dotierbarkeit und Qualität der Spaltkanten stellen erhebliche Vorteile von SiC dar. In Zukunft könnte also das Wachstum von Laserdioden auf SiC an Bedeutung gewinnen [Kur98].

6.2 Die InGaN/GaN-Heterostrukturen

Die elektronischen und optischen Eigenschaften von InGaN-Quantenfilme weichen erheblich von denen des Volumenmaterials ab. Neben dem quantenmechanischen Einschluss in Wachstumsrichtung kommt es durch die Ausbildung von Lokalisationszentren auch zu einer Einschränkung der lateralen Bewegung der Ladungsträger. Dies bedeutet eine gewisse Analogie zu bekannten Quantenpunktsystemen wie InAs/GaAs und CdSe/ZnSe. Ganz im Gegensatz zu diesen klassischen quasi-nulldimensionalen Materialsystemen kommt es im InGaN-Quantenfilm jedoch zum Aufbau eines äußerst starken internen elektrischen Feldes. Dieses beeinflusst über den Quantum-Confined-Stark-Effekt massiv die lokalisierten Ladungsträgerzustände.

6.2.1 Das interne elektrische Feld

Die spontane und piezoelektrische Polarisation

Anders als bei Zinkblende-Strukturen erlaubt die niedrige Symmetrie der Wurtzit-Struktur die Ausbildung einer *spontanen elektrischen Polarisation*. Diese kann speziell für III-Nitride Werte annehmen, die von der gleichen Größenordnung sind wie bei typischen Ferroelektrika. Die Richtung des Polarisationsvektors ist festgelegt mit der [0001]-Achse des Wurtzit-Gitters, welche zumeist auch der Wachstumsrichtung entspricht. Weist nun das Quantenfilm-Material einen Polarisationsunterschied zum umgebenden Barrierenmaterial auf, so bauen sich an den Grenzflächen Polarisationsladungen auf. Damit ist der Quantenfilm schließlich einem senkrechten elektrischen Feld ausgesetzt. Abb. 6.2 gibt einen Überblick über die spontane Polarisation im (Al,Ga,In)N-System. Hier deutet sich an, dass bei GaN/AlGaN-Strukturen große Polarisationsdifferenzen und damit auch große Felder anzutreffen sind. Dagegen kommt der spontanen Polarisation bei InGaN/GaN-Heterostrukturen eine geringere Bedeutung zu [Ber98b, Fio99].

Eine weitere Quelle für interne elektrische Felder bildet die *piezoelektrische Polarisation*. Dazu bedarf es einer polaren Achse, wie der [0001]-Richtung im Wurtzit-Kristall, und einer Verspannung im Material. Letztere ergibt sich für einen Quantenfilm aus der Gitterfehlpassung mit dem unverspannten Barrierenmaterial. So entsteht also auch hier eine Divergenz des verspannungsinduzierten Polarisationsvektors an den Grenzflächen. Die Konsequenz ist wiederum ein senkrechtes Piezofeld im Quantenfilm. Aufgrund der starken Gitterfehlpassung bei InGaN/GaN-Heterostrukturen sind hier prinzipiell höhere Piezofelder zu erwarten als bei GaN/AlGaN-Systemen. Beim Wachstum entlang der [0001]-Achse (z-Achse) ergibt sich in Abhängigkeit der Verspannung ϵ des Quantenfilms folgender Piezo-Polarisationsvektor [Tak97]:

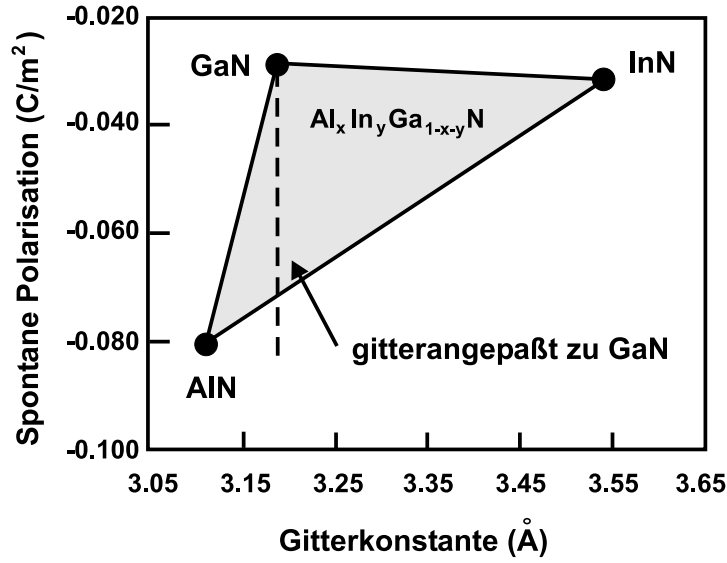


Abbildung 6.2: Spontane Polarisation der III-V-Nitride als Funktion der Gitterkonstante [Fio99].

$$\vec{P}_{piezo} = \begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} \\ \epsilon_{xy} \end{pmatrix} \quad (6.1)$$

Dabei entsprechen die Elemente e_{ij} den materialspezifischen piezoelektrischen Konstanten. Zur Berechnung der Verspannung geht man nun von einem pseudomorphen Wachstum aus, d.h. das Quantenfilm-Material mit der unverspannten Gitterkonstante a_{QF} nimmt in der Quantenfilmebene die Gitterkonstante der Barriere a_B an. Somit gilt:

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx} &= \epsilon_{yy} = \frac{a_B - a_{QF}}{a_{QF}} \\ \epsilon_{zz} &= -2 \frac{c_{13}}{c_{33}} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yz} &= \epsilon_{zx} = \epsilon_{xy} = 0 \end{aligned} \quad (6.2)$$

mit den elastischen Konstanten c_{13} und c_{33} . Setzt man schließlich Gleichungen (6.2) in (6.1) ein, so erhält man lediglich für die z-Komponente des Piezofeldes einen nichtverschwindenden Term mit folgender Gestalt:

$$\begin{aligned} F_{piezo} &= -\frac{P_{piezo}}{\epsilon_0 \epsilon_r} = -\frac{e_{31} (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) + e_{33} \epsilon_{zz}}{\epsilon_0 \epsilon_r} \\ &= -\frac{2}{\epsilon_0 \epsilon_r} \left(e_{31} - e_{33} \frac{c_{13}}{c_{33}} \right) \left(\frac{a_B}{a_{QF}} - 1 \right) \end{aligned} \quad (6.3)$$

	GaN	InN	AlN
$e_{31}(\text{C/m}^2)$	-0.35	-0.57	-0.50
$e_{33}(\text{C/m}^2)$	1.27	0.97	1.79
$c_{13}(\text{GPa})$	106	92	108
$c_{33}(\text{GPa})$	398	224	373

Tabelle 6.1: Piezoelektrische und elastische Konstanten für GaN, InN und AlN [Vur01].

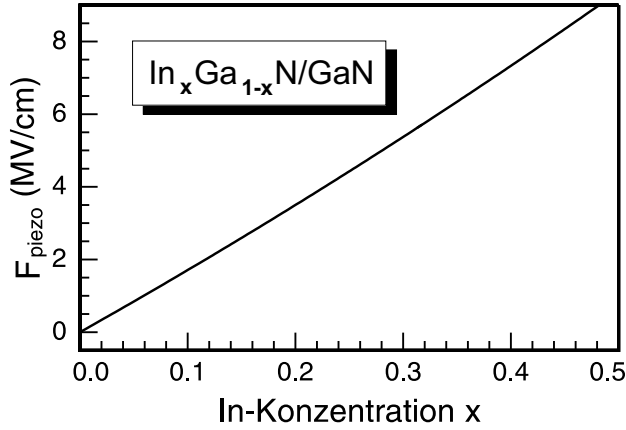


Abbildung 6.3: Das nach Gl. 6.3 berechnete Piezofeld für einen verspannten InGaN/GaN-Quantenfilm als Funktion der In-Konzentration.

Die Stärke des Piezofeldes ist also bestimmt durch das Verhältnis der beiden Gitterkonstanten. Die Breite des Quantenfilmes spielt, wie auch das Experiment zeigt [Lef01], keine Rolle. Abb. 6.3 zeigt das mit dieser Gleichung berechnete Piezofeld für eine InGaN/GaN-Heterostruktur in Abhängigkeit des In-Gehaltes. Verwendet wurden hierbei die elastischen bzw. piezoelektrischen Konstanten aus Tab. 6.1 und die Dielektrizitätszahl $\epsilon_r=10.4$ [Tak97]. Für die Gitterkonstanten wurde auf folgende Werte zurückgegriffen [Tak97]:

$$a_B(\text{GaN}) = 3.548 \text{ \AA}; \quad a_{QF}(\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}) = 3.189(1-x) + 3.548 \cdot x \text{ \AA} \quad (6.4)$$

Bemerkenswert ist, dass schon für recht geringe In-Konzentrationen elektrische Felder in der Größenordnung von 1 MV/cm auftreten können.

Der Quantum-Confined-Stark-Effekt im starken Feld

Das immense interne elektrische Feld, welchem ein InGaN/GaN-Quantenfilm nun ausgesetzt ist, bleibt nicht ohne Folgen für die eingeschlossenen Ladungsträger. Der Quantum-Confined-Stark-Effekt (siehe Abschn. 2.3.2) verursacht eine Reduktion der Eigenenergien sowie eine Verminderung der Rekombinationsrate. Bei Piezofeldern in der Größenordnung von 1 MV/cm treten hierbei Bandverbiegungen von einigen 100 meV auf. Da die Potentialtopftiefe des Quantenfilms jedoch gleichfalls in diesem Wertebereich liegt, kommt es zu einer Deformation des Einschlusspotentials bis hin zur Dreiecksform. Der QCSE muss daher im Grenzfall großer Felder betrachtet werden, wie er in Abschn. 2.3.2 diskutiert wurde:

$$E = E_0 - e l_0 \cdot F + \left(\frac{9 \pi \hbar e}{8 \sqrt{2 \mu}} \right)^{2/3} \cdot F^{2/3} \quad (6.5)$$

Das elektrische Feld F bewirkt neben der Verschiebung der Eigenenergie des Grundzustandes auch eine räumliche Trennung der Elektronen und Löcher. Damit kommt es jedoch zu einer partiellen Abschirmung des Feldes und folgerichtig zu einer Reduktion des QCSE. Der Abschirmeffekt nimmt dabei mit zunehmender Teilchendichte im Quantenfilm zu. Um dies in der Schrödingergleichung 2.9 zu berücksichtigen, muss ein zusätzliches Abschirmpotential V_{scr} eingefügt werden. Dieses ermittelt man als Lösung der Poissongleichung:

$$-\epsilon_0\epsilon_r \frac{d^2}{dz^2} V_{scr}(z) = e(p(z) - n(z)) \quad (6.6)$$

n und p geben hier die ortsabhängigen Teilchendichten der Elektronen bzw. Löcher wieder. Erst die selbstkonsistente Lösung von Schrödinger- und Poissongleichung erzeugt also eine adäquate Beschreibung des QCSE [Cin00]. Dies erfordert eine aufwändige numerische Behandlung. Im Regime einer geringen Abschirmung kann jedoch folgende Approximation verwendet werden [Kuo02]:

$$F(n) = F_0 - \frac{nel_0}{\epsilon_0\epsilon_r} \quad (6.7)$$

F_n bzw. F_0 meinen dabei jeweils das elektrische Feld mit und ohne Abschirmeffekt bedingt durch die Dichte n der Elektron-Loch-Paare. Vergleiche mit einer selbstkonsistenten Tight-Binding-Rechnung zeigen, dass diese Näherung geeignet ist für Ladungsträgerdichten unterhalb von $4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ und Quantenfilm-Dicken über 2 nm [Cin00]. Bisher vernachlässigt wurde die Exzitonenergie, welche durch die feldinduzierte Elektron-Loch-Trennung eine Abschwächung erfährt. Demnach überschätzen Rechnungen nach Gl. 6.6 die Energieabsenkung ΔE durch den QCSE. Wie theoretische Betrachtungen zeigen, kann dieser Effekt Beiträge von einigen meV bedeuten [Cae02].

6.2.2 Lokalisationszentren

Nicht nur aufgrund des starken internen Feldes nehmen die InGaN/GaN-Quantenfilme eine Ausnahmestellung ein, sondern auch hinsichtlich ihrer ausgeprägten Tendenz zur Bildung von quantenpunktartigen Lokalisationszentren. Diese werden zumeist zur Erklärung der hohen Effizienz der Lichtemission trotz hoher Defektdichten herangezogen. Indem die laterale Bewegungsfreiheit der Ladungsträger eingeschränkt wird, soll deren Verlust an defektinduzierte, nichtstrahlende Zentren verhindert werden. Es werden gegenwärtig verschiedene Mechanismen diskutiert, die zur Ausbildung von Lokalisationszentren im InGaN/GaN-System führen könnten: i) Fluktuationen der Quantenfilmschichtdicke [Chi97, Chi98], ii) rein statistische Fluktuationen der Materialzusammensetzung [Sug98, Chi98], iii) eine laterale Fluktuation des Piezofeldes durch Inhomogenitäten in der Verspannung [Chi99] und iv) die Ausbildung von nm-skalierten In-reichen Clustern [Sug98, Don99].

Wie ausführliche Untersuchungen mittels TEM deutlich zeigen, scheint gerade der letztgenannte Mechanismus eine wichtige Rolle zu spielen [Ger03]. Abb. 6.4 stellt den Quer-

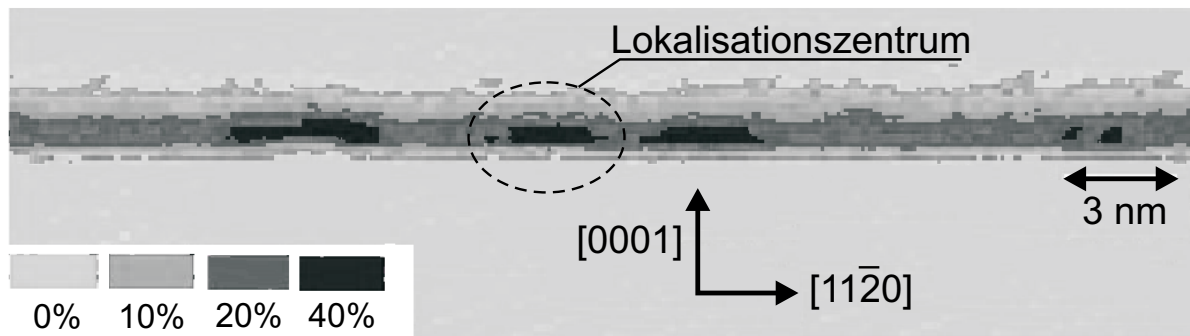


Abbildung 6.4: DALI-prozessierte TEM-Aufnahme eines 3nm-dicken InGaN/GaN-Quantenfilms [Pot04]. Die Farbcodierung gibt die In-Konzentration wieder.

schnitt eines InGaN/GaN-Quantenfilms³ mit einer Farbcodierung der In-Konzentration dar [Pot04]. Tatsächlich findet man hier In-reiche Inseln mit Durchmessern von wenigen Nanometern. Der lokale In-Gehalt in den Clustern beträgt dabei mindestens 40 % bei einem gemittelten In-Anteil von ca. 20 %. Die Flächendichte der Cluster liegt typischerweise im Bereich von 10^{11} - 10^{12} cm^{-2} [Kre02].

Als Ursache für die Bildung der In-Cluster wird vor allem die mangelhafte thermodynamische Stabilität der InGaN-Legierung in Betracht gezogen. Diese führt bei den üblichen Wachstumstemperaturen zu einer sehr großen Mischbarkeitslücke im InGaN-Phasendiagramm. Innerhalb dieser Lücke kommt es zu einer Phasentrennung [Ho96] und damit zur lokalen In-Anreicherung [Chi98]. Andere Arbeiten weisen darauf hin, dass eine laterale In-Segregation mit einer Anhäufung an Defekten gleichfalls bei der Bildung von In-reichen Clustern von Bedeutung sein könnte [Che00].

6.3 Der Probenaufbau und die PL-Emission

Die hier untersuchte Nitrid-Heterostruktur wurde mittels metallorganischer-Gasphasenepitaxie (MOVPE) auf einem 6H-SiC-Substrat aufgewachsen. Nach einer 300nm-dicken AlGaIn-Pufferschicht folgt zunächst eine 700nm-GaN-Schicht. Auf dieser wurde der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Quantenfilm mit einer Dicke von $d=3$ nm und In-Konzentration von $x=0.15$ aufgebracht. Abschließend wurde der Quantenfilm mit 40 nm GaN überwachsen.

Das Makro-PL-Spektrum des Quantenfilmes bei einer Temperatur von $T = 2$ K ist in Abb. 6.5 dargestellt. Die Anregung erfolgte mit den UV-Linien eines Argon-Ionen-Lasers (333 nm bis 364 nm) bei einer Anregungsdichte von 17 W/cm^2 . Im blauen Spektralbereich

³Die hier untersuchte Probe entspricht hinsichtlich Struktur- und Wachstumsparameter weitgehend der in dieser Arbeit analysierten Probe.

bei einer Energie von 2.84 eV findet sich eine intensive PL-Emission, welche der exzitoni- schen Rekombination aus dem Quantenfilm entspricht. Davon abgesehen zeigen sich zwei zusätzliche Signale um 91 meV bzw. 182 meV zu niedrigen Energien hin versetzt. Interpretiert werden diese Satelliten als LO-Phononrepliken, also der Exziton-Rekombination unter Emission von einem bzw. zwei LO-Phononen mit einer Energie von jeweils 91 meV [Pas02b]. Nach der Theorie von Huang und Rhys [Hua50] ergeben sich die Intensitäten der Phononrepliken in guter Näherung mit einer Poissonverteilung: $I_n = I_0 S^n / n!$. Der Huang-Rhys-Faktor S ist dabei ein Maß für die Stärke der Exziton-Phonon-Kopplung. Die beiden Phononrepliken aus Abb. 6.5 liefern übereinstimmend einen Faktor S von 0.20, der deutlich über dem Wert für Exzitonen im GaN-Volumenmaterial von 0.007 liegt [Kal02]. Dies kann einerseits als Hinweis auf eine starke Lokalisation gedeutet werden, da eine stärkere Ausdehnung der exzitoni- schen Wellenfunktion im k-Raum eine Ankopplung an einen größeren Teil des Phononspektrums erlaubt. Andererseits könnte aber auch das Piezofeld im Quan- tenfilm zur besseren LO-Phononkopplung beitragen, indem es eine Elektron-Loch-Trennung bewirkt.

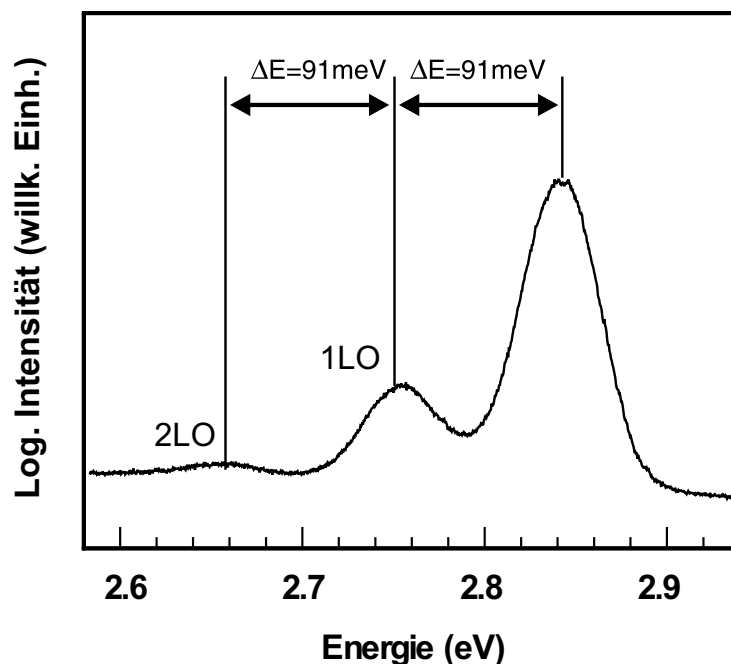


Abbildung 6.5: PL-Spektrum eines 3nm-dicken InGaN/GaN-Quantenfilms bei einer Temperatur von $T=2$ K und einer Anregungs- dichte von 17 W/cm^2 . Die PL-Intensität wurde logarithmisch aufge- tragen.

6.4 Zugang zu einzelnen Lokalisationszentren

Bisherige Versuche einzelne Lokalisations- bzw. Rekombinationszentren in InGaN/GaN-Quantenfilmen spektroskopisch aufzulösen waren wenig erfolgreich. Dies ist durchaus über- raschend, da hier Techniken eingesetzt wurden, die sich bei anderen Quantenpunkt-Systemen bewährt haben. Bei diesen Methoden handelt es sich vorrangig um die optische Nahfeldmi- kroskopie (SNOM) und die Kathodolumineszenz (CL). Entsprechende Messungen zeigten

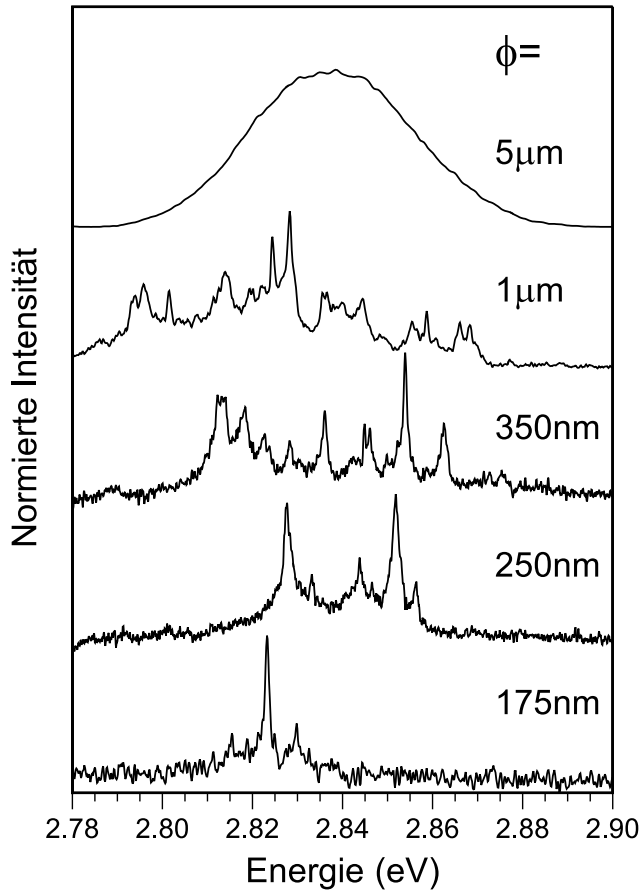


Abbildung 6.6: PL-Spektren, gemessen an Aperturen mit (von oben nach unten) abnehmenden Durchmessern ϕ . Die Temperatur beträgt 4 K.

zwar eine PL-Emission mit einer nanoskaligen Ortsabhängigkeit und deutlichen Abweichungen vom ortsintegrierten Signal. Allerdings konnten keine spektral scharfen Emissionslinien, wie sie von Quantenpunkten allgemein erwartet werden, nachgewiesen werden. So beträgt die geringste bislang veröffentlichte PL-Linienbreite 11.6 meV [Kan02]. Typische Halbwertsbreiten einzelner Quantenpunkte liegen um über eine Größenordnung niedriger. Neben SNOM und CL haben sich jedoch auch andere Techniken etabliert, die eine ultrahohe Ortsauflösung bieten können. Sie nutzen dazu die lithographische Nanostrukturierung der Probe, indem freistehende Mesen geätzt werden oder Metallmasken mit Nanoaperturen aufgebracht werden. In der spektroskopischen Analyse einzelner Quantenpunkte erwiesen diese Verfahren bereits ihre Überlegenheit gegenüber SNOM und CL. Konsequenterweise, wurde zur spektroskopischen Auflösung einzelner Lokalisationszentren im InGaN/GaN-Quantenfilm die Nanoaperturtechnik angewandt (siehe Abschn. 3.2.1).

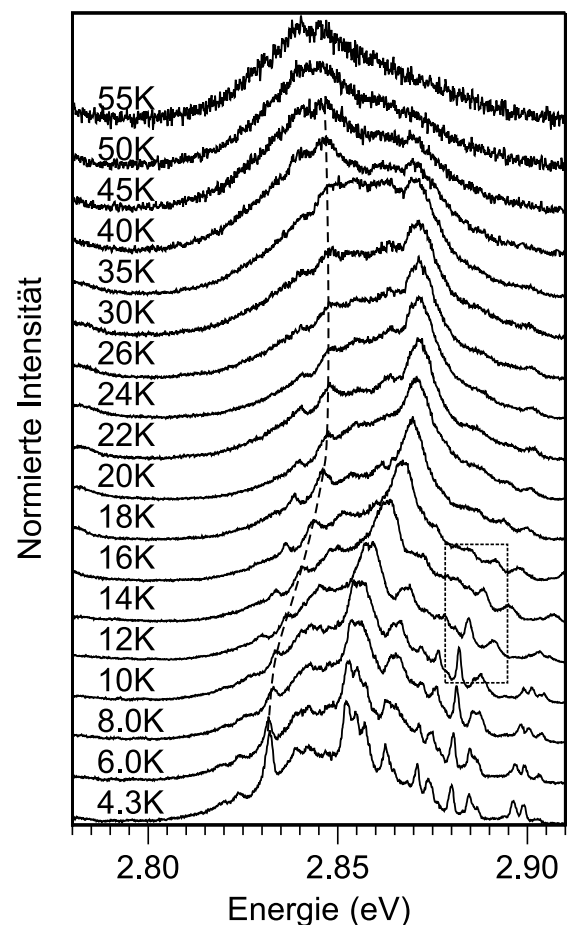
Dieser experimentelle Ansatz wurde erstmalig von Yu et al. [Yu98] verfolgt, jedoch ohne klare Hinweisauf die Emission aus einzelnen Zentren liefern zu können. Mittels Mikro-PL-Messungen an Aperturen verschiedener Abmessungen wurden die Spektren in Abb. 6.6 bei einer Temperatur von $T=4$ K aufgenommen. Die optische Anregung geschah wiederum mit den UV-Linien eines Argon-Ionen-Lasers. Das oberste Signal entspricht einem Aperturdurchmesser von $\phi=5 \mu\text{m}$. Es sind hier keine Unterschiede zur Makro-PL-Messung feststellbar. Das inhomogen verbreiterte Signal liegt bei einer Energie von 2.84 eV mit einer Halbwertsbreite von 43 meV. Bei einer Aperturgröße von nur noch $1 \mu\text{m}$ werden einzelne, schmalbandige Linien sichtbar. Bei weiterer systematischer Verkleinerung der Apertur nimmt schließlich die Anzahl der Linien kontinuierlich ab. Bei $\phi=175 \text{ nm}$ verbleiben schließlich nur noch sehr wenige Linien. Die naheliegende Interpretation für das Auftreten dieser individuellen Linien ist die Emission aus einzelnen Lokalisationszentren, die statistisch in

Größe und Materialzusammensetzung variieren. Dies harmoniert hervorragend mit den TEM-Ergebnissen an vergleichbaren Strukturen [Kre02, Pot04]. Beispielsweise kann man anhand der Linienzahl bezogen auf die Aperturfläche eine Flächendichte der optisch aktiven Zentren von etwas weniger als 10^{10} cm^{-2} ermitteln. Dieser Wert stimmt mit den kleinsten Dichten, bestimmt durch TEM überein. Zu beachten ist, dass aufgrund des Einbaus von Defekten möglicherweise nicht alle Lokalisationszentren wirklich optisch aktiv sind. Sie treten damit also nicht als Rekombinationszentren in Erscheinung. Als Indiz für die starke Lokalisierung der rekombinierenden Ladungsträger kann auch die geringe Linienbreite mit einem minimalen Wert von $FWHM=0.8 \text{ meV}$ gewertet werden. Solch kleine Halbwertsbreiten sind charakteristisch für Quantenpunkte mit ihrer deltaförmigen Zustandsdichte. Eine untere Grenze für die Linienbreite bildet wahrscheinlich die spektrale Diffusion durch fluktuierende Ladungen in der Umgebung der Zentren [Seu00a].

6.5 Das Temperaturverhalten einzelner Zentren

In Abb. 6.7 ist die typische Entwicklung eines Nanoaperturspektrums bei Erhöhung der Temperatur wiedergegeben. Während im Regime niedriger Temperaturen bis zu 10 K die Energie der Einzellinien kaum eine Änderung erfährt, so wird oberhalb von 10 K eine signifikante Blauverschiebung offenbar. Dies geschieht innerhalb eines sehr engen Temperaturintervalls von ca. 10 K und wird begleitet von einer dramatischen Linienverbreiterung (um einen Faktor von 2 bei einer Temperaturänderung um 6 K, siehe markierten Ausschnitt). Dies führt unter anderem schließlich zu einem Zusammenlaufen benachbarter Einzellinien und der Bildung relativ breiter Strukturen mit energetischen Ausdehnungen von einigen meV (siehe z.B. Hauptsignal).

Abbildung 6.7: PL-Spektren, aufgenommen an einer 350nm-Apertur für verschiedene Temperaturen. Die gestrichelte Linie zeigt die Verschiebung einer repräsentativen Einzellinie an.



Ein weiteres Erhöhen der Temperatur verursacht nur noch eine sehr geringe Verschiebung - diesmal jedoch zur roten Seite des Spektrums. Des weiteren stößt man auf eine augenscheinliche Umverteilung der PL-Intensität mit der Folge einer Verschiebung des effektiven spektralen Gewichts zu kleinen Energien. An dieser Stelle lohnt sich ein Vergleich der Messungen mit bisher veröffentlichten SNOM- und CL-Ergebnissen. Diese wurden nämlich ausschließlich bei Temperaturen oberhalb von 10 K durchgeführt. Ein Blick auf Abb. 6.7 genügt jedoch um festzustellen, dass hier die Beobachtung spektral scharfer Einzellinien bereits sehr schwierig wird. Dieser Umstand erklärt demnach die mangelhafte Auflösung einzelner Rekombinationszentren bei den bisherigen hochauflösenden Untersuchungen.

6.5.1 Das einzelne Zentrum im Vergleich zum Ensemble

Das temperaturabhängige Verhalten der Einzellinie soll nun verglichen werden mit der Charakteristik eines großen Ensembles, welches die makroskopische Emission der Struktur bestimmt. Dazu wurde die Makro-PL-Technik an einer Apertur mit $\phi=25 \mu\text{m}$ eingesetzt (siehe Abb. 6.8).

Überraschenderweise zeigt sich hier ein ganz anderes Verhalten. Mit zunehmender Temperatur verschiebt das Ensemble-PL-Signal zunächst zu niedrigen Energien, was im klaren Gegensatz zur Hochenergieverschiebung der Einzellinie steht. Ab einer Temperatur von ca. 50 K endet diese Rotverschiebung schließlich und kehrt sich in eine Blauverschiebung um. Ein solches Verhalten wurde in der Tat mehrfach für III-Nitrid-Quantenfilme beobachtet [Eli97, Cho98, Ber00] und mittlerweile mit dem Begriff "*S-Kurve*" überschrieben. Bekannt für eine derartige Temperaturcharakteristik sind Heterostrukturen mit starken Lokalisierungseffekten [Guh98, Nas97], insbesondere aber Quantenpunktsystem [San99, Seu00b]. Die Erklärung für das Verhalten des Ensemblesignals sieht dabei folgendermaßen aus: Bei tiefen Temperaturen werden die Ladungsträger nicht nur von tiefen Zentren, sondern auch von flachen also höherenergetischen Zentren eingefangen. Dort bleiben sie aufgrund der niedrigen thermischen Energie lokalisiert. Mit Erhöhung der thermischen Energie jedoch werden die Ladungsträger aus den flachen Zentren aktiviert und lokalisieren stattdessen in tieferen Zentren [Seu02b]. Dies resultiert in einer Rotverschiebung der PL mit der Temperatur. Bei ca. 50 K ist die thermische Gleichgewichtsbesetzung erreicht und eine weitere Anhebung der Temperatur bewirkt nun das stetige Auffüllen höherenergetischer Zustände. Es kommt demgemäß zu einer Blauverschiebung der Emission. Die Abnahme der Bandlücke mit der Temperatur wirkt sich bei solch tiefen Temperaturen noch gering aus (siehe Abb. 6.9 (oben)) und ändert damit die S-Kurven-Charakteristik qualitativ nicht. Letztlich ist also eine temperaturabhängige Umverteilung der Ladungsträger im Ensemble der Lokalisationszentren verantwortlich für die S-Kurve.

Abb. 6.9 unternimmt nun eine direkte Gegenüberstellung der Temperaturabhängigkeit der Einzellinie (obere Bildhälfte) und des Makro-Ensembles (untere Bildhälfte). Während also im Bereich tiefer Temperaturen die PL-Energie des Ensembles um 17 meV abnimmt, so nimmt die Energie des einzelnen Zentrums um 16 meV zu. Dieser Gegensatz ist durchaus im Einklang mit der eben vorgestellten Interpretation der S-Kurve des Ensembles als

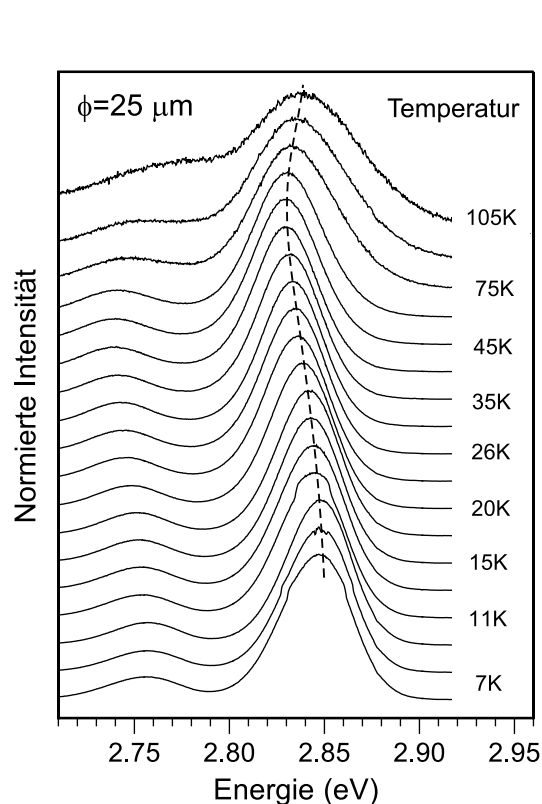


Abbildung 6.8: Makro-PL-Spektren einer Apertur mit $\phi = 25 \mu\text{m}$ für verschiedene Temperaturen. Die gestrichelte Linie dient der Führung des Auges.

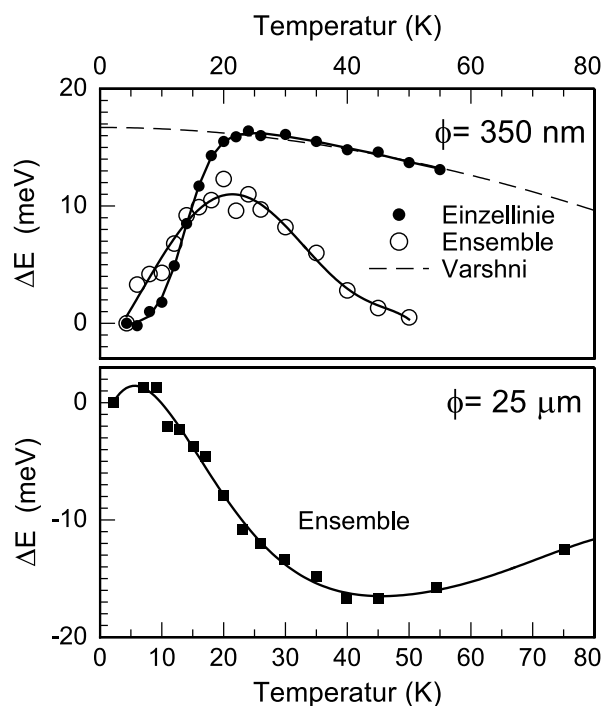


Abbildung 6.9: Energieverschiebung als Funktion der Temperatur für eine Einzellinie und den spektralen Schwerpunkt des Ensembles aus Abb. 6.7 (oben) und die Makro-PL-Spektren aus Abb. 6.8 (unten). Die gestrichelte Linie entspricht der Varshni-Verschiebung der Bandlücke [Per98].

Umverteilung der Ladungsträger. Diese bedingt nämlich eine Umverteilung der relativen Intensitäten zwischen den nieder- bzw. hochenergetischen Einzellinien. Es bedarf aber, wie es sich im Experiment bestätigt, keiner Rotverschiebung der einzelnen Linien. Ein interessantes Ergebnis liefert hier die Auswertung des spektralen Schwerpunktes \bar{E} eines Ensembles bestehend aus nur wenigen Linien, gemessen an einer Nanoapertur (Abb. 6.7). Für die jeweiligen Spektren wurde also folgendes berechnet:

$$\bar{E} = \frac{\int I(E) \cdot E dE}{\int I(E) dE} \quad (6.8)$$

Das temperaturabhängige Verhalten von \bar{E} ist gleichfalls in Abb. 6.9 eingetragen. In diesem Fall zeigt sich wie bei der Einzellinie eine Blauverschiebung, die jedoch bei 20 K in eine deutliche Rotverschiebung übergeht. Auch bei diesem kleinen Ensemble machen sich also Umverteilungsprozesse bemerkbar. Diese sind jedoch weniger dominant, so dass die Verschiebung der Einzellinien sich noch bemerkbar machen kann. Die wahrscheinliche

Ursache für die verminderte Wirkung der Umverteilung ist die Diffusion der Ladungsträger unter die Metallmaske, wo sie nicht zum detektierten Signal beitragen können. Da so insbesondere die hochenergetischen und damit beweglichen Ladungsträger verloren gehen, fällt die gemittelte Energieabsenkung durch Umverteilung weniger stark aus.

Verfolgt man die Energie der Einzellinie oberhalb von 25 K weiter, so stellt man eine schwache, aber kontinuierliche Rotverschiebung fest. Diese ist bedingt durch die abnehmende Bandlücke gemäß dem Varshni-Gesetz in der Form:

$$E(T) = E_0 - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} \quad (6.9)$$

E_0 entspricht der extrapolierten Bandlücke bei $T=0$ K. Die phänomenologischen Parameter $\alpha=0.94$ meV/K und $\beta=770$ K wurden der Literatur entnommen [Per98]. Die Beobachtung der Varshnierverschiebung stellt für das Verhalten von Einzel-Quantenpunkten verschiedenster Materialsysteme den Normalfall dar (siehe z.B. Abschn. 4.4). In diesem Sinne bedeutet die Blauverschiebung des einzelnen Lokalisationszentrums ein anormales Verhalten, das eine eigene Erklärung verlangt.

6.5.2 Die anormale Verschiebung des Einzelzentrums

Auf der Suche nach einer Ursache für das anormale Temperaturverhalten der einzelnen Zentren verdient gerade das immense interne elektrische Feld eine besondere Beachtung. So macht es nämlich den Hauptunterschied zu allen anderen Quantenpunktsystemen aus. In diesem Sinne soll hier folgende Erklärung vorgeschlagen werden:

Mit Anhebung der Temperatur werden elektrische Ladungen in der GaN-Barriere thermisch aktiviert, d.h. freigesetzt. Das elektrische Feld, welches die Polarisationsladungen an den Grenzflächen auch in der Barriere erzeugen (siehe Abb. 6.10), transportiert die freigesetzten Ladungen auf der einen Barrierenseite *zum* Quantenfilm, auf der anderen Barrierenseite jedoch vom Quantenfilm *weg*. Defekte in der Umgebung der Lokalisationszentren wirken nun als Traps [Seu00a, Blo00] und fangen diese Ladungen ein.

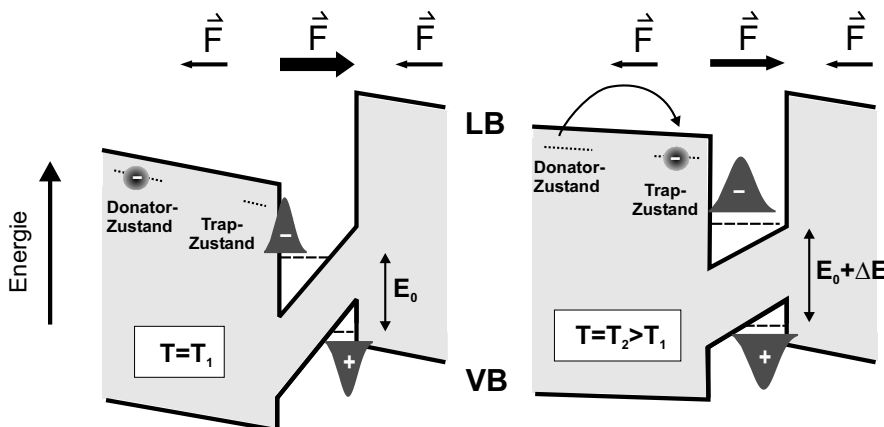


Abbildung 6.10: Schematische Darstellung der Feldabschirmung im Quantenfilm durch thermisch aktivierte Ladungsträger.

Das Feld, das die eingefangenen Ladungen erzeugen, ist aber dem Feld im Quantenfilm entgegengesetzt, so dass es zu einem Abschirmeffekt kommt. Der QCSE im Quantenfilm wird also reduziert, woraus eine Energieanhebung der lokalisierten Ladungsträger - und damit eine Blauverschiebung der PL-Linie - resultiert (Abb. 6.10).

Eine mögliche Quelle dieser freien Ladungen sind Donatorzustände in der GaN-Barriere. So konnten Chichibu *et al.* bereits feststellen, dass bei InGaN/GaN-Quantenfilmen mit zunehmender Si-Dotierung des GaN-Barrierenmaterials sowohl eine Blauverschiebung des PL-Signals als auch eine drastische Abnahme der Exziton-Lebensdauer auftritt [Chi99]. Dies wurde als klares Indiz für einen Abschirmeffekt gedeutet. Bekanntermaßen zeigt jedoch bereits intrinsisches GaN eine n-Dotierung mit typischen Dichten von 10^{17} cm^{-3} [Mir99]. Es ist also auch hier eine dotierungsbedingte Abschirmung zu erwarten [Oma03]. Diese soll nun bezüglich ihrer Temperaturabhängigkeit im Detail betrachtet werden. Eine thermische Aktivierung der Donatoren erzeugt freie Ladungsträger (Elektronen) mit der Volumendichte n . Diese ergibt sich aus der Bedingung der Ladungsneutralität [Loo97b, Soh04]. Unter der Annahme einer verschwindenden Kompensation (d.h. Akzeptordichte N_A vernachlässigbar) kann man dann schreiben:

$$n = \frac{N_D}{1 + 2 \cdot n/N_c \cdot \exp(E_a/k_B T)} \quad (6.10)$$

Hierbei entspricht N_D der Donatordichte. N_c ist die effektive Zustandsdichte im Leitungsband ($N_c = 4.3 \cdot 10^{14} \cdot T^{1.5} \text{ cm}^{-3} \text{ K}^{-1.5}$ [Soh04]) und E_a meint die Aktivierungsenergie der Donatoren. Das elektrische Feld in der substratseitigen Barriere (siehe Abb. 6.10) befördert nun die freigesetzten Elektronen zum Quantenfilm, während die Elektronen auf der anderen Barrierenseite vom Quantenfilm weggetragen werden. Der Einfang der Elektronen durch Traps in der Umgebung der Lokalisationszentren führt dann zum Aufbau einer Ladungsschicht mit der Flächendichte $n^{2D} = n \cdot \lambda$ auf, wobei λ der Tiefe des Barrierenmaterials entspricht, welches Elektronen zum Quantenfilm liefert. Setzt man die Flächendichte n^{2D} in Gl. 2.11 und 6.7 ein, so kann man schließlich eine temperaturabhängige QCSE-Verschiebung berechnen. In Abb. 6.11 (oben) sind beispielhaft zwei QCSE-Rechnungen im Vergleich zum Experiment dargestellt. Folgende Werte fanden hierbei Verwendung: $F = 2.2 \text{ MV/cm}$ [Lef01], $m_e = 0.2 \cdot m_0$ und $m_{hh} = 1.7 \cdot m_0$ [Li02]. Der unbestimmte Parameter $N_D \cdot \lambda$ wurde hier mit $8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ abgeschätzt.

Es zeigt sich, dass unter der Annahme einer Aktivierungsenergie deutlich unterhalb von 10 meV (hier 5 meV) im Bereich tiefer Temperaturen eine adäquate Modellierung der experimentellen Daten möglich ist. Die Rechnung der Energieverschiebung liefert dabei eine abschirmende Ladungsdichte, die bei 20 K einen Wert von $8 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ annimmt und eine Feldänderung von 140 kV/cm bewirkt (siehe Abb. 6.11 (unten)). Das Ende der Energieverschiebung, wie es im Experiment bei ca. 20 K zu beobachten ist, findet sich in der Rechnung jedoch nicht wieder. Dies ist auch nicht zu erwarten, da das Modell weder eine Sättigung der elektrostatischen Abschirmung noch die begrenzte Anzahl an Traps an der Umgebung der

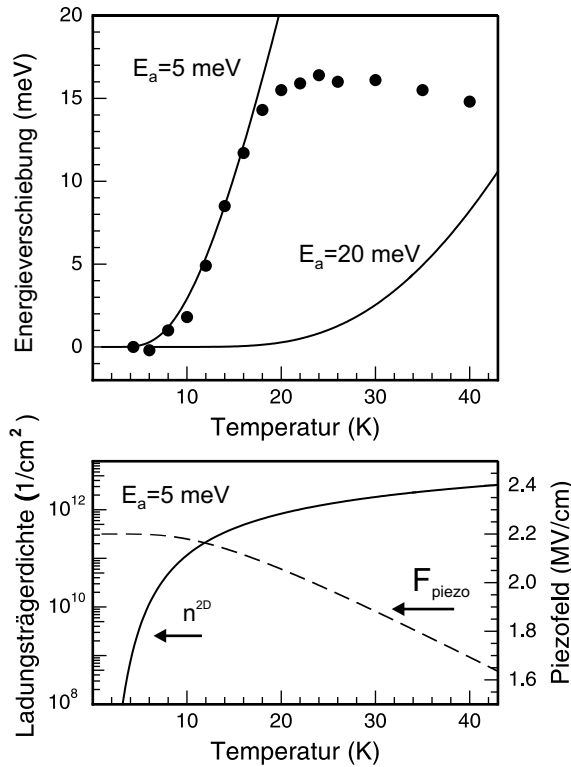


Abbildung 6.11: oben: Temperaturabhängige Energieverschiebung einer Einzellinie und Beispiel-Rechnungen nach dem QCSE-Modell. unten: Ladungsträgerdichte und Piezofeld für $E_a = 5 \text{ meV}$ als Funktion der Temperatur nach dem QCSE-Modell.

Lokalisationszentren berücksichtigt. Bemerkenswert ist auch die Aktivierungsenergie, welche deutlich unter 18 meV liegt - dem E_a -Wert, der für den wahrscheinlichen Hauptdonor Si ermittelt wurde [Loo97a]. Tatsächlich weisen neuere Messungen auf Donatorzustände mit sehr kleinen Aktivierungsenergien von etwa 5 meV hin [Shi04].

In Abb. 6.12 (links) sind die PL Spektren eines einzelnen Lokalisationszentrums nochmals vergrößert dargestellt. Augenfällig ist, dass gerade im Temperaturbereich mit der stärksten Energieverschiebung auch die Linienbreite in dramatischer Weise zunimmt. Diese scheinbare Korrelation wird besonders in Abb. 6.12 (rechts) offenbar. Prinzipiell ist eine Zunahme der Linienbreite mit der Temperatur nicht ungewöhnlich. So verstärkt sich bekanntermaßen die Streuung der Ladungsträger mit den Phononen. Bei tiefen Temperaturen sind es vor allem akustische Phononen, die einen linearen Anstieg der homogenen Linienbreite Γ verursachen [Rud90]:

$$\Gamma(T) = \Gamma_0 + \sigma T \quad (6.11)$$

Γ_0 steht hier für die Ausgangslinienbreite bei $T=0 \text{ K}$ und $\sigma=0.036 \text{ meV/K}$ [Xu02] gibt die Stärke der Exziton-Phonon-Kopplung wieder. Der zu erwartende Anstieg der Linienbreite gemäß dieser Gleichung (Abb. 6.12 (rechts)) fällt jedoch eindeutig zu gering aus, um die experimentellen Werte erklären zu können. Zudem zeigen diese eine deutliche Abweichung vom linearen Verhalten der Gl. 6.11.

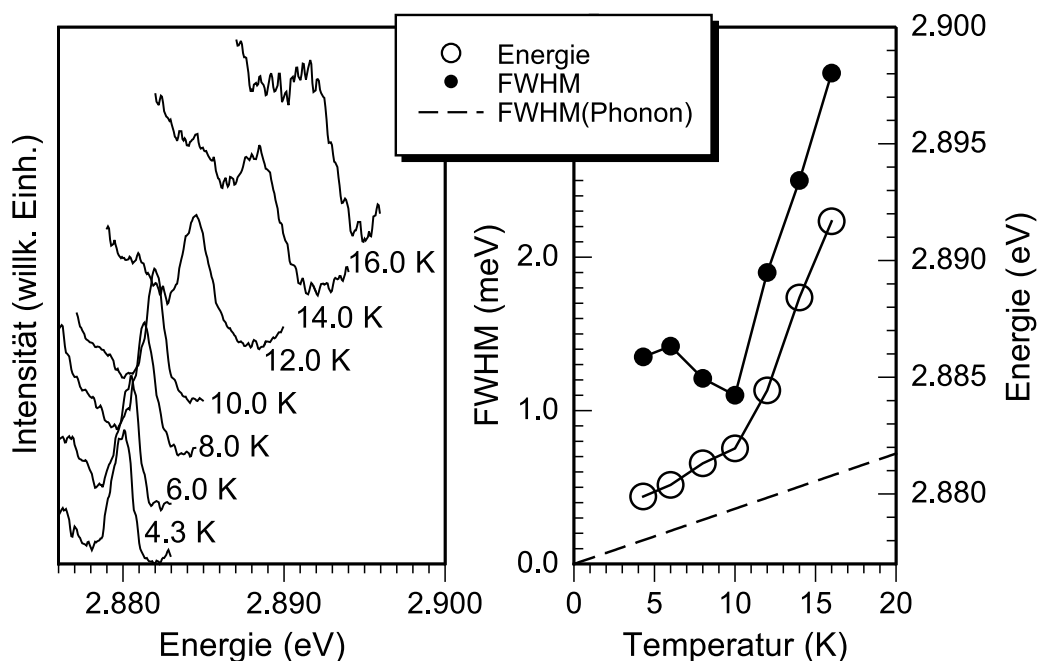


Abbildung 6.12: links: PL-Spektren eines einzelnen Lokalisationszentrums bei verschiedenen Temperaturen. rechts: Energie und Halbwertsbreite einer Einzelleine (siehe links) als Funktion der Temperatur. Die gestrichelte Linie entspricht der erwarteten Linienverbreiterung durch Phononstreuung [Xu02]. Γ_0 wurde vernachlässigt.

Andererseits scheint man generell bei Einzel-Quantenpunkten bisweilen auf Linienbreiten zu treffen, die über die phononbedingte Linienverbreiterung hinausgehen. Tatsächlich weisen Einzel-Quantenpunkte verschiedener Materialsysteme häufig Emissionslinien auf, deren spektrale Breiten mit Phononstreuung alleine nicht erklärt werden können. Verantwortlich hierfür ist die *spektrale Diffusion* [Emp96, Seu00a]. Fluktuierende Ladungen in der Umgebung des Quantenpunktes verursachen ein statistisch variierendes elektrisches Feld. Dieses wirkt sich über den QCSE direkt auf die Energie der lokalisierten Ladungsträger aus. Es kommt also zu einer statistischen Fluktuation der Rekombinationsenergie und damit zu einer Linienverbreiterung.

Im vorliegenden Fall hat nun gerade die Energieverschiebung der PL-Linie bereits einen starken Hinweis auf die Anwesenheit von Ladungen der Dichte n in der Umgebung des Lokalisationszentrums gegeben. Diese sorgen für eine Abschirmung des internen elektrischen Feldes. Fluktuiert die Dichte dieser Ladungen mit der statistischen Breite Δn , so variiert auch der Abschirmeffekt und damit das elektrische Feld. Die dadurch bedingte Linienverbreiterung ist damit nicht unabhängig von der Verschiebung der PL-Linie. Vielmehr sollte eine Korrelation zwischen diesen beiden Größen bestehen. Aus der Poissonstatistik ergibt sich nämlich der Zusammenhang: $\Delta n \propto \sqrt{n}$. Im Bereich kleiner Feldänderungen, wie sie durch die Abschirmung auftreten, verhält sich die QCSE-Energieverschiebung aber

annähernd linear zur Teilchendichte n . Somit gilt auch: $FWHM = \Delta E \propto \sqrt{E}$. In Abb. 6.13 wurde nun die quadrierte Halbwertsbreite der Einzellinie als Funktion der Energieverschiebung aufgetragen. Es zeigt sich hier im Einklang mit obiger Relation ein linearer Zusammenhang. Damit liegt also ein weiterer Hinweis auf die Feldabschirmung durch thermisch freigesetzte Ladungen vor. Dieser Effekt bestimmt das temperaturabhängige Verhalten eines einzelnen Lokalisationszentrums im Bereich kleiner Temperaturen ($T < 20$ K).

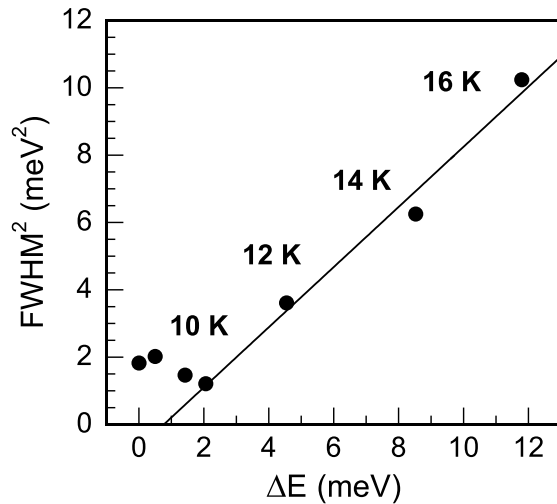


Abbildung 6.13: Die quadrierte Halbwertsbreite einer Einzellinie als Funktion der Energieverschiebung relativ zur PL-Energie bei $T=4.3$ K.

6.6 Einzelne Zentren bei Variation der Anregungsdichte

Zu den charakteristischen Eigenheiten von InGaN/GaN-LEDs gehört zweifellos die Verschiebung der Emission zu kurzen Wellenlängen bei Erhöhung des Betriebsstromes [Eli97]. Bis heute sind jedoch die Erklärungen für dieses Phänomen sehr uneinheitlich. So gibt es zwei Mechanismen, die in diesem Zusammenhang diskutiert werden. Zum einen wird vorgeschlagen, dass die zunehmende Ladungsträgerdichte eine Abschirmung des internen elektrischen Feldes besorgt und so die Energieabsenkung durch den QCSE reduziert [Per98, Li02]. Dieser Mechanismus soll im folgenden kurz als Abschirmeffekt bezeichnet werden. Zum anderen ist aber auch eine Bandfülleffekt denkbar. Hier kommt es bei zunehmender Ladungsträgerdichte zu einer sukzessiven Auffüllung des Bandes der lokalisierten Zustände [Kuo02, Jah03]. Während bislang nur indirekte Hinweise für den einen oder anderen Effekt gefunden wurden, so erlaubt die spektroskopische Adressierung einzelner Lokalisationszentren nun den direkten Zugang zu dieser Frage.

6.6.1 Das einzelne Zentrum versus das Ensemble

Zunächst soll hier das Verhalten der Makro-PL, also eines großen Ensembles von Lokalisationszentren, näher beleuchtet werden. Statt allerdings die Ladungsträgerdichte über

die Stärke der elektrische Injektion zu verändern, wurde hier die optische Anregung über weite Strecken variiert. Wie in Abb. 6.14 zu ersehen ist, tritt der schon bekannte Effekt ein. Mit zunehmender Anregungsleistung verschiebt das PL-Signal in dem hier dargestellten Leistungsintervall um ca. 65 meV zur Hochenergieseite des Spektrums.

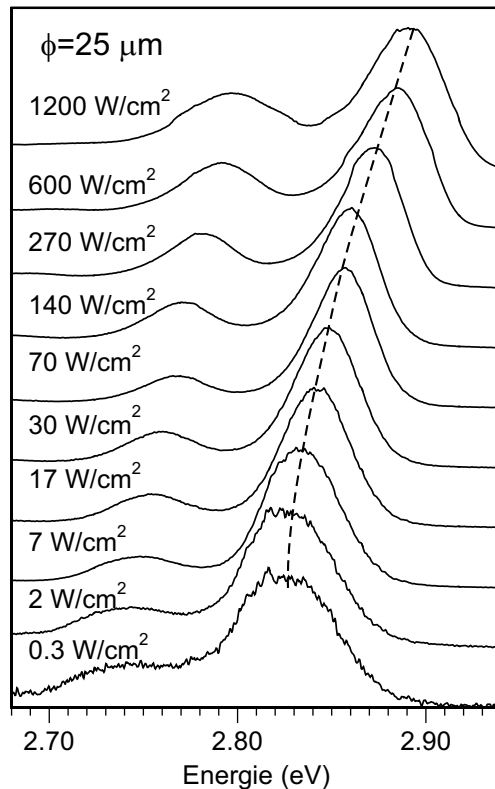


Abbildung 6.14: Makro-PL-Spektren bei verschiedenen Anregungsdichten und einer Temperatur von $T=2 \text{ K}$. Die gestrichelte Linie dient der Führung des Auges.

Bedenkt man, dass das Makro-PL-Signal einer Überlagerung vieler Einzellinien entspricht, so sind an dieser Stelle grundsätzlich zwei Szenarien vorstellbar: Die Verschiebung des Ensemblesignals kann bedingt sein durch 1) eine kollektive Verschiebung sämtlicher Einzellinien oder 2) eine Umverteilung der relativen Intensitäten der Einzellinien, ohne dass diese jedoch selbst verschieben. Die Untersuchungen zum temperaturabhängigen Verhalten haben ja bereits gezeigt, dass beide Effekte eine wichtige Rolle spielen können. Insbesondere der Umverteilungseffekt erwies sich dort aber als dominant genug, um die starken Verschiebungen der Einzellinien komplett zu überdecken. Die Unterscheidung der beiden Effekte gelingt nun wieder durch die hochauflösende Spektroskopie mit der Analyse einzelner Lokalisationszentren. Abb. 6.15 stellt die μPL -Spektren zweier Aperturen dar, welche bei verschiedener Anregungsdichte aufgenommen wurden. Auf den ersten Blick wird klar, dass hier kaum eine Verschiebung der Einzellinien auftritt (siehe schattierte Zone). Stattdessen verlieren die niederenergetischen Linien mit zunehmender Anregungsdichte an Intensität relativ zu den hochenergetischen Linien. Dies hat in dem hier betrachteten Leistungsbe-
reich eine Verschiebung des spektralen Schwerpunktes um ca. 31 meV zu hohen Energien zur Folge (siehe Abb. 6.16 links). Dies läßt also den Schluss zu, dass die Blauverschiebung der Makro-PL in Abb. 6.14 gleichfalls auf eine Umverteilung der Linienintensitäten

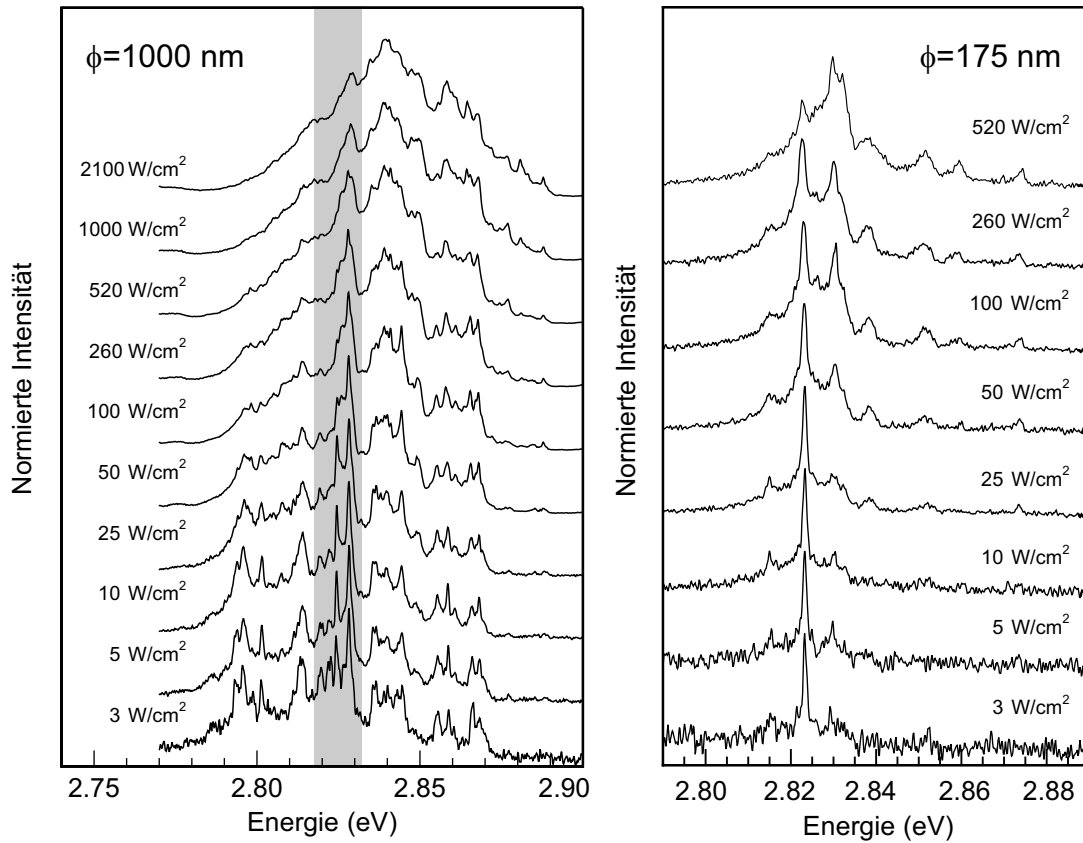


Abbildung 6.15: μ PL-Spektren bei verschiedenen Anregungsdichten und einer Temperatur von $T=4 \text{ K}$. Die Aperturdurchmesser betragen 1000 nm (links) und 175 nm (rechts).

zurückzuführen ist, und nicht auf eine kollektive Linienverschiebung.

Damit liegt aber ein wichtiger Hinweis zur Unterscheidung zwischen dem Abschirm- und dem Bandfülleffekt vor. Nach der gängigen Vorstellung sind es nämlich delokalisierte Ladungsträger, welche die Abschirmung des elektrischen Feldes bewirken. Da deren Konzentration kontinuierlich mit der Anregungsdichte steigen sollte, erwartet man eine gleichfalls kontinuierliche Blauverschiebung der Einzellinien. Beobachtet werden im Vergleich zur Gesamtverschiebung des PL-Signals jedoch nur sehr geringe Effekte. Demnach spielt die Abschirmung des elektrischen Feldes in der geschilderten Weise eine zumindest untergeordnete Rolle. Einen alternativen Erklärungsansatz bietet die sukzessive Auffüllung der lokalisierten Zustände. Bei geringer Anregung sind es in der Hauptsache die niederenergetischen Lokalisationszentren, die mit Elektron-Loch-Paaren besetzt werden. Mit zunehmender Anregungsleistung werden diese Ein-Exziton-Zustände abgesättigt und es kommt zu einer Besetzung weiterer Zustände. Dies können zum einen Multiexziton-Zustände in den niederenergetischen Zentren sein, zum anderen wird aber auch die Ein-Exziton-Besetzung höherenergetischer Zentren wahrscheinlicher. Unterscheidbar sind die beiden Fälle anhand der PL-Intensität der Linien bei Erhöhung der Anregungsleistung. Diese nimmt für Multiexzitonen überlinear zu, während Ein-Exziton-Zustände eine lineare Abhängigkeit aufwei-

sen. Da die Mehrzahl der Linien eine annähernd lineare Intensitätszunahme zeigen (Abb. 6.16 (rechts)), scheint die Einfachbesetzung hochenergetischer Zentren mehrheitlich für die Einzellinien, welche bei hoher Anregung dominant werden, verantwortlich zu sein.

Man könnte nun aufgrund einer solchen Bandauffüllung eine Verschiebung der Hochenergieflanke und damit eine spektrale Verbreiterung der PL Emission erwarten. Abb. 6.14 zeigt jedoch eine Verschiebung des PL-Signals ohne ein Anzeichen für eine Linienverbreiterung. Dies kann zum einen anhand einer mit der Energie zunächst zunehmenden Zustandsdichte lokalisierter Zustände erklärt werden. Zum anderen kann aber auch hier das interne elektrische Feld eine nicht unerhebliche Rolle spielen.

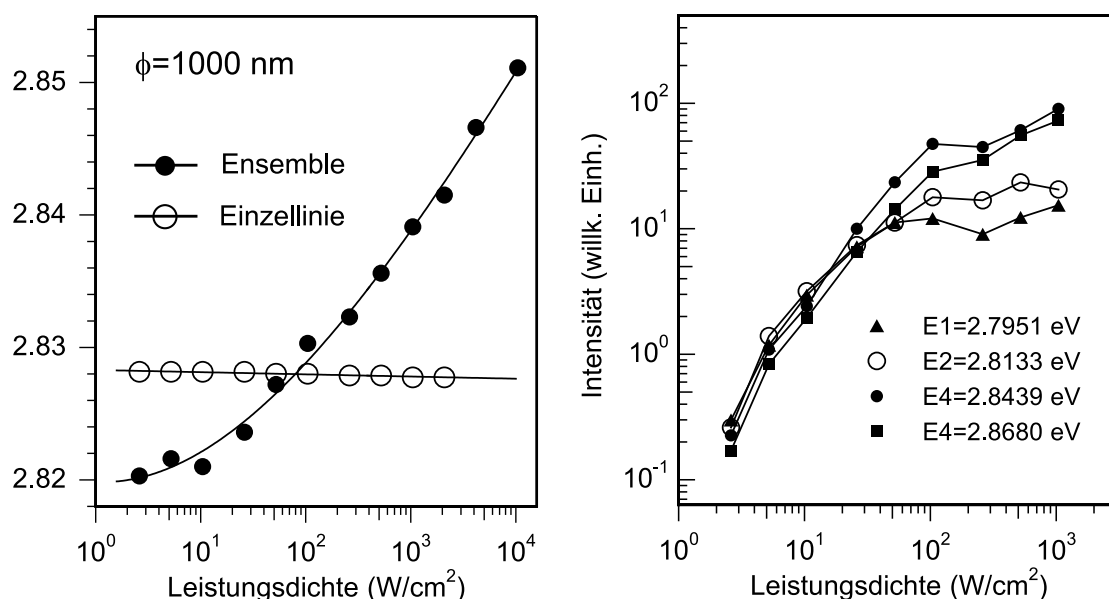


Abbildung 6.16: links: PL-Energie als Funktion der Leistungsdichte bei $T=4$ K für eine Einzellinie und den spektralen Schwerpunkt des Ensembles aus Abb. 6.15 (links). rechts: PL-Intensitäten verschiedener Einzellinien aus Abb. 6.15 (links) in Abhängigkeit der Leistungsdichte bei $T=4$ K.

Es gilt zu bedenken, dass die energetische Dispersion der einzelnen Lokalisationszentren wohl insbesondere aus der Fluktuation des In-Gehaltes resultiert. Grund hierfür ist die sehr große Bandlückendifferenz zwischen InN und GaN. Wegen der großen effektiven Massen und des kleinen Bohrradius liegen für Exzitonen andererseits nur kleine Quantisierungsenergien vor, so dass eine Größenfluktuation der Lokalisationszentren hier kaum ins Gewicht fallen sollte. Die niederenergetischen Linien entsprechen also vermutlich eher Lokalisationszentren mit hohem In-Gehalt, während die PL-Linien bei hohen Energien bedingt sind durch geringere In-Anteile. Weniger Indium bedeutet jedoch ein schwächeres Piezofeld und damit eine verkürzte strahlende Lebensdauer der Exzitonen [Sal99]. Die Rekombinationsrate der Exzitonen aus hochenergetischen Zentren ist demnach größer als bei den niederenergetischen [Pop98]. Dies wird bestätigt durch das Sättigungsverhalten der

PL-Intensitäten von Einzellinien verschiedener Energie (Abb. 6.16 (rechts)). Je höher die Energie der PL-Linie, desto größer ist augenscheinlich die Sättigungsintensität, was auf eine gleichfalls erhöhte Rekombinationsrate schließen lässt. Beim Auffüllen der Zustände bleiben also die Intensitäten der niederenergetischen Linien hinter den hochenergetischen zurück. Dies bedeutet im Spektrum eine Verschiebung des PL-Signals als ganzes und nicht nur eine Verschiebung der Hochenergieflanke.

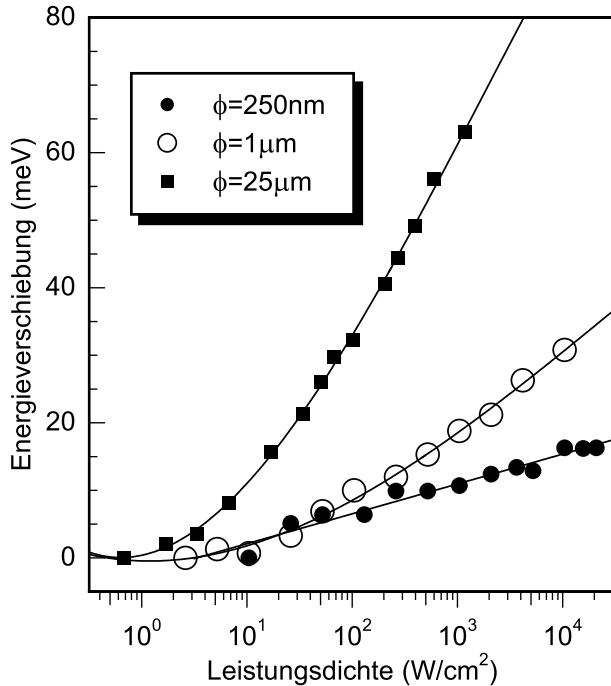


Abbildung 6.17: Energieverschiebung des spektralen Schwerpunktes von Ensembles verschiedener Größe als Funktion der Leistungsdichte. Im Falle der $\phi=25\mu\text{m}$ -Apertur beträgt die Temperatur 2 K, bei den anderen Aperturen sind es 4 K.

Bemerkenswert ist, dass die Blauverschiebung des Ensembles stark von dessen Größe, also der Anzahl der Einzellinien, abhängt. Einen entsprechenden Vergleich findet man in Abb. 6.17 anhand Aperturen verschiedener Durchmesser. Je größer das Ensemble, desto stärker fällt die Änderung der Energie aus. Ein ähnliches Verhalten war schon bei der temperaturabhängigen Verschiebung offenbar geworden (siehe Abschn. 6.5.1). Die Diffusion der Ladungsträger unter die Metallmaske spielt auch hier eine Rolle. Dieser Effekt ist insbesondere für Nanoaperturen wichtig, deren Durchmesser vergleichbar ist mit der lateralen Diffusionslänge L_D . Vertikov *et al.* [Ver99] berichten hier von L_D -Werten bei Raumtemperatur zwischen 150 und 250 nm. Interessanterweise fand man, dass L_D mit der PL-Energie zunimmt. Dies ist durchaus plausibel, da Ladungsträger aus den hochenergetischen, flachen Zentren leichter aktiviert werden und somit weiter diffundieren können. Die Wanderung der Ladungsträger aus dem Detektionsfenster, d.h. unter die Maske, wirkt sich also insbesondere in einer verminderten Besetzung der hochenergetischen Zentren im Detektionsfenster aus. Die Konsequenz der energieabhängigen Diffusion ist eine Reduktion der Bandauffüllung und der damit verbundenen PL-Blauverschiebung. Dieser Effekt gewinnt mit abnehmender Aperturgröße natürlich an Bedeutung. Die Experimente aus Abb. 6.9 und Abb. 6.17 zeigen deutlich, dass selbst bei sehr tiefen Temperaturen die la-

terale Diffusion und Umverteilung der Ladungsträger einen erheblichen Einfluss auf die Emissionscharakteristik von InGaN/GaN-Quantenfilmen haben.

6.6.2 Das Biexziton im einzelnen Zentrum

Mit Erhöhung der Ladungsträgerdichte steigt naturgemäß auch die Wahrscheinlichkeit für einen Einfang mehrerer Exzitonen in einem Lokalisationszentrum. Im Falle zweier Exzitonen läge damit ein Biexziton vor. Derartige Zustände werden häufig bei Quantenpunkten angetroffen, wo sie aufgrund des quantenmechanischen Einschlusses besonders stabil sind. Als zuverlässiges Erkennungszeichen erwies sich hierbei ein quadratischer Anstieg der PL-Intensität bei zunehmender Anregungsdichte. Dieser ist aufgrund des Zweiteilchen-Natur des Zustandes so zu erwarten. Tatsächlich finden sich auch beim InGaN-Quantenfilm Linien, die dieses Kriterium erfüllen. Zwei Beispiele hierfür sind in Abb. 6.18 (links) dargestellt.

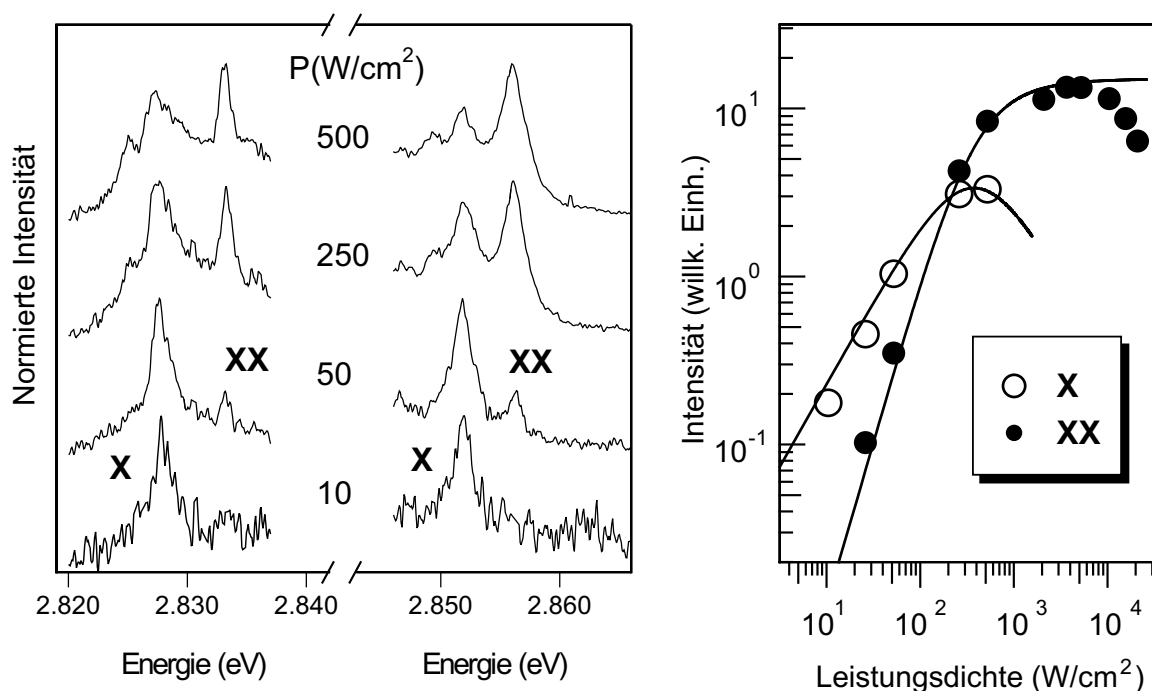


Abbildung 6.18: links: Ausschnitte aus dem PL-Spektrum einer 250nm-Apertur bei verschiedenen Anregungsdichten und einer Temperatur von 4 K. rechts: PL-Intensität als Funktion der Anregungsdichte für zwei Linien aus den links dargestellten Spektren. Die Linie bei $E=2.8518 \text{ eV}$ entspricht dem Exzitonenzustand, während die Linie bei $E=2.8562 \text{ eV}$ dem zugehörigen Biexziton zugeschrieben wird.

Während bei geringer Anregung nur jeweils eine Linie anzutreffen ist, so erscheint bei Erhöhung der Leistungsdichte eine zweite Linie, deren Intensität sehr schnell anwächst. Die rechte Hälfte der Abb. 6.18 zeigt nun die PL-Intensitäten des rechten Linienpaares

in Abhängigkeit der Anregungsdichte. Zum einen findet man im Bereich niedriger Anregung für die niederenergetische Linie ($E=2.8518$ eV) einen linearen Anstieg der Intensität und zum anderen weist die hochenergetische Linie ($E=2.8562$ eV) eine quadratische PL-Zunahme auf. Da ein solches Verhalten typisch für ein Exziton-Biexziton-Paar ist, bietet sich eine entsprechende Zuordnung für die Linien in Abb. 6.18 (links) an. Eine detaillierte Betrachtung der PL-Intensitäten von Exziton und Biexziton erfordert die Ermittlung der entsprechenden Besetzungswahrscheinlichkeiten. Diese sind für Exziton- und Biexzitonzustand aus den Ratengleichungen abzuleiten und lassen sich wie folgt angeben [Low99]:

$$w_0 = \frac{1}{1 + P\tau_x + P^2\tau_{xx}}, \quad w_x = P\tau_x w_0, \quad w_{xx} = P^2\tau_x\tau_{xx}w_0 \quad (6.12)$$

Hierbei ist P proportional zur Dichte der "freien" Exzitonen und damit zur optischen Anregungsdichte. τ_x und τ_{xx} entsprechen der Lebensdauer von Exziton und Biexziton. In Abb. 6.18 (rechts) ist eine Anpassung der Linienintensitäten mit den obigen Gleichungen (6.12) dargestellt. Unter Verwendung eines Lebensdauer-Verhältnisses von $\tau_{xx}/\tau_x \approx 2$ gelingt eine adäquate Beschreibung der PL-Intensitäten.

Anhand der Spektren lässt sich nun die Bindungsenergie des Biexzitons ablesen. Diese ist definiert als die Energiedifferenz zwischen zwei unabhängigen Exzitonen und dem Biexziton. Damit ist sie identisch mit dem energetischen Abstand zwischen der Exziton- und der Biexzitonlinie. Da letztere eine höhere Energie aufweist, stößt man tatsächlich auf eine *negative* Bindungsenergie für das Biexziton von ca. -5 meV. Dies ist insofern ungewöhnlich, als andere Quantenpunktsysteme wie InAs/GaAs oder CdSe/ZnSe typischerweise *positive* Biexzitonbindungsenergien von jeweils 3 meV [Kut98] bzw. 25 meV [Kul99a] offenbaren. Hinsichtlich der im allgemeinen großen Rydberg-Energien in den Nitriden könnte man hier sogar stark positive Bindungsenergien erwarten. So fand man für GaN-Volumenmaterial bereits eine Biexziton-Bindungsenergie von 5.7 meV [Zim97]. Dieser scheinbare Widerspruch mit dem Experiment wird wiederum durch das interne elektrische Feld gelöst. In einer feldfreien Umgebung verteilen sich die biexzitonischen Ladungen in einer Weise, die die attraktiven Coulomb-Terme die repulsiven Terme überwiegen lässt. Damit liegt eine positive Bindungsenergie vor. Die Anwesenheit eines starken elektrischen Feldes erzwingt jedoch eine räumliche Trennung der Elektronen und Löcher. Die Konsequenz kann ein Überhang der repulsiven Wechselwirkungen und somit eine negative Bindungsenergie sein. Die Dissoziation eines solchen *antibindenden* Biexzitons [Rod03] kann lediglich durch ein dreidimensionales Einschlusspotential verhindert werden. Dies demonstriert also wiederum die starke Lokalisation der Ladungsträger. Tatsächlich konnte das Vorkommen antibindender Biexzitonen bereits für In(Ga,As)/GaAs-Quantenpunkte experimentell nachgewiesen [Mor01] und theoretisch begründet [Sti01] werden. Als Voraussetzung wurde hier eine intrinsische Elektron-Loch-Trennung identifiziert, welche für verspannte Quantenpunkte nicht untypisch ist.

6.6.3 Die Verschiebung der Einzellinie

Wie in Abschn. 6.6.1 gezeigt wurde, beruht die beträchtliche Verschiebung des Ensemblesignals im dort untersuchten Leistungsintervall ($\leq 2 \text{ kW/cm}^2$) alleine auf der Umverteilung der Linienintensitäten. Eine Verschiebung der Einzellinien selbst konnte also nicht beobachtet werden. In Abb. 6.19 ist nun das Verhalten einer Einzellinie bei weiterer Erhöhung der Anregungsdichte ($> 2 \text{ kW/cm}^2$) dargestellt.

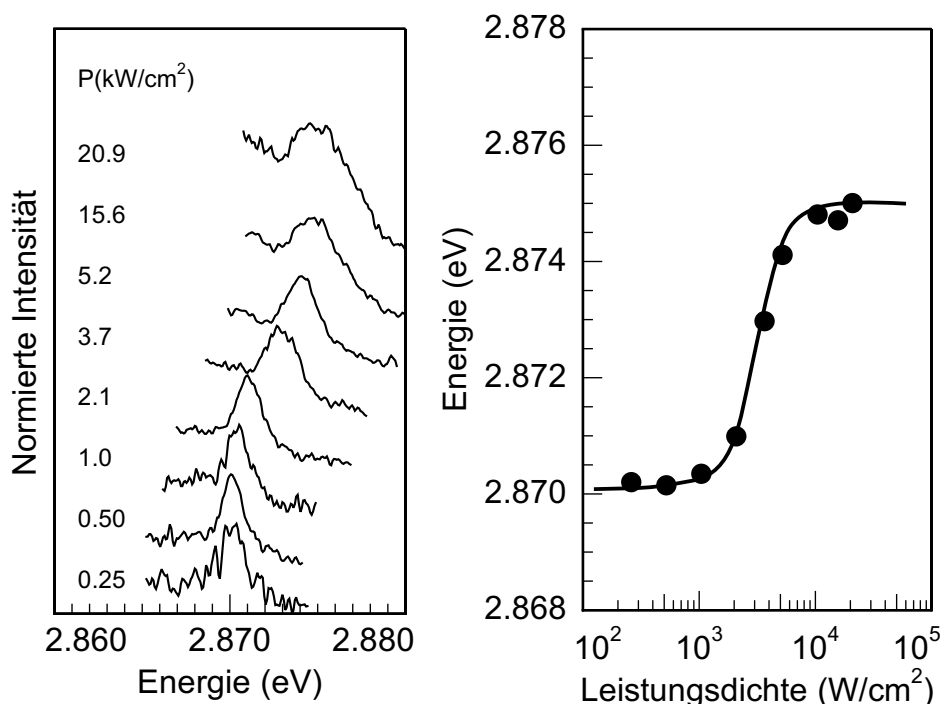


Abbildung 6.19: links: PL-Linie eines Einzelzentrums entnommen aus dem Spektrum einer 250nm-Apertur bei zunehmender Leistungsdichte ($T=4 \text{ K}$). rechts: Energie der Einzellinie als Funktion der Leistungsdichte.

Das Experiment offenbart eine Blauverschiebung der Linie ab einer Anregungsdichte von 2 kW/cm^2 , welche bei ca. 10 kW/cm^2 ein Ende findet. Die Gesamtverschiebung beträgt hierbei etwa 5 meV . Des weiteren fällt auf, dass die Halbwertsbreite der Linie mit der Verschiebung deutlich zunimmt. Das Verhalten der Einzellinie bei Erhöhung der Anregungsleistung zeigt hiermit eine bemerkenswerte Parallelität zum Verhalten, welches bei Zunahme der Temperatur (Abschn. 6.5.2) festgestellt werden konnte. Man kann demnach auch in diesem Fall eine Abschirmung des Piezofeldes als Ursache vermuten. Statt thermisch freigesetzter Ladungen scheinen es nun jedoch die optisch erzeugten Elektron-Loch-Paare zu sein, die in der Umgebung des Lokalisationszentrums durch Traps eingefangen werden und so eine Schwächung des elektrischen Feldes bewirken. Der Abschirmeffekt durch optische Anregung fällt dabei mit 5 meV gegenüber 16 meV geringer aus als der durch Temperaturerhöhung herbeigeführte. Dies könnte auf die verminderte abschirmen-

de Wirkung von Dipolen (Elektron-Loch-Paare) im Vergleich zu Monopolen (thermisch freigesetzte Ladungen) hindeuten.

Anhang A

Probenregister

Quantenpunkte im Magnetfeld (Kapitel 2)

Probentyp	Quantenpunkte
Probennummer	CB2089
Hersteller	T. Slobodskyy G. Schmidt L.W. Molenkamp Würzburg Deutschland
Epitaxie	MBE
Lithographie	Nanoaperturmaske

ZnSe (25nm)
CdSe (1.5ML)
ZnSe (50nm)
ZnSe Puffer
GaAs

Quantenpunkte im elektrischen Feld (Kapitel 2)

Probentyp	Quantenpunkte
Probennummer	CB1943
Hersteller	L. Hansen G. Schmidt L.W. Molenkamp Würzburg Deutschland
Epitaxie	MBE
Lithographie	Nanoaperturmaske mit Elektroden

ZnSe (40nm)
CdSe (3ML)
ZnSe (20nm) i-Be _{0.03} Zn _{0.97} Se (50nm) n-Be _{0.03} Zn _{0.97} Se (250nm) n-ZnSe (20nm) n ⁺ -GaAs Puffer
n ⁺ -GaAs

Semimagnetische Quantenpunkte (Kapitel 4)

Probentyp	Quantenpunkte	Zn _{0.75} Mn _{0.25} Se (50nm)
Probennummer	F960404D	CdSe (2.5ML)
Hersteller	S. Lee M. Dobrowolska J.K. Furdyna Notre-Dame Indiana, USA	Zn _{0.75} Mn _{0.25} Se (140nm)
Epitaxie	MBE	ZnSe Puffer
Lithographie	Nanoaperturmaske	GaAs

Ferromagnet-DMS-Hybride (Kapitel 5)

Probentyp	Ferromagnet-DMS-Hybride	ZnSe (25nm)
Probennummer	ZCMS331	Zn _{0.77} Cd _{0.15} Mn _{0.08} Se (13ML)
Hersteller	J. Puls F. Henneberger Berlin Deutschland	ZnSe (1 μ m)
Epitaxie	MBE	ZnSe Puffer
Lithographie	Dysprosium-Nanostrukturen	GaAs

InGaN/GaN-Quantenfilm (Kapitel 6)

Probentyp	InGaN/GaN-Quantenfilm	GaN (40nm)
Probennummer	HB3280	In _{0.15} Ga _{0.75} N (3nm)
Hersteller	J. Off F. Scholz Stuttgart Deutschland	GaN (300nm)
Epitaxie	MOVPE	AlGaIn Puffer
Lithographie	Nanoaperturmaske	SiC

Literaturverzeichnis

- [Aml99] I. Amlani, A. Orlov, G. Toth, G.H. Bernstein, C.S. Lent, und G.L. Snider, *Science* **284**, 289 (1999)
- [Ash76] N.W. Ashcroft und N.D. Mermin, *Solid State Physics*, Saunders College Publishing, Philadelphia (1976)
- [Aws02] D.D. Awschalom, D. Loss, und N. Samarth, *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, Springer Verlag, Berlin (2002)
- [Bac99] G. Bacher, R. Weigand, J. Seufert, V.D. Kulakovskii, N.A. Gippius, A. Forchel, K. Leonardi, und D. Hommel, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4417 (1999)
- [Bac01] G. Bacher, H. Schömig, M.K. Welsch, S. Zaitsev, V.D. Kulakovskii, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, J.K. Furdyna, B. König, und W. Ossau, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 524 (2001)
- [Bay01] M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer, S. Fafard, M. Korkusinski, Z.R. Wasilewski, O. Stern, und A. Forchel, *Science* **291**, 451 (2001)
- [Bay02] M. Bayer, und A. Forchel, *Phys. Rev. B* **65**, R041308 (2002)
- [Beh58] D.R. Behrendt, S. Legvold, und F.H. Spedding, *Phys. Rev.* **109**, 1544 (1958)
- [Ber98a] G. Bertotti, *Hysteresis in Magnetism*, p. 85, Academic Press, San Diego (1998)
- [Ber98b] F. Bernardini, und V. Fiorentini, *Phys. Rev. B* **57**, R9427 (1998)
- [Ber00] L. Bergman, M. Dutta, M.A. Stroscio, S.M. Komirenko, R.J. Nemanich, C.J. Eiting, D.J.H. Lambert, H.K. Kwon, und R.D. Dupuis, *Phys. Rev. B* **76**, 1969 (2000)
- [Bet44] H.A. Bethe, *Phys. Rev.* **66**, 163 (1944)
- [Bha94] R.N. Bhargava, D. Gallagher, X. Hong, und A. Nurmikko, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 416 (1994)
- [Bha98] A.K. Bhattacharjee, *Phys. Rev. B* **58**, 15660 (1998)

- [Bha03] A.K. Bhattacharjee, und J. Pérez-Conde, Phys. Rev. B **68**, 045303 (2003)
- [Bic84] R.N. Bicknell, R.W. Yanka, N.C. Giles-Taylor, D.K. Blanks, E.L. Buckland, und J.F. Schetzina, Appl. Phys. Lett. **45**, 92 (1984)
- [Bio00] E. Biolatti, R.C. Iotti, P. Zanardi, und F. Rossi, Phys. Rev. Lett. **85**, 5647 (2000)
- [Bir01] D. Birkedal, K. Leosson, und J.M. Hvam Phys. Rev. Lett. **87**, 227401 (2001)
- [Blo00] P.G. Blome, M. Wenderoth, M. Hübner, R.G. Ulbrich, J. Porsche, und F. Scholz, Phys. Rev. B **61**, 8382 (2000)
- [Bon98] H. Bonadeo, J. Erland, D. Gammon, D. Park, D.S. Katzer, und D.G. Steel, Science **282**, 1473 (1998)
- [Bor99] J. Borkar, *Design Challenges of Technology Scaling*, IEEE Micro, Vol. 19, Issue 4 (1999)
- [Bru86] J.A. Brum, B. Bastaed, und M. Voos, Solid State Commun. **59**, 2280 (1986)
- [Bug88] M. Bugajski, P. Becla, P.A. Wolff, D. Heiman, und L.R. Ram-Mohan, Phys. Rev. B **38**, 10512 (1988)
- [Cae02] E.W.S. Caetano, V.N. Freire, und G.A. Farias, J. Cryst. Growth **246**, 341 (2002)
- [Che00] H. Chen, R.M. Feenstra, J.E. Northrup, T. Zywietz, und J. Neugebauer, Phys. Rev. Lett. **85**, 1902 (2000)
- [Chi96] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, und S. Nakamura, J. Appl. Phys. **79**, 2784 (1996)
- [Chi97] S. Chichibu, K. Wada, und S. Nakamura, Appl. Phys. Lett. **71**, 2346 (1996)
- [Chi98] S. Chichibu, T. Sota, K. Wada, und S. Nakamura, J. Vac. Sci. Technol. B **16**, 2204 (1998)
- [Chi99] S. Chichibu, T. Sota, K. Wada, S.P. DenBaars und S. Nakamura, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **4S1**, G2.7 (1999)
- [Chi00] S. Chichibu, A. Shikana, T. Deguchi, A. Setogushi, R. Nakai, H. Nakanishi, K. Wada, S. DenBaars, T. Sota, und S. Nakamura, Jpn. J. Appl. Phys. **39**, 2417 (2000)
- [Chi03] D. Chiba, M. Yamanouchi, F. Matsukura, und H. Ohno, Science **301**, 943 (2003)

- [Cho98] Y.-H. Cho, G.H. Gainer, A.J. Fischer, J.J. Song, S. Keller, U.K. Mishra, und S.P. DenBaars, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 1370 (1998)
- [Cin00] R. Cingolani, A. Botchkarev, H. Tang, H. Morkoç, G. Traetta, G. Coli, M. Lomascolo, A. Di Carlo, F. Della Sala, und P. Lugli, *Phys. Rev. B* **61**, 2711 (2000)
- [Cro96] S.A. Crooker, J.J. Baumberg, F. Flack, N. Samarth, und D.D. Awschalom *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2814 (1996)
- [Cro97] P. A. Crowell, V. Nikitin, D.D. Awschalom, F. Flack, N. Samarth, und G.A. Prinz *J. Appl. Phys.* **81**, 5441 (1997)
- [Cro98] P. A. Crowell, D.K. Young, S. Keller, E.L. Hu, und D.D. Awschalom *Appl. Phys. Lett.* **72**, 927 (1998)
- [Dai91] N. Dai, H. Luo, F.C. Zhang, N. Samarth, M. Dobrowolska, und J.K. Furdyna *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3824 (1991)
- [Dav94] J. H. Davies und I. A. Larkin, *Phys. Rev. B* **49**, 4800 (1994)
- [Dav02] V. Yu. Davydov, A.A. Klochikhin, R.P. Seisyan, V.V. Emtsev, S. V. Ivanov, F. Bechstedt, J. Furthmüller, H. Harima, A.V. Mudryi, J. Aderhold, O. Semchinova, und J. Graul, *phys. stat. sol. (b)* **229**, R1 (2002)
- [Die95] T. Dietl, P. Peyla, W. Grieshaber, und Y. Merle d'Aubigné, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 474 (1995)
- [Din74] R. Dingle, W. Wiegmann, und C.H. Henry, *Phys. Rev. Lett.* **33**, 827 (1974)
- [Don99] K.P. O'Donnell, R.W. Martin, P.G. Middleton, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 237 (1999)
- [Dor03] P.S. Dorozhkin, A.V. Chernenko, V.D. Kulakovskii, A.S. Brichkin, A.A. Maksimov, H. Schömig, G. Bacher, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, und J.K. Furdyna, *Phys. Rev. B* **68**, 195313 (2003)
- [Eli97] P.G. Eliseev, P. Perlin, J. Lee, und M. Osinski *Appl. Phys. Lett.* **71**, 569 (1997)
- [Efr01] Al.L. Efros, E.I. Rashba, und M. Rosen, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 206601 (2001)
- [Emp96] S.A. Empedocles, D.J. Norris, und M.G. Bawendi, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3873 (1996)
- [Erc97] A. Ercole, A. O. Adeyeye, C. Daboo, J. A. C. Bland, und D. G. Hasko, *J. Appl. Phys.* **81**, 5453 (1997)

- [Fat94] J.M. Fatah, T. Piorek, P. Harrison, T. Stirner, und W.E. Hagston, Phys. Rev. B **49**, 10341 (1994)
- [Fey60] R. Feynmann, *There is Plenty of Room at the Bottom*, California Institute of Technology, Engineering and Science, S. 20 (1960) oder im Internet unter <http://www.zyvex.com/nanotech/feynman.html>
- [Fie99] R. Fiederling, M. Keim, G. Reuscher, W. Ossau, G. Schmidt, A. Waag, und L.W. Molenkamp, Nature **402**, 787 (1999)
- [Fio99] V. Fiorentini, F. Bernardini, F. Della Sala, A. Di Carlo, und P. Lugli, Phys. Rev. B **60**, 8849 (1999)
- [Fli01] T. Flissikowski, A. Hundt, M. Lowisch, M. Rabe, und F. Henneberger, Phys. Rev. Lett. **86**, 3172 (2001)
- [Fur88] J.K. Furdyna, J. Appl. Phys. **88**, R29 (1988)
- [Gam96a] D. Gammon, E.S. Snow, B.V. Shanabrook, D.S. Katzer, und D. Park, Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996)
- [Gam96b] D. Gammon, E.S. Snow, B.V. Shanabrook, D.S. Katzer, und D. Park, Science **273**, 87 (1996)
- [Gaj78] J.A. Gaj, J. Ginter, und R.R. Galazka, phys. stat. sol. (b) **89**, 655 (1978)
- [Gaj79] J.A. Gaj, R. Planel, und G. Fishman, Solid State Commun. **29**, 435 (1979)
- [Gaj94] J.A. Gaj, W. Grieshaber, C. Bodin-Deshayes, J. Cibert, G. Feuillet, Y. Merle d'Aubigné, und A. Wasiela, Phys. Rev. B **50**, 5512 (1994)
- [Ger01] D. Gerthsen, B. Neubauer, A. Rosenauer, T. Stephan, H. Kalt, O. Schön, und M. Heuken, Appl. Phys. Lett. **79**, 2552 (2001)
- [Ger03] D. Gerthsen, E. Hahn, B. Neubauer, V. Potin, A. Rosenauer, und M. Schowalter, phys. stat. sol. (c) **0**, 1668 (2003)
- [Gil98] Bernard Gil (Ed.), *Group III Nitride Semiconductor Compounds, Physics and Applications*, Clarendon Press, Oxford (1998)
- [Gru95] M. Grundmann, J. Christen, N.N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V.M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, und Zh. I. Alferov, Phys. Rev. Lett. **74**, 4043 (1995)
- [Gru02] M. Grundmann (Ed.), *Nano-Optoelectronics: Concepts, Physics und Devices*, Z.I. Alferov, *The History of Heterostructure Lasers*, Springer Verlag Berlin (2002)

- [Guh98] S. Guha, Q. Cai, M. Chandrasekhar, H.R. Chandrasekhar, H. Kim, A.D. Alvarenga, R. Vogelgesang, A.K. Ramdas, und M.R. Melloch Phys. Rev. B **58**, 7222 (1998)
- [Gui95] C. Benoit á la Guillaume, Yu.G. Semenov, und M. Combescot, Phys. Rev. B **51**, 14124 (1995)
- [Gro97] L.K. Grover, Phys. Rev. Lett. **79**, 325 (1997)
- [Gup99] J.A. Gupta, X. Peng, A.P. Alivisatos, und D.D. Awschalom, Phys. Rev. B **59**, R10421 (1999)
- [Hau89] H. Haug und S.W. Koch, Phys. Rev. A **39**, 1887 (1989)
- [Hau97] A. Haury, A. Wasiela, A. Arnoult, J. Cibert, S. Tatarenko, T. Dietl, und Y. Merle d'Aubigné, Phys. Rev. Lett. **79**, 511 (1997)
- [Hes94] H.F. Hess, E. Betzig, T.D. Harris, L.N. Pfeiffer, und K.W. West, Science **264**, 1740 (1994)
- [Ho96] I-Hsiu Ho, und G.B. Stringfellow, Appl. Phys. Lett. **69**, 2701 (1996)
- [Hof00] D.M. Hoffman, B.K. Meyer, A.I. Ekimov, I.A. Merkulov, Al.L. Efros, M. Rosen, G. Couino, T. Gacoin, und J.P. Boilot, Solid State Commun. **114**, 547 (2000)
- [Hua50] K. Huang, und A. Rhys, Proc. R. Soc. Edinb. A **204**, 406 (1950)
- [Jac97] L. Jacak, P. Hawrylak, und A. Wójs, *Quantum Dots*, Springer Verlag, Berlin (1997)
- [Jah03] U. Jahn, S. Dhar, O. Brandt, H.T. Grahn, K.H. Ploog, und I.M. Watson, J. Appl. Phys. **93**, 1048 (2003)
- [Jia00] S.C. Jain, M. Willander, J. Narayan, und R. Van Overstraeten, J. Appl. Phys. **87**, 965 (2000)
- [Jia03] W.B. Jian, J. Fang, T. Ji, J. He, Appl. Phys. Lett. **83**, 3377 (2003)
- [Joa95] J.D. Joannopoulos, R.D. Meade, und J.N. Winn, *Photonic Crystals: Molding the Flow of Light*, Princeton University Press (1995)
- [Kal02] S. Kalliakos, X.B. Zhang, T. Taliercio, P. Lefebvre, B. Gil, N. Grandjean, B. Damilano, J. Massies, Appl. Phys. Lett. **80**, 428 (2002)
- [Kan02] A. Kaneta, K. Okamoto, Y. Kawakami, S. Fujita, G. Marutsuki, Y. Narukawa, und T. Mukai, Appl. Phys. Lett. **81**, 4353 (2002)

- [Kav93] A.V. Kavokin, und K.V. Kavokin, *Semicond. Sci. Technol.* **8**, 191 (1993)
- [Kav99] K.V. Kavokin, I.A. Merkulov, D.R. Yakovlev, W. Ossau, und G. Landwehr, *Phys. Rev. B* **60**, 16499 (1999)
- [Kel01] D. Keller, D.R. Yakovlev, B. König, W. Ossau, Th. Gruber, A. Waag L.W. Molenkamp, und A.V. Scherbakov, *Phys. Rev. B* **65**, 035313 (2001)
- [Kik98] J.M. Kikkawa und D.D. Awschalom, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4313 (1998)
- [Kim00] C.S. Kim, M. Kim, S. Lee, J. Kossut, J.K. Furdyna, und M. Dobrowolska, *J. Cryst. Growth* **214**, 395 (2000)
- [Kim02] J. Kim, K. Samiee, J.O. White, J.-M. Myong, K. Kim *Appl. Phys. Lett.* **80**, 989 (2002)
- [Kla98] P.J. Klar, D. Wolverson, J.J. Davies, W. Heimbrodt, und M. Happ, *Phys. Rev. B* **57**, 7103 (1998)
- [Kli00] V.I. Klimov, A.A. Mikhailovsky, D.W. McBranch, C.A. Leatherdale, und M.G. Bawendi, *Science* **287**, 1011 (2000)
- [Kol84] L.A. Kolodziejski, R.L. Gunshor, R. Venkatasubramanian, T.C. Bomsett, R. Frohne, S. Datta, N. Otsuka, R.B. Bylsma, W.M. Becker, und A.V. Nurmikko, *J. Vac. Sci. Technol. B* **4**, 583 (1984)
- [Koe00] B. König, I.A. Merkulov, D.R. Yakovlev, W. Ossau, S.M. Ryabchenko, M. Kutrowski, T. Wojtowicz, G. Karczewski, und J. Kossut, *Phys. Rev. B* **61**, 16870 (2000)
- [Kos01a] J. Kossut, *Acta Phys. Pol. A* **100**, 111 (2001)
- [Kos01b] J. Kossut, I. Yamakawa, A. Nakamura, G. Cywiński, K. Fronc, M. Czczott, J. Wróbel, F. Kyrychenko, T. Wojtowicz, und S. Takeyama, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1789 (2001)
- [Kra01] P.R. Kratzert, J. Puls, M. Rabe, und F. Henneberger, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2814 (2001)
- [Kre85] H. Krenn, W. Zawadski, und G. Bauer, *Phys. Rev. B* **55**, 1550 (1985)
- [Kre89] H. Krenn, K. Kaltenecker, T. Dietl, J. Spalek, und G. Bauer, *Phys. Rev. B* **39**, 10918 (1989)
- [Kre02] I.L. Krestnikov, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, A.V. Sakharov, W.V. Lundin, A.F. Tsatsulnikov, A.S. Usikov, Z.I. Alferov, Y.G. Musikhin, und D. Gerthsen, *Phys. Rev. B* **66**, 155310 (2002)

- [Kud02] A. Kudelski, K. Fronc, J. Wróbel, S. Maćkowski, G. Cywinski, M. Aleszkiewicz, F. Kyrychenko, T. Wojtowicz, J. Kossut, und J. Gaj, *Solid State Commun.* **120**, 35 (2001)
- [Kum98] T. Kümmell, G. Bacher, M.K. Welsch, D. Eisert, A. Forchel, B. König, C.R. Becker, W. Ossau, und G. Landwehr, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3105 (1998)
- [Kuo02] E. Kuokstis, J.W. Yang, G. Simin, M. Asif Khan, R. Gaska, und M.S. Shur, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 977 (2002)
- [Kuh94] B. Kuhn-Heinrich, W. Ossau, E. Bangert, A. Waag, und G. Landwehr, *Solid State Commun.* **91**, 413 (1994)
- [Kul99a] V.D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kümmell, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi, und D. Hommel, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1780 (1999)
- [Kul99b] V.D. Kulakovskii, M.G. Tyazhlov, A.I. Filin, D.R. Yakovlev, A. Waag, und G. Landwehr, *Phys. Rev. B* **54**, R8333 (1999)
- [Kur98] A. Kuramata, K. Horino, und K. Domen, *FUJITSU Sci. Tech. J.* **34**, 191 (1998)
- [Kut98] A. Kuther, M. Bayer, A. Forchel, A. Gorbunov, V.B. Timofeev, F. Schäfer, und J.P. Reithmaier, *Phys. Rev. B* **58**, R7508 (1998)
- [Lan83] L. Landau, und E.M. Lifshitz, *Statistical Physics*, in *Theoretical Physics Vol. 25*, Pergamon Press, New York (1983)
- [Lan82a] Landolt-Börnstein *Physics of Group IV Elements and III-V-Compounds*, Group **III**, Vol. **17**, Subvol. **a**, Springer Verlag, Berlin (1982)
- [Lan82b] Landolt-Börnstein *Physics of II-VI and I-VII-Compounds, Semimagnetic Semiconductors*, New Series Group **III**, Vol. **17**, Springer Verlag, Berlin (1982)
- [Lan87a] Landolt-Börnstein *Intrinsic Properties of Group IV Elements and III-V and II-VI-Compounds*, Group **III**, Vol. **22**, Subvol. **a**, Springer Verlag, Berlin (1987)
- [Lan87b] Landolt-Börnstein *Physics of II-VI and I-VII-Compounds*, Group **III**, Vol. **25**, Subvol. **b**, Springer Verlag, Berlin (1987)
- [Lan96] S. Lankes, T. Reisiger, B. Hahn, C. Meier, M. Meier, W. Gebhardt, *J. Cryst. Growth* **159**, 481 (1996)
- [Law71] P. Lawaetz, *Phys. Rev. B* **4**, 3460 (1971)

- [Lef01] P. Lefebvre, A. Morel, M. Gallart, T. Taliercio, J. Allègre, B. Gil, H. Mathieu, B. Damilano, N. Grandjean, und J. Massies, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1252 (2001)
- [Leo93] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C.M. Reaves, S.P. Denbaars, und P.M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 3203 (1993)
- [Les95] S.D. Lester, F.A. Ponce, M.G. Craford, und D.A. Steigerwald, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1249 (1995)
- [Li02] Q. Li, S.J. Xu, M.H. Xie, S.Y. Tong, X.H. Zhang, W. Liu, und S.J. Chua, *Jpn. J. Appl. Phys.* **41**, L1093 (2002)
- [Li03] X. Li, Y. Wu, D. Steel, D. Gammon, T.H. Stievater, D.S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, und L.J. Sham, *Science* **301**, 809 (2003)
- [Lit00] D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen, und N.N. Ledentsov, *Phys. Rev. B* **61**, 16819 (2000)
- [Loo97a] D.C. Look, D.C. Reynolds, J.W. Hemsley, J.R. Sizelove, R.L. Jones, und R.J. Molnar, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2273 (1997)
- [Loo97b] D.C. Look, J.R. Sizelove, S. Keller, Y.F. Wu, U.K. Mishra, und S.P. Denbaars, *Solid State Commun.* **102**, 297 (1997)
- [Los98] D. Loss, und D.P. DiVincenzo, *Phys. Rev. A* **57**, 120 (1998)
- [Low99] M. Lowisch, M. Rabe, F. Kreller, und F. Henneberger, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2489 (1999)
- [Mac93] G. Mackh, W. Ossau, D.R. Yakovlev, A. Waag, T. Litz und G. Landwehr, *Solid State Commun.* **88**, 221 (1993)
- [Mac96] G. Mackh, W. Ossau, A. Waag, und G. Landwehr, *Phys. Rev. B* **54**, R5227 (1996)
- [Mac03] S. Mackowski, H.E. Jackson, L.M. Smith, J. Kossut, G. Karczewski, und W. Heiss, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3575 (2003)
- [Mak00] A.A. Maksimov, G. Bacher, A. McDonald, V.D. Kulakovskii, A. Forchel, C.R. Becker, G. Landwehr, und L.W. Molenkamp, *Phys. Rev. B* **62**, R7767 (2000)
- [Mar90] R.W. Martin, R.J. Nicholas, G.J. Rees, S.K. Haywood, N.J. Mason, P.J. Walker, *Phys. Rev. B* **42**, 9237 (1990)
- [Mar94] J.-Y. Marzin, J.-M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, und G. Bastard, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 716 (1994)

- [Mei01] J.D. Meindl, Q. Chen, und J.A. Davis, *Science* **293**, 2044 (2001)
- [Mer95] I.A. Merkulov, D.R. Yakovlev, K.V. Kavokin, G. Mackh, W. Ossau, A. Waag, und G. Landwehr, *JETP* **62**, 335 (1995)
- [Mer96] I.A. Merkulov, G.R. Pozina, D. Coquillat, N. Paganotto, J. Siviniant, J.P. Lascaray, und J. Cibert, *Phys. Rev. B* **54**, 5727 (1996)
- [Mer99] I.A. Merkulov, D.R. Yakovlev, A. Keller, W. Ossau, J. Geurts, A. Waag, G. Landwehr, G. Karczewski, T. Wojtowicz, und J. Kossut, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1431 (1999)
- [Mic00] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W.V. Schoenfeld, P.M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, und A. Imamoglu, *Science* **290**, 2282 (2000)
- [Mil84] D.A. Miller, D.S. Chemla, T.C. Damen, A.C. Gossard, W. Wiegmann, T.H. Wood, und C.A. Burns, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 2173 (1984)
- [Mir99] F. Mireless, und S.E. Ulloa, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 248 (1999)
- [Mor01] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J.M. Gérard, und I. Abram, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 183601 (2001)
- [Mor00] O. Moriwaki, T. Someya, K. Tachibana, und S. Ishida, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2361 (2000)
- [Mus02] Yu. G. Musikhin, D. Gerthsen, D.A. Bedarev, N.A. Bert, W.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, A.V. Sakharov, A.S. Usikov, Zh.I. Alferov, I.L. Krestnikov, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, und D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 2099 (2002)
- [Nak93] S. Nakamura, T. Mukai, und M. Senoh, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, L8 (1993)
- [Nak96] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Matsuhita, H. Kioku, und Y. Sugimoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, L74 (1996)
- [Nas97] H. Nashiki, I. Suemune, H. Kumano, H. Suzuki, T. Obinata, K. Vesugi, und J. Nakahara, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2350 (1997)
- [Naw95] M. Nawrocki, Yu.G. Rubo, J.P. Lascaray, und D. Coquillat *Phys. Rev. B* **52**, R2241 (1995)
- [Nie00] M.A. Nielsen, und I.L. Chuang, *Quantum Computation and Quantum Information*, Cambridge University Press (2000)
- [Nor01] D.J. Norris, N. Nao, F.T. Charnock, und T.A. Kennedy, *Nano Lett.* **1**, 3 (2001)

- [Oes99] M. Oestreich, J. Hübner, D. Hägele, P.J. Klar, W. Heimbrodt, W.W. Rühle, D.E. Ashenford, und B. Lunn, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1251 (1999)
- [Ohn92] H. Ohno, H. Munekata, T. Penney, S. von Molnár, und L.L. Chang, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2664 (1992)
- [Ohn99] Y. Ohno, D.K. Young, B. Beschoten, F. Matsukura, H. Ohno, und D.D. Awschalom, *Nature* **402**, 790 (1999)
- [Oka98] Y. Oka, *Phys. Stat. Sol.* **40**, 778 (1998)
- [Oka99] Y. Oka, J. Shen, K. Takabayashi, N. Takahashi, H. Mitsu, I. Souma, und J.K. Furdyna, *J. Lumin.* **83**, 83 (1999)
- [Oma03] K. Omae, Y. Kawakami, S. Fujita, Y. Narukawa, und T. Mukai, *Phys. Rev. B* **68**, 085303 (2003)
- [Ort82] M. von Ortenberg, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1041 (1982)
- [Oss96] W. Ossau, B. Kuhn-Heinrich, A. Waag, und G. Landwehr, *J. Cryst. Growth* **159**, 1046 (1996)
- [Pai01] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli und J.M. Gérard, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1634 (2001)
- [Pas02a] T. Passow, K. Leonardi, H. Heinke, D. Hommel, D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen, J. Seufert, G. Bacher, und A. Forchel, *J. Appl. Phys.* **92**, 6546 (2002)
- [Pas02b] P.P. Paskov, P.O. Holtz, B. Monemar, S. Kamiyama, M. Iwaya, H. Amano, und I. Akasaki, *phys. stat. sol. (b)* **234**, 755 (2002)
- [Pee00] F.M. Peeters und J. De Boeck, *Hybrid Magnetic-Semiconductor Nanostructures*, Handbook of Nanostructured Materials and Nanotechnology, Vol. 3, Academic Press London (2000)
- [Pel92] N.T. Pelekanos, J. Ding, M. Hagerott, A.V. Nurmikko, H. Luo, N. Samarth, und J.K. Furdyna, *Phys. Rev. B* **45**, 6037 (1992)
- [Per00] N. Periano, A. Rosenauer, D. Gerthsen, S.V. Sorokin, I.V. Sedova, und S.V. Ivanov, *Phys. Rev. B* **61**, 16015 (2000)
- [Per98] P. Perlin, C. Kisielowski, V. Iota, B.A. Weinstein, L. Mattos, N.A. Shapiro, J. Kruger, E.R. Weber, und J. Yang, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2778 (1998)
- [Pet82] P.M. Petroff, A.C. Gossard, R.A. Logan, und W. Wiegmann, *Phys. Rev. Lett.* **41**, 635 (1982)

- [Pey93] P. Peyla, A. Wasiela, Y. Merle d'Aubigné, D.E Ashenford und B. Lunn, Phys. Rev. B **47**, 3783 (1993)
- [Pop98] M. Pophristic, F.H. Long, C. Tran, R.F. Karlicek, Jr., Z.C. Feng, und I.T. Ferguson, Appl. Phys. Lett. **73**, 815 (1998)
- [Pot04] V. Potin, E. Hahn, A. Rosenauer, D. Gerthsen, B. Kuhn, F. Scholz, A. Dus-saigne, B. Damilano, und N. Grandjean J. Cryst. Growth **262**, 145 (2004)
- [Pri90] G.A. Prinz, Science **250**, 1092 (1990)
- [Pul00] F. Pulizzi, P.C.M. Christianen, J.C. Maan, T. Wojtowicz, G. Karczewski, und J. Kossut, phys. stat. sol. (a) **178**, 33 (2000)
- [Pul96] J. Puls, V.V. Rossin, F. Henneberger, und R. Zimmermann, Phys. Rev. B **54**, 4974 (1996)
- [Ree86] M.A. Reed, R.T. Bate, K. Bradshaw, W.M. Duncan, W.M. Frensley, J.W. Lee, und H.D. Smith, J. Vac. Sci. Technol. B **4**, 358 (1986)
- [Rei98] J. Reijniers und F.M. Peeters, Appl. Phys. Lett. **73**, 357 (1998)
- [Rey81] D.C. Reynolds und T.C. Collins, *Excitons*, Academic New York (1981)
- [Rod03] S. Rodt, R. Heitz, A. Schliwa, R.L. Sellin, F. Guffarth, und D. Bimberg, Phys. Rev. B **68**, 035331 (2003)
- [Rud90] S. Rudin, T.L. Reinecke, und B. Segall, Phys. Rev. B **42**, 11218 (1990)
- [Sai90] M. Said, und M.A. Kanehisa, phys. stat. sol. (b) **157**, 311 (1990)
- [Sal99] F. Della Sala, A. Di Carlo, P. Lugli, F. Bernardini, V. Fiorentini, R. Scholz, Appl. Phys. Lett. **74**, 2002 (1999)
- [San99] S. Sanguinetti, M. Henini, M. Grassi Alessi, M. Capizzi, P. Frigeri, und S. Franchi, Phys. Rev. B **60**, 8276 (1999)
- [Sca96] D. Scalbert, phys. stat. sol. (b) **193**, 189 (1996)
- [Sch03] M. Scheibner, G. Bacher, S. Weber, A. Forchel, T. Passow, und D. Hommel, Phys. Rev. B **67**, 153302 (2003)
- [Sem81] Yu.G. Semenov, JETP **54**, 794 (1981)
- [Seu00a] J. Seufert, R. Weigand, G. Bacher, T. Kümmell, A. Forchel, K. Leonardi, und D. Hommel, Appl. Phys. Lett. **76**, 1872 (2000)
- [Seu00b] J. Seufert, M. Rambach, G. Bacher, A. Forchel, M. Keim, S. Ivanov, A. Waag und G. Landwehr, Phys. Rev. B **62**, 12609 (2000)

- [Seu01] J. Seufert, M. Obert, M. Scheibner, N.A. Gippius, G. Bacher, A. Forchel, K. Leonardi, und D. Hommel, Appl. Phys. Lett. **79**, 1033 (2001)
- [Seu02a] J. Seufert, G. Bacher, M. Scheibner, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, und J.K. Furdyna, Phys. Rev. Lett. **88**, 027402 (2002)
- [Seu02b] J. Seufert, Dissertation, Universität Würzburg (2002)
- [Seu03] J. Seufert, M. Rambach, G. Bacher, A. Forchel, T. Passow und D. Hommel, Appl. Phys. Lett. **82**, 3946 (2003)
- [Seu04] J. Seufert, H. Schömig, G. Bacher, A. Forchel, L. Hansen, G. Schmidt, und L.W. Molenkamp, Phys. Rev. B **69**, 035311 (2004)
- [Sha76] J. Shah, R.F. Leheny, und C. Lin, Solid State Commun. **18**, 1035 (1976)
- [Shi04] K. Shimomura, R. Kadono, K. Ohishi, M. Mizuta, M. Saito, K.H. Chow, B. Hitti, und R.L. Lichti, e-print archive arXiv: cond-mat/0402155v1 (2004)
- [Sir97] A.A. Sirenko, T. Ruf, M. Cardona, D.R. Yakovlev, W. Ossau, A. Waag, und G. Landwehr, Phys. Rev. B **56**, 2114 (1997)
- [Soh04] C.B. Soh, S.J. Chua, H.F. Lim, D.Z. Chi, S. Tripathy, und W. Liu J. Appl. Phys. **96**, 1341 (2004)
- [Sti01] O. Stier, A. Schliwa, R. Heitz, M. Grundmann, und D. Bimberg phys. stat. sol. (b) **224**, 115 (2001)
- [Str38] I.N. Stranski, und L. Krastanov, *Sitzungsbericht der Akademie der Wissenschaften Wien, Mathematisch-Naturwissenschaftliche Klasse, Abt. IIb*, **146**, 797, (1938)
- [Str92] T. Strutz, A.M. Witowski, und P. Wyder, Phys. Rev. Lett. **68**, 3912 (1992)
- [Sug98] T. Sugahara, M. Hao, T. Wang, D. Nakagawa, Y. Naoi, K. Nishino, und S. Sakai, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, L1198 (1998)
- [Sze81] S.M. Sze, *Physics of Semiconductor Devices*, John Wiley and Sons, 2nd Edition (1981)
- [Tak97] T. Takeuchi, S. Sota, M. Katsuragawa, M. Komori, H. Takeuchi, H. Amano, und I. Akasaki, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, L382 (1997)
- [Tin95] M. Tinkham, J.M. Hergenrother, und J.G. Lu, Phys. Rev. B **51**, 12649 (1995)
- [Twa84] A. Twardowski, M. von Ortenberg, M. Demianiuk, und R. Pauthenet, Solid State Commun. **51**, 849 (1984)

- [Var67] Y.P. Varshni, *Physica* **34**, 149 (1967)
- [Ver99] A. Vertikov, I. Ozden, und A.V. Nurmikko, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 850 (1999)
- [Vur01] I. Vurgaftman, J.R. Meyer, und L.R. Ram-Mohan, *J. Appl. Phys.* **89**, 5815 (2001)
- [Wal98] S.N. Walck, und T.L. Reinecke, *Phys. Rev. B* **57**, 9088 (1998)
- [Wan03] L. Wang, M. Califano, A. Zunger, und A. Franceschetti, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 056404 (2003)
- [Web88] C. Weber, C. Klingshirn, D.S. Chemla, D.A.B. Miller, J.E. Cunningham, und C. Ell, *Phys. Rev. B* **38**, 12748 (1988)
- [Wel03] M.K. Welsch, Dissertation, Universität Würzburg (2003)
- [Win97] O. Wind, Dissertation, Universität Karlsruhe (1997)
- [Woj00] T. Wojtowicz, M. Kutrowski, G. Karczewski, J. Kossut, B. König, A. Keller, D.R. Yakovlev, A. Waag, J. Geurts, W. Ossau, G. Landwehr, I.A. Merkulov, F.J. Teran, und M. Potemski, *J. Cryst. Growth* **214/215**, 378 (2000)
- [Wol87] P.A. Wolff, D. Heiman, E.D. Isaacs, P. Becla, S. Foner, L.R. Ram-Mohan, D.H. Ridgley, K. Dwight, und A. Wold, in *Proceedings of the International Conference on the Application of High Magnetic Fields in Semiconductor Physics, Würzburg, 1986*, p. 421, Springer Verlag, Heidelberg (1987)
- [Wol88] P.A. Wolff, *Theory of Bound Magnetic Polarons in Semimagnetic Semiconductors*, Semiconductors and Semimetals, Vol. 25, Academic Press London (1988)
- [Wol01] S.A. Wolf, D.D. Awschalom, R.A. Buhrman, J.M. Daughon, S. von Molnar, M.L. Roukes, A.Y. Chtchelkanova, und D.M. Treger, *Science* **294**, 1488 (2001)
- [Xin96] S.H. Xin, P.D. Wang, A. Yin, C. Kim, M. Dobrowolska, J.L. Merz, und J.K. Furdyna, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3884 (1996)
- [Xu02] S.J. Xu, L.X. Zheng, S.H. Cheung, M.H. Xie, S.Y. Tong, und H. Yang, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4389 (2002)
- [Yak96] D.R. Yakovlev und K.V. Kavokin, *Comments Cond. Mat. Phys.* **18**, 51 (1996)
- [Yan00] H. Yang, P. Kuo, T. Lin, und Y. Chen, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3712 (2000)
- [Ye95] P.D. Ye, D. Weiss, R.R. Gerhardts, M. Seeger, K. von Klitzing, K. Eberl, und H. Nickel, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3013 (1995)

- [Yof93] A.D. Yoffe, *Adv. Phys.* **42**, 173 (1993)
- [Yu98] H. Yu, H. Htoon, A. deLozanne, C.K. Shih, P.A. Grudowski, R.D. Dupuis, K. Zeng, R. Mair, J.Y. Lin, und H.X. Jiang, *J. Vac. Sci. Technol. B* **16**, 2215 (1998)
- [Zim97] R. Zimmermann, A. Euteneuer, J. Möbius, D. Weber, M.R. Hofmann, W.W. Rühle, E.O. Göbel, B.K. Meyer, H. Amano, und I. Akasaki, *Phys. Rev. B* **56**, R12722 (1997)
- [Zha98] X. Zhang, D.H. Rich, J.T. Kobayashi, N.P. Kobayashi, und P.D. Dapkus, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 1430 (1998)
- [Zha03] H. Zhao, B. Dal Don, S. Moehl, und H. Kalt, *Phys. Rev. B* **67**, 035306 (2003)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all jenen Menschen bedanken, die auf ganz verschiedene Art und Weise zum Gelingen dieser Arbeit entscheidend beigetragen haben.

- Prof. Dr. G. Bacher für die ausgezeichnete Betreuung, einschließlich der zahlreichen Diskussionen, die mir stets den richtigen Weg wiesen.
- Prof. Dr. A. Forchel für die freundliche Aufnahme am Lehrstuhl für Technische Physik und die Bereitstellung der hervorragenden Infrastruktur.
- Prof. Dr. W. Ossau für die freundliche Übernahme des Mitberichts zu dieser Arbeit.
- S. Halm, der mir während seiner Diplomarbeit in Belangen des Experimentierens und Diskutierens eine wertvolle Unterstützung war. Vielen Dank für die wunderbare Zusammenarbeit.
- all meinen Weggefährten aus der II-VI-Gruppe: M.K. Welsch, dessen wertvoller Rat nicht nur in Fragen der Physik stets wichtig für mich war, J. Seufert, der mir mit seiner menschlichen wie fachlichen Kompetenz häufig zur Seite stand, M. Obert für die gute Zusammenarbeit schon seit den ersten Semestern, M. Scheibner und J. Renner für die Mitarbeit und die tolle Arbeitsatmosphäre.
- unseren russischen Kollegen: Prof. Dr. V. Kulakovskii für die hilfreichen Diskussionen, sowie Dr. A. Maksimov, Dr. S. Zaitsev, Dr. A.V. Chernenko und Dr. P.S. Dorozhkin für die experimentelle Mitarbeit im Spektroskopie-Labor.
- den technischen Assistenten der Technischen Physik, im besonderen aber M. Emmerling, die mit ihrem Können bei den ungezählten Probenstrukturierungen den Grundstein für sämtliche Messungen gelegt hat. S. Reuß gilt mein Dank für die Präparation der Hybridproben genauso wie G. Heller für die zuverlässige Unterstützung bei technischen Problemen jeglicher Art.
- den Technikern am Physikalischen Institut, sei es in der Heliumstation, der mechanischen oder elektronischen Werkstatt.
- Prof. Dr. S. Lee, Dr. M. Dobrowolska und Prof. Dr. J.K. Furdyna für das Wachstum der semimagnetischen Quantenpunkt-Proben.

- Dr. J. Off und Prof. Dr. F. Scholz für die Epitaxie der Nitrid-Proben.
- Dr. J. Puls und Prof. Dr. F. Henneberger für die Epitaxie der semimagnetischen Quantenfilmstrukturen für die Ferromagnet-DMS-Hybrid-Proben.
- Dr. T. Slobodskyy, Dr. L. Hansen, Dr. G. Schmidt, und Prof. Dr. L.W. Molenkamp für das Wachstum verschiedener Quantenpunktstrukturen auf CdSe/ZnSe-Basis.
- Dr. W. Kipferl und Prof. Dr. C.H. Back für die SQUID-Messungen an den Hybridstrukturen.
- und schließlich meinen Eltern, die mir stets zur Seite standen und wesentlichen Anteil am Gelingen dieser Arbeit haben.

Ehrenwörtliche Erklärung

gemäß §6 Abs. 1 Ziff. 3 und 7
der Promotionsordnung der
Fakultät für Physik und Astronomie
der Universität Würzburg

Hiermit erkläre ich ehrenwörtlich, daß ich die Dissertation selbständig und ohne Hilfe eines Promotionsberaters angefertigt habe und keine weiteren als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Die Dissertation wurde bisher weder vollständig noch teilweise einer anderen Hochschule mit dem Ziel, einen akademischen Grad zu erwerben, vorgelegt.

Am 2. Mai 2001 wurde mir von der Universität Würzburg der akademische Grad 'Diplom-Physiker (Univ.)' verliehen. Weitere akademische Grade habe ich weder erworben noch versucht zu erwerben.

Würzburg, den

Herbert Richard Schömig