

Molekularstrahlepitaxie von niederdimensionalen GaInAs(N) Systemen für AlGaAs Mikroresonatoren

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

vorgelegt von

Micha Johannes Strauß
aus Bad Kissingen

Würzburg, 2015

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Zielsetzung der Arbeit	3
1.2	Gliederung der Arbeit	4
2	Grundlagen und experimentelle Methoden	5
2.1	Molekularstrahlepitaxie	5
2.2	Röntgenbeugungsanalyse	8
2.3	Photolumineszenzspektroskopie	9
2.4	Mikroskopie	9
3	Mikroresonatoren	11
3.1	Grundlagen	11
3.2	Planare Strukturen	13
3.3	Messungen an Mikroresonatoren	15
3.3.1	Prozessierung von Mikroresonatoren	15
3.3.2	Spektrale Abstimmbarkeit	16
3.3.3	Güte von Mikroresonatoren	18
3.3.4	Mikroresonatortürmchen als Bauteil	24
4	GaInAs Quantenpunkte	27
4.1	Eigenschaften	27
4.2	Methoden der Molekularstrahlepitaxie von InAs Quantenpunkten	28
4.3	Chemisches Oberflächenpotential	32
4.4	Niedrige Dichten für Experimente an einzelnen Quantenpunkten . . .	33
4.5	Spektroskopie an einzelnen (Ga)InAs Quantenpunkten	35
5	Positionierung von GaInAs-Quantenpunkten	41

5.1	Zielsetzung und Design	41
5.2	Lithographische Strukturierung	43
5.3	Epitaxie lithographisch prozessierter Proben	46
5.3.1	Epitaktische Methoden	47
5.3.2	Ergebnisse	48
5.4	Positionierte GaInAs Quantenpunkte	51
5.5	Positionierungsgenauigkeit	57
5.6	Optische Eigenschaften von positionierten Quantenpunkten	60
5.7	Positionierte GaInAs-Quantenpunkte für die Bauteilintegration	62
6	GaInAsN-Quantenpunktsystem für Telekommunikationswellenlängen	67
6.1	Einbettung von Stickstoff in das InAs/GaInAs-Quantenpunktesystem	68
6.2	InAsN Quantenpunkte	70
6.3	Dot-In-A-Well InAs/GaInAsN Quantenpunkte	76
6.4	Optimierte Stickstoffeinbindung für Dot-In-A-Well InAs/GaInAs(N)- Quantenpunkte	78
6.5	Mikrophotolumineszenzuntersuchung an InAs- P mit GaInAs(N)-Deckschicht	81
6.6	InAs/GaInAs(N) in Mikroresonatortürmchen	85
7	Zusammenfassung und Ausblick	91
7.1	Zusammenfassung	91
7.2	Summary	93
A	Publikationsliste	95
A.1	Zeitschriftenveröffentlichungen	95
A.2	Tagungsbeiträge	97
	Literaturverzeichnis	101

Kapitel 1

Einleitung

Leuchtdioden, DVD Geräte und optische Datenübertragung durch Glasfaserkabel sind allgemeinverständliche Begriffe geworden. Leucht- und Laserdioden werden seit vielen Jahren in der technischen Anwendung, doch erst seit kurzem auch im täglichen Leben für Jedermann präsent. Sie sind aus dem Alltag nicht mehr wegzudenken und haben neue Möglichkeiten eröffnet.

Transistoren aus Halbleitern haben die Elektrotechnik revolutioniert. Optisch aktive Halbleiter sind die Grundlage für neue Lichtquellen. Es ist möglich geworden, im Halbleiter niederdimensionale Systeme technisch zu realisieren und damit individuelle Lichtquellen zu gestalten. Die Übermittlung von Daten via Glasfaserkabel ist nur ein, aber ein wesentlicher Teil dieser Anwendungen. Neben immer größeren Datenmengen ist die Sicherheit der Übermittlung ein wichtiges Gebiet der aktuellen Forschung.

Auf dem Weg zur Quantenkryptographie oder zu Quantencomputern gelten niederdimensionale Halbleiterstrukturen als ein wichtiger Baustein [WIS⁺02]. Die Möglichkeit einzelne Photonen gezielt aus einem Bauteil oder Emittlern abrufen zu können, ist das Ziel etlicher Arbeiten [BRV12] [Shi07] [WKU⁺05] [HSL⁺10].

Quantenpunkte, als niederdimensionales System, sind in ihren Eigenschaften bei der Emission von Licht vergleichbar mit einem Atom [IWK⁺07]. Sie bieten die Möglichkeit - gezielt angesteuert - ununterscheidbare Photonen zu generieren [MKB⁺00]

[SPS⁺01] [SFV⁺02]. Durch das Einbinden dieser Quantenpunkte in Mikroresonatoren kann die Emissionseffizienz deutlich gesteigert werden, sowie die Emission zielgerichtet erfolgen [MRM⁺02] [PSV⁺02] [SSR⁺07].

Hierbei bietet gerade das GaAs Materialsystem vielfältige Möglichkeiten, bei der Nutzung von AlAs durch hohen Brechungsindexunterschied, InAs als Material mit abweichender Gitterkonstante und anderer Bandlücke sowie gegebenenfalls Stickstoff als Komplementär zu Arsen. Dies ermöglicht nicht nur optisch [BRK⁺08] sondern auch elektrisch [HSL⁺10] betriebene Bauteile mit hohen Güten der Mikroresonatoren [RHG⁺07] bei kleinem Modenvolumen.

Die gezielte Anordnung bzw. Positionierung der Quantenpunkte sowie die verbesserte Integration der Quantenpunkte in Bauteile ist ein weiterer Schritt. Erste Ergebnisse zeigten, dass die Bestimmung der Quantenpunktposition durch lithographische Prozesse zum Ziel führen kann [NSJP⁺02] [KRS05]. Auch wenn die ersten Ansätze nicht die Anwendung an einzelnen Quantenpunkten suchten [KHS04], ist die Positionierung von Quantenpunkten mittlerweile Bestandteil etlicher Arbeiten [Sch07]. Die Hoffnung liegt allerdings darin, Quantenkryptographie für Lichtfaserkabel nutzbar zu machen. Deshalb ist es von Interesse, Emission von einzelnen Quantenpunkten bei den für konventionelle Glasfaserkabel wichtigen Wellenlängen von 1300 nm [WKU⁺05] [FZA⁺07] [YTK⁺08] [TSH⁺04] und 1550 nm [MOH⁺08] zu erreichen. Anfänglich konnte Emission von einzelnen Quantenpunkten bis zu 1150 nm gezeigt werden [KMW⁺02]. Durch Nutzung von sehr niedrigen Wachstumsraten [AZZ⁺05] oder extrem großer Quantenpunkte [WKU⁺05] wurde bald Einzelemission bis knapp an die 1300 nm gezeigt. Dennoch bleibt diese Wellenlänge eine Herausforderung für eine Realisierung mit InAs Quantenpunkten. Stickstoff als Erweiterung des Materialsystems bietet hier weitere Möglichkeiten [FYF08]. Deswegen werden in dieser Arbeit weitere Ansätze gezeigt, wie unter der Nutzung von Stickstoff in der Deckschicht Wellenlängen jenseits der 1300 nm möglich sind [SHF09]. Dies würde es möglich machen, Einzelquantenpunkte in Al(Ga)As/GaAs Mikroresonatoren einzubinden, um dies für Telekommunikation nutzbar zu machen.

1.1 Zielsetzung der Arbeit

Das erworbene Wissen um die Eigenschaften, Möglichkeiten und epitaktischen Prozesse von GaInAs Quantenpunkten im AlGaInAs Materialsystem fordert weitere Erforschung und Entwicklung mit dem Ziel einer verbesserten Prozesskontrolle, höherer Anwendungsrelevanz sowie einer gezielten Integration in Bauteile. Ausgehend von InAs und GaInAs sollten die Ergebnisse in Verbindung mit Mikroresonatoren weiter verbessert werden, um die Bauteile effizienter und anwendungsbezogen zu realisieren.

Dafür wurde im ersten Teil angestrebt, die lokale Position von InAs und GaInAs Quantenpunkten in einer solchen Weise zu kontrollieren, dass Mikroresonatortürmchen und andere Bauteile gezielt um einen einzelnen Quantenpunkt platziert werden könnten. Während andere Arbeiten möglichst homogene, dreidimensionale Gitter von positionierten Quantenpunkten anstrebten, war das Ziel dieser Arbeit, Quantenpunkte vereinzelt, wie zuvor beschrieben, zu positionieren. Dafür musste die bestehende Anlage umgebaut und ergänzt werden. Im Anschluss musste eine neue Prozedur entwickelt werden, um die erweiterten technischen Anlagen zu optimieren und mit bereits bekannte Techniken zu einem Gesamtprozess zu kombinieren. Dieser Prozess musste zuverlässig und reproduzierbar ermöglichen, Bauteile gezielt um einen einzelnen Quantenpunkt herzustellen. Dieser Prozess sollte in folgenden Arbeiten dazu dienen, die Bauteile mit gewünschten Eigenschaften zu entwickeln.

Im zweiten Teil sollte die Emissionswellenlänge der bereits entwickelten Strukturen von allgemeinen InAs Quantenpunkten für GaAs/AlAsMikroresonatoren von dem Bereich um 950 nm auf den Telekommunikationsbereich von $1,3 \mu\text{m}$ übertragen werden.

Die für das epitaktische Wachstum vorhandenen Molekularstrahlanlagen galt es zu modifizieren, zu erweitern und technisch so ein zu stellen, dass sie den Zielsetzungen gerecht wurden. Daneben war die Optimierung des Quantenpunktwachstum, insbesondere mit dem Ziel von niedrigen Dichten, ein weiterer wichtiger Arbeitsschritt. So wurden unter anderem im Rahmen dieser Arbeit Rekordwerte bei Güten von Mikroresonatoren erreicht [RHG⁺07]. Diese Mikroresonatoren dienten weiteren Untersuchungen im Gebiet der Quantenoptik [KRM⁺10] [RGK⁺09] [GSK⁺10]. Erstmals wurden Quantenpunkte mit Abständen zum nächsten Quantenpunkt von mehr als $2 \mu\text{m}$ derart positioniert [SSS⁺08a], dass es in der Folge möglich wurde, gezielt Bauteile darum zu prozessieren [SHS⁺09] [SSS⁺08b].

1.2 Gliederung der Arbeit

Zu Beginn der Arbeit werden die experimentellen Grundlagen behandelt. Insbesondere werden die technologischen Änderungen und Spezifikation, die an bestehenden Systemen durchgeführt wurden, erklärt. Die technischen Besonderheiten und Neuerungen in der Konfiguration sind hier ausschlaggebend für die Ziele dieser und folgender Arbeiten. Daneben werden kurz experimentelle Methoden der Röntgenbeugungsanalyse, Photolumineszenzspektroskopie (PL) und der Mikroskopie beschrieben, die für die Untersuchung der hier dargestellten Proben zum Einsatz kamen. Für Mikroresonatortürmchen werden, wie im zweiten Kapitel dargestellt, die Grundlagen besprochen sowie die erzielten Ergebnisse gezeigt. Die gleichen Proben und ferner im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Strukturen dienen als Grundlage für weitere Untersuchungen und Studien deren Ergebnisse hier nur kurz aufgeführt werden sollen.

Das Kapitel 4 zeigt die Grundlagen für die Arbeiten mit GaInAs. Diese sind wichtig für die in den Kapiteln 5 und 6 beschriebenen Arbeiten. Kapitel 5 befasst sich zunächst mit der Positionierung von (Ga)InAs Quantenpunkten und zeigt die erreichten Fortschritte, die in diesem Gebiet erzielt werden konnten. In Kapitel 6 wird anschließend beschrieben, wie es mittels gezieltem Einsatz von Stickstoff gelungen ist, Einzelquantenpunktemission von InAs Quantenpunkten im Bereich von 1300 nm Wellenlänge bei Probertemperaturen von einigen Kelvin zu erreichen.

Kapitel 2

Grundlagen und experimentelle Methoden

In diesem einführenden Kapitel werden die für die Probenherstellung und Grundcharakterisierung notwendigen Grundlagen und experimentellen Methoden beschrieben.

2.1 Molekularstrahlepitaxie

Epitaxie ist das Wachstum von kristallinen Strukturen auf einem ein-kristallinen Substrat, das die atomare Ordnung vorgibt und dieses auf die aufgewachsene Schicht überträgt. Die Molekularstrahlepitaxie (engl. Molecular Beam Epitaxy - MBE) ist neben der metallorganischen Gasphasenepitaxie (engl. metal organic chemical vapor phase epitaxy, MOVPE) nur eines von verschiedenen Epitaxieverfahren und ist im Wesentlichen eine Bedampfungstechnik im Ultra-Hoch-Vakuum (UHV, Druck $< 1,35 \times 10^{-8}$ mbar = 10^{-9} Torr). Beim MBE-Verfahren werden in einer UHV Kammer die Elemente in hochreiner Form in Zellen erhitzt. Der Molekularfluss trifft auf

ein Substrat auf welchem sich die Moleküle bzw. Atome an das vorhandene Kristallgitter anlagern. Der schematische Aufbau einer solchen Anlage ist in Abb. 2.1 gezeigt.

Für die Herstellung der Proben wurden zwei MBE-Systeme gleicher Bauart der Firma Eiko aus Japan verwendet. Die Systeme bestehen aus einer Haupt- und einer Ladekammer (Abb. 2.1) und sind ausgelegt für Substrate mit einem Durchmesser von maximal 3 Zoll. Die Pumpensysteme bestehen je nach Kammer aus einer Kombinationen von Turbo-, Ionengetter- und Kryopumpen. Der so erzielte Druck lag bei den verwendeten Systemen zwischen 1×10^{-9} Torr bis 5×10^{-8} Torr. Die Anlagen verfügten jeweils über zwei Gallium (Ga)-, zwei Aluminium (Al)- und eine Indium (In)-Zelle als Gruppe III Elemente, eine Arsen (As) Cracker Zelle als Gruppe V Element, eine Silizium (Si)-Zelle als n-Dotierstoff und eine Kohlenstoff (C)-Zelle als p-Dotierstoff. Als Materialquellen wurden für die Elemente Al, Ga, In, Si Effusionszellen mit Bornitridtiegel und einem Blech als Blende (engl. Shutter) verwandt. Für Arsen stand an beiden Anlagen eine Cracker Zelle mit Nadelventil zu Verfügung. Kohlenstoff wurde über ein Graphitfilament direkt sublimiert.

Über die Ladekammer wurden die Proben, GaAs Halbleiterscheiben (genant engl. wafer) mit 2 und 3 Zoll, in das Ultrahochvakuum (UHV) System gebracht und nach Erreichen eines Hintergrunddrucks von $< 1 \times 10^{-9}$ Torr zur Reinigung auf 400°C für eine halbe Stunde ausgeheizt. Die Substrate (bzw. Wafer) werden in der Herstellung poliert und gereinigt, d.h. bereit für die Epitaxie (engl. epi-ready) geliefert. Durch das Aufheizen auf 400°C wird die Feuchtigkeit verdampft, die sich auf Substrat und Wafer beim Einbauen niedergeschlagen hat. Vor dem Wachstum muss nun die Oxidschicht auf der GaAs-Oberfläche entfernt werden. Dies kann entweder, wie bei den meisten Anlagen üblich, in der Wachstumskammer durchgeführt werden, oder bereits davor durch eine Oxid-Behandlung im UHV. Die Oxiddesorbtion in der Wachstumskammer findet bei einem As-Stützdruck von 5×10^{-7} Torr und einer Substrattemperatur von 630°C für 5 min statt. Ohne den As-Stützdruck würde das Arsen von der Oberfläche verdampfen und die Oberfläche des Substrat würde rau werden. Durch das Bedampfen mit Arsen während der Oxiddesorbtion bei 630°C wird ein Aufräuen der Oberfläche verhindert.

Speziell für die in dieser Arbeit angestrebten Strukturen wurde eine Anlage an ihrer Ladekammer mit einer Wasserstoffplasmaquelle (H-Plamsa) für eine Oxidreinigung mit atomarem Wasserstoff ausgestattet. Dies ist eine der wesentlichen Unterschiede in der Anlagenkonfiguration, grün dargestellt in Abb. 2.1. In dieser Zelle wird durch einen Elektronenstrahl eine Heizwendel erhitzt. Der molekulare Wasserstoff strömt

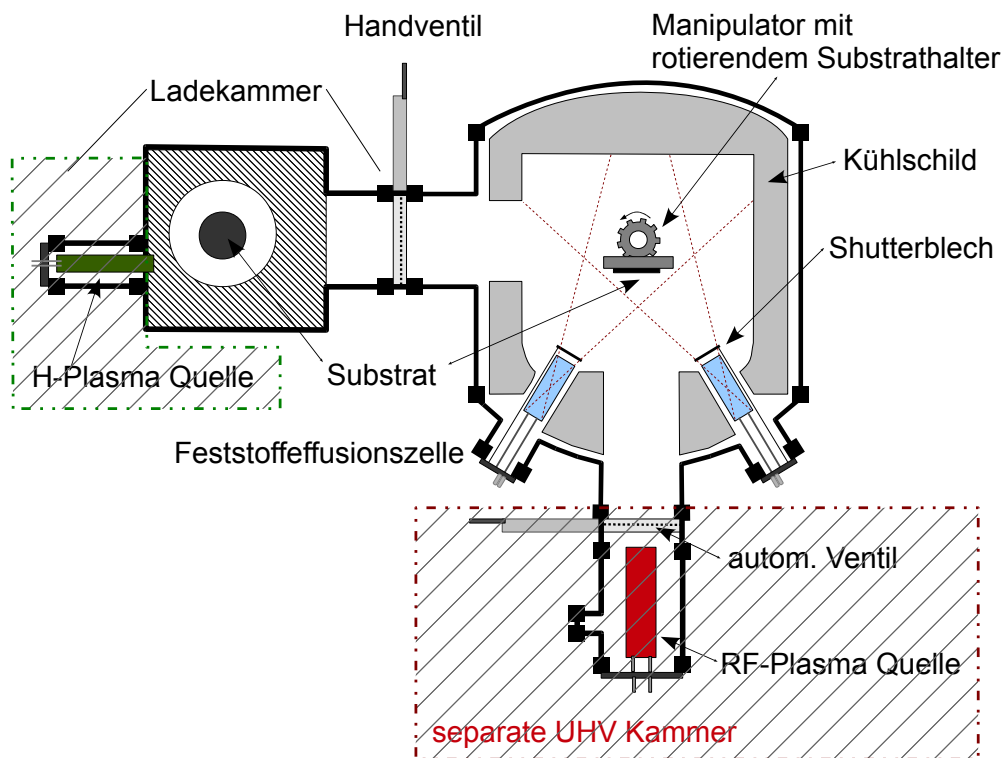


Abbildung 2.1: Skizze der beiden verwendeten MBE-Anlagen; Zusätzliche Komponenten: Anlage 1: H-Plasma-Quelle für atomaren Wasserstoff (grüner Rahmen) /Anlage 2: RF N Plasma Quelle (roter Rahmen)

durch ein Nadelventil dosiert, an dieser Heizwendel vorbei und wird dadurch thermisch in atomaren Wasserstoff aufgebrochen. Der atomare Wasserstoff trifft dann auf die Substratoberfläche und kann hier Oxidationen und Verunreinigungen lösen. Die zweite Anlage verfügte im Gegenzug über eine Radiofrequenz Stickstoffplasma-Quelle (RF-Quelle). In Abb. 2.1 ist die Installation dieser RF-Quelle rot markiert. Die Quelle befindet sich in einer separat gepumpten Kammer und ist über ein pneumatisch betriebenes Ventil von der Wachstumskammer getrennt. Diese besondere Konfiguration bietet gegenüber einer Installation an einem normalen Zellenflansch erhebliche Vorteile. Bei einer Plasmaquelle, die nur durch ein Shutterblech von der Kammer getrennt ist, wird bei Betrieb der Zelle stets Stickstoff in die Kammer diffundieren. Eine Trennung durch ein vakuumdichtes Ventil mit einer separat gepumpten Kammer bietet die Möglichkeit, die Plasmaquelle konstant ein zu stellen und zu betreiben, ohne dass Stickstoff in die Wachstumskammer diffundiert. Das Ventil wird dann automatisch über den Steuerungscomputer wie ein Zellen shutter angesprochen, und für die entsprechenden Schichten innerhalb der Struktur geöff-

net. Der Druck der Wachstumskammer erhöht sich für den Zeitraum mit geöffnetem Ventil zur Stickstoffquelle von typischerweise 6×10^{-7} Torr auf bis zu 1×10^{-6} Torr. Nach Schließen des Ventils ist nach 10 bis 15 Sekunden der Druck wieder auf dem vorherigen Wert.

2.2 Röntgenbeugungsanalyse

Eine wichtige Strukturanalyse von Kristallen ist die Röntgenbeugungsanalyse (eng. XRD: X-Ray diffraction), bei der ein zu untersuchender Kristall mit monochromatischem Röntgenlicht bestrahlt und die Beugung detektiert wird. Zur Anwendung kam in dieser Arbeit das Philipps X'pert XRD. Dies diente zur Prüfung der Kristallqualität für AlGaAs-Strukturen sowie zur Bestimmung der Zusammensetzung von gewachsenen AlGaAs-, GaInAs- und GaAsN-Strukturen. Um den Al-Gehalt einer AlGaAs Struktur oder den Stickstoffgehalt einer GaAsN-Struktur zu bestimmen, wurden Proben mit 300nm bis 500nm AlGaAs bzw. 200nm GaAsN in GaAs gewachsen. Aus dem XRD-Beugungsbild kann der Al bzw. Stickstoffgehalt bestimmt werden, sowie Rückschlüsse auf die AlGaAs-Wachstumsrate gezogen werden. Zur Bestimmung der Wachstumsrate von GaAs und InAs wurde ein Übergitter von 20 bis 40 GaAs und GaInAs gewachsen, Schichten mit ca. 2 nm GaInAs und 22 nm GaAs in einer separaten Probe gewachsen. Der In-Gehalt der GaInAs Schicht lag je nach angestrebten Wachstumsraten zwischen 10 % und 20 %. Aus dem aufgezeichneten XRD-Beugungsbild können dann In-Gehalte sowie InAs- und GaAs-Wachstumsrate sehr genau errechnet werden. Eine detaillierte Beschreibung des Schichtaufbaus, der XRD-Beugungsbilder und der Berechnung findet sich in [SKN95].

2.3 Photolumineszenzspektroskopie

Bei der Photolumineszenzspektroskopie (PL) werden durch Lichteinstrahlung mit einer Energie größer der Bandlücke des zu untersuchenden Halbleiters in der Probe Elektron-Lochpaare erzeugt. Diese relaxieren in die Bereiche niedriger Bandlücke und rekombinieren unter Abgabe eines Photons. Das emittierte Licht wird mit optischen Komponenten abgebildet und mittels eines Spektrometers untersucht.

Für die optische Anregung wurde in den genutzten Messaufbauten ein mit einem Halbleiterlaser gepumpter, mittels Neodym-Yttrium-Aluminium-Granat frequenzverdoppelter (Nd:YAG) Laser mit einer Emissionswellenlänge von 532 nm verwendet. Die Proben wurden jeweils in Helium (He)-Kryostaten angebracht, die Messungen zwischen 8K und Raumtemperatur (RT) ermöglichen. Die Kryostaten waren einerseits ein Kryostat mit geschlossenem He-Kreislauf sowie ein He-Durchfluss Kryostat. Zu optischen Analyse standen drei Monochromatoren zur Verfügung mit einer Fokllänge von 25 cm, 37 cm und 120 cm mit optischen Gittern mit Strichen 300 mm^{-1} , 1200 mm^{-1} und 300 mm^{-1} . An diese waren eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte Germanium Diode mit konventioneller Lock-In Technik sowie zwei baugleiche, ebenfalls mit flüssigem Stickstoff gekühlte InGaAs-Zeilen angebracht. Dies resultierte in eine spektrale Auflösung von 0,3 meV für den Monochromator mit 120 cm spektraler Länge, 300 mm^{-1} Gitter und InGaAs Zeile.

2.4 Mikroskopie

Zur Überprüfung und Untersuchung der Proben konnten für diese Arbeit mehrere mikroskopische Methoden genutzt werden: optische Mikroskopie mit bis zu 100-facher Vergrößerung, Rasterelektronenmikroskopie (REM) und Rasterkraftmikroskopie (AFM).

Die Rasterelektronenmikroskopie diente in dieser Arbeit zum Einen für die Kontrolle der Schichtqualität und Schichtdicke von zweidimensionalen Strukturen wie z.B. GaAs/AlAs Schichten. Hierfür wurden Probenstücke von ca $3\text{ mm} \times 4\text{ mm}$ aus dem Substrat gespalten, angeätzt und von der Seite mit dem REM betrachtet. Zum

anderem wurden Probenstücke unter 70°C von oben mit dem REM betrachtet um Oberflächenquantenpunkte zu untersuchen, auf Dichte, laterale Abmessung, Position und Verteilung.

Für Rasterkraftmikroskopie (AFM) wurden zwei Geräte verschiedener Hersteller (AnfaTec, Schäfer Technologie) jeweils mit Si-Spitzen im Kontakt und im dynamischen Modus verwendet. Diese Methode ermöglichte eine Vermessung der Quantenpunktgröße und Höhe.

Kapitel 3

Mikroresonatoren

In der Vergangenheit wurden verschiedenste Ansätze entwickelt und studiert um Licht in Mikroresonatoren einzuschließen, zu kontrollieren und zu manipulieren: totale interne Reflexion (TIR), Bragg-Spiegel (DBR-Distributed Bragg Reflector) sowie photonische Kristalle [KRM⁺10] [KMR⁺10] [SHH⁺08].

Als Basis der vorliegenden Arbeit wurden AlAs/GaAs DBR Mikroresonatoren hoher Güte mit integrierten GaInAs QP realisiert. Dieses Kapitel beschreibt den grundlegenden Aufbau, das epitaktische Wachstum, den lithographischen Prozess, sowie die Möglichkeiten für Untersuchungen, die diese Strukturen bieten.

3.1 Grundlagen

Die in dieser Arbeit realisierten Mikroresonatoren mit DBR-Spiegeln zeigen einige Vorteile im Vergleich zu anderen Systemen. Ein Mikroresonator mit planaren DBR Spiegeln kann mit MBE direkt auf einem Substrat gewachsen werden. DBR-Spiegel auf Basis von Halbleitern haben weniger optische Verluste als Metallspiegel. Bestehen die Spiegel aus Halbleitermaterialien, so kann durch Dotierung beim

3.1. Grundlagen

MBE Wachstum zwischen elektrisch leitend und isolierend gewählt werden, um die gewünschten Bauteileigenschaften, beispielsweise elektrische Injektion [HSL⁺10] [BRK⁺08] oder elektro-optische Abstimmbarkeit [KHS⁺08], realisieren zu können. Die Reflektivität der Struktur in vertikale Richtung kann durch die geeignete Wahl der Spiegelnzahl gezielt eingestellt werden. Der laterale Einschluss des Lichtes erfolgt durch Ätzen von Türmchen und dem daraus resultieren Brechungsindexunterschied an den Kanten des Türmchens zwischen Halbleiter Luft. In Abb. 3.1 ist der schematische Aufbau eines Mikroresonatortürmchens mit eingebauten GaInAs-Quantenpunkten dargestellt. Sie zeigt die einfachste Folge für einen Mikroresonator, bestehend aus einem Fabry-Perot Resonator mit einer Kavität der Dicke λ , entsprechend der gewünschten Resonanzfrequenz und jeweils einem DBR Spiegel oberhalb und unterhalb. Neben dieser fundamentalen Struktur sind durchaus weitere Designs denkbar, wie Kavitäten mit einem Mehrfachen der Wellenlänge λ oder mehrerer Kavitäten, jeweils durch Spiegel getrennt.

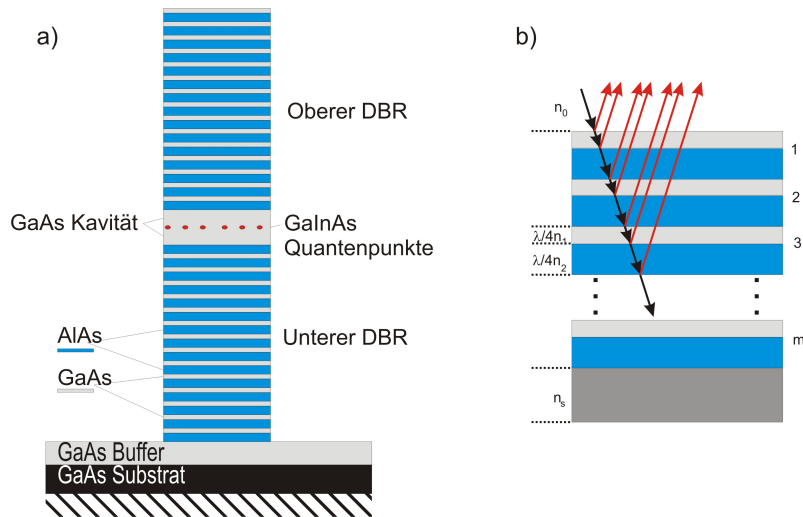


Abbildung 3.1: Skizze eines DBR-Resonators mit GaInAs Quantenpunkten: a) Türmchenstruktur b) planare DBR-Struktur

3.2 Planare Strukturen

Ein DBR-Spiegel besteht aus einer alternierenden Folge von zwei Materialien mit unterschiedlichen Brechungsindizes n_1 und n_2 . Die Schichtdicken erfüllen die Bragg-Bedingung $d = \frac{\lambda}{4n}$, damit der Spiegel die maximale Reflektivität besitzt. Die Reflektivität im Bereich der Resonanz für einen DBR mit m dielektrischen Spiegel ohne Absorption ist gegeben durch [Sal95]:

$$R = \tanh^2 \left[\frac{1}{2} \ln \left(\frac{n_0}{n_{Subst}} \right) + m \ln \left(\frac{n_1}{n_2} \right) \right] \quad (3.1)$$

Somit ist die Reflektivität umgekehrt proportional zu $\ln(\frac{n_1}{n_2})$. Mit größerem m geht die Reflektivität r gegen 1. Beim Design und der Berechnung mit MBE gewachsener Strukturen muss man das Substrat mit berücksichtigen und entweder den Übergang vom Substrat zur ersten Schicht als ein Spiegelpaar betrachten oder in der Gleichung (3.1) n_{Subst} durch n_1^2/n_{Subst} ersetzen. Abb. 3.2 zeigt eine REM Aufnahme einer planaren DBR-Struktur aus alternierenden GaAs (hell) und AlAs (dunkel) Schichten. Während das grundlegende Design eines DBR-Resonators sowie einige Eigenschaf-

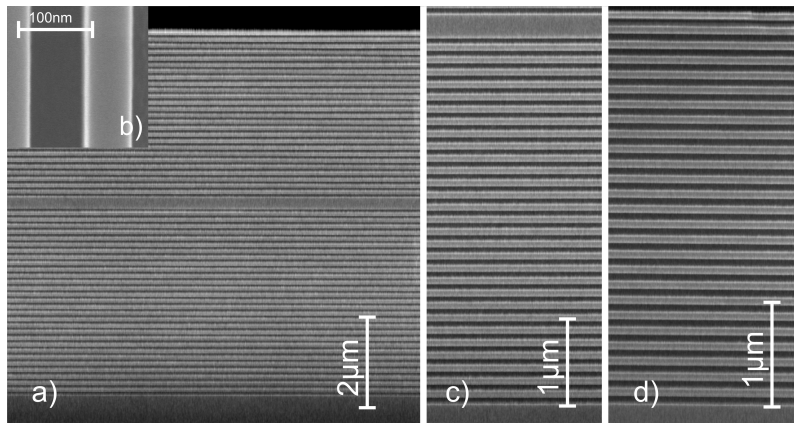


Abbildung 3.2: REM Aufnahmen einer DBR-Struktur mit alternierenden $\lambda/2$ Spiegelpaaren aus AlAs und GaAs mit GaAs als Kavität: a) gesamter Resonator; b) Ausschnitt einer Schichtenfolge aus GaAs (hell) und AlAs (dunkel, c) unterer DBR mit Kavität, d) oberer DBR

ten analytisch bestimmt werden können, ist es notwendig für Messungen an gewachsenen Strukturen ausführlichere Berechnungen zu erstellen. Mit der Transfermatrix Methode kann das Reflexionsspektrum einer solchen Struktur wesentlich genauer

berechnet und mit den Messungen verglichen werden. In Abb. 3.3 sind das gemessene sowie das mit Transfermatrix berechnete Spektrum einer gewachsenen Struktur dargestellt. Ein Vergleich von Messung und Simulation erlaubt einen äußerst genauen Rückschluss auf die Schichtdicke der AlAs/GaAs-Spiegelpaare, der Dicke der Kavität sowie Homogenität der Spiegelpaardicken innerhalb der Struktur. Wenn alle Paare als gleich dick angenommen werden, lässt sich die Dicke eines AlAs/GaAs-Spiegelpaares auf $\pm 0,5\text{nm}$ und die der Kavität auf $\pm 2\text{nm}$ bestimmen. Dies ist deutlich genauer, als die Daten, welche aus REM-Aufnahmen gewonnen werden können, und stellt ein wichtiger Schritt bei der Optimierung der Wachstumsparameter dar.

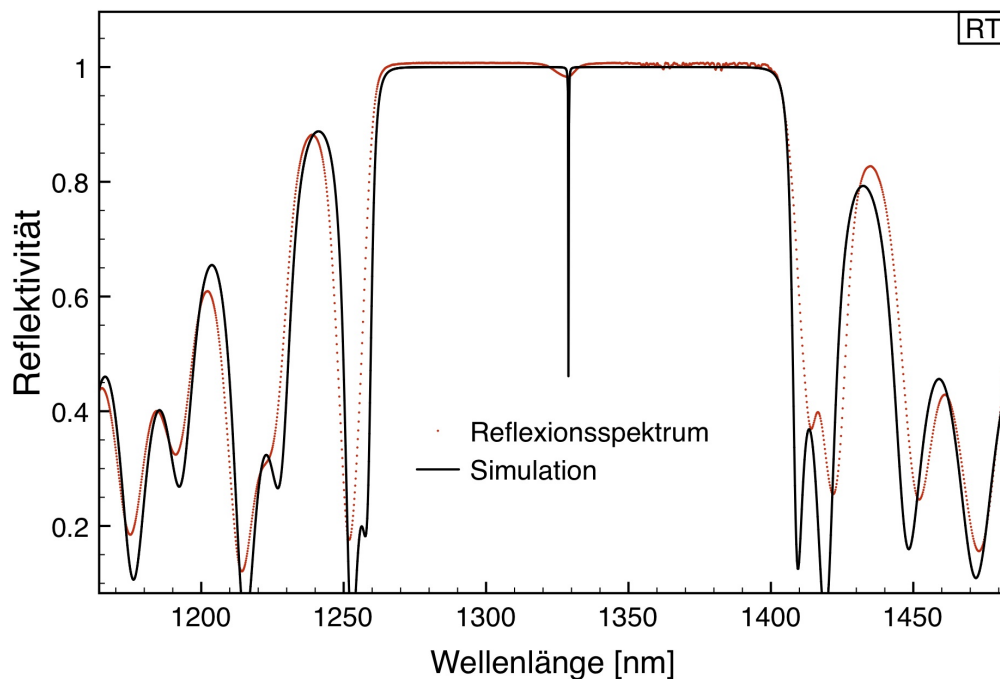


Abbildung 3.3: Reflexionsspektrum einer planaren DBR Resonatorstruktur: gemessen (schwarz) und mit Transfermatrixmethode berechnet (rot gepunktet)

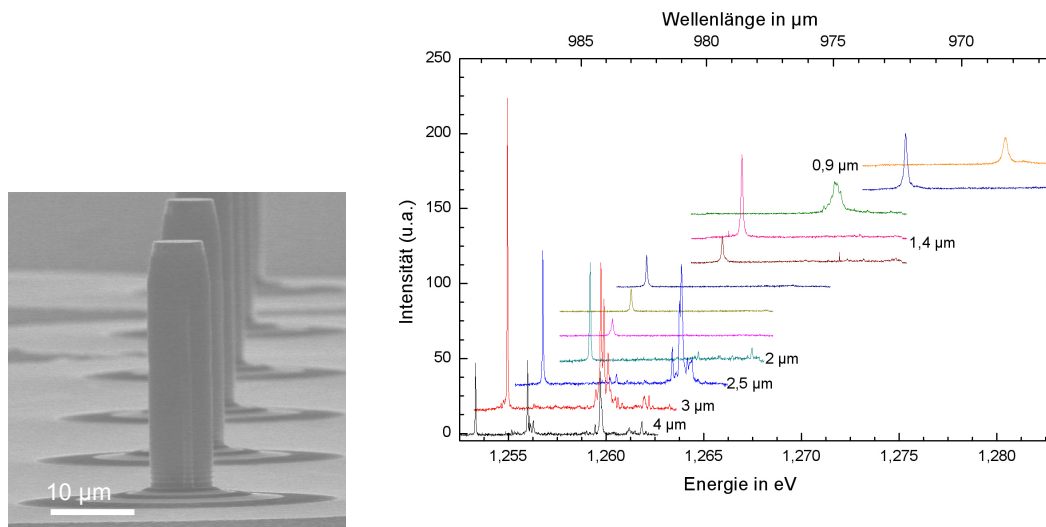


Abbildung 3.4: (links) REM-Aufnahme von DBR Mikroresonatoren (rechts) Modenspektren für Mikroresonator mit unterschiedlichem Durchmesser, gemessen in PL

3.3 Messungen an Mikroresonatoren

3.3.1 Prozessierung von Mikroresonatoren

Aus den mittels MBE planar gewachsenen Spiegelschichten werden, wie in Abb. 3.2 dargestellt, um einen dreidimensionalen, photonischen Einschluss zu erreichen, in mehreren Prozessschritten durch hochauflösende Elektronenstrahlolithographie und anschließendes Trockenätzen Türmchen mit einem Durchmesser von $0,9 \mu\text{m}$ bis $4 \mu\text{m}$ geätzt (siehe Abb. 3.4). Der so entstandene Halbleiter-Luft-Übergang mit einem Brechungsindexunterschied von ~ 3 zu 1 bildet den photonischen Einschluss in der horizontalen Richtung.

Die Elektronenstrahlolithographie erfolgt in einem Umkehrprozess (engl. Lift off) mit Nickel als Ätzmaske. Als Ätzprozess wurde ein ECR-RIE (electron cyclotron resonance reactive ion etching) Prozess mit Ar/Cl_2 Plasma entwickelt ([Löf05]). Dieser Prozess ermöglicht die Umsetzung von Türmchen mit einem Durchmesser von $0,5 \mu\text{m}$ bis $4 \mu\text{m}$ bei einer Äzttiefe bis zu $9 \mu\text{m}$ mit senkrechten Flanken. Abb. 3.4 zeigt in einer REM Aufnahme eine Reihe von Mikroresonatortürmchen. Die Flanken sind senkrecht und die AlAs/GaAs-DBR-Schichten sind deutlich erkennbar. Typischerweise

werden auf ein Prozesstück von $8 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ mehrere Felder mit unterschiedlichem Durchmesser der Türmchen, für die anschließenden PL-Untersuchungen prozessiert. In einem zylindrischen Mikroresonator mit einer Intensität von Null an den Seitenwänden können die Energien der Moden berechnet werden nach [GBFR98]:

$$E = \sqrt{E_0^2 + \frac{\hbar^2 c^2}{\epsilon} \frac{\chi_{n_\phi, n_r}^2}{R^2}} \quad (3.2)$$

wobei χ_{n_ϕ, n_r}^2 die n -te Nullstelle der Besselfunktion $J_{n_\phi}(\chi_{n_\phi, n_r}^2, r/R)$ und R der Radius der Mikroresonatoren ist. $E_0 = \hbar c k_0 / \sqrt{\epsilon}$ ist die Energie des ungeätzten, planaren Resonators mit k_0 als dem zugehörigen Wellenvektor. In Abb. 3.5 ist der theoretische Verlauf $E(n_r, n_\phi, 0)$ für $J(1,0,0)$ und $J(1,1,0)$ gemeinsam mit den gemessenen Werten graphisch dargestellt.

Neben der Hauptmode verändert sich auch die absolute und die relative Lage der Moden höherer Ordnung in Abhängigkeit vom Durchmesser. Für Mikroresonatoren mit $4 \mu\text{m}$ Durchmesser liegt die Energie der Hauptmode noch bei $1,253 \text{ eV}$. Eine Verringerung des Durchmessers zu $3 \mu\text{m}$ verändert die Lage der Mode nur leicht zu $1,255 \text{ eV}$. Erst für Durchmesser unter $2 \mu\text{m}$ schiebt die Hauptmode stärker zu kürzeren Wellenlängen bzw. höheren Energien von $1,259 \text{ eV}$ für $2 \mu\text{m}$ und $1,275 \text{ eV}$ für $1 \mu\text{m}$. Man erkennt den Verlauf, die starke Verlagerung der Moden für kleinere Durchmesser der Resonatoren zu kürzeren Wellenlängen hin, sowie das Erreichen einer Sättigung für große Durchmesser [RRZ⁺97].

3.3.2 Spektrale Abstimmbarkeit

Für optische Untersuchungen muss die Resonanzfrequenz, d.h. die Resonatormode des Mikroresonators, spektral abgestimmt sein auf das aktive Medium, in diesem Fall, die Quantenpunkte. Der erste Schritt hierfür erfolgt im MBE Wachstum und der damit verbundenen Kalibrierung. Nimmt man vereinfachend an, dass die Lage der Resonanz durch die Dicke der Kavität bestimmt wird, so muss eine planare Struktur nach $d = \frac{\lambda}{n}$ eine Kavität mit einer Dicke von $372,8 \text{ nm}$ haben, um bei Raumtemperatur eine Resonanz von 1300 nm zu zeigen. Eine Abweichung der Schichtdicke um 3% , d.h. $11,9 \text{ nm}$, hat eine Verschiebung der Resonanz um $3,7\%$ zu 1348 nm zur Folge.

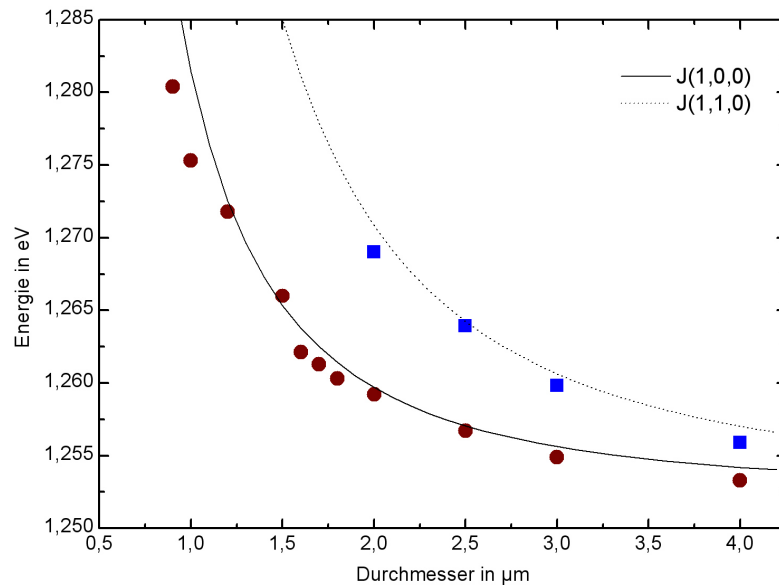


Abbildung 3.5: Energetische Lage der Mikroresonatormoden in Abhängigkeit des Durchmessers: Grundmode (rot), sowie die zweite Mode (blau). Als Linien eingezeichnet ist der errechnete Verlauf

Dieses Rechenbeispiel zeigt, welche technische Präzision notwendig ist. Die Kombination von REM-Messungen, XRD-Analyse sowie Reflexionsmessungen an planaren DBR Strukturen waren die wichtigen Methoden, um diese MBE Kalibrierung zu erreichen.

Für die Feinabstimmung von Resonator und aktivem Medium wurde ein Effekt genutzt, der durch die Geometrie und den Aufbau der MBE-Anlagen auftritt. In der Skizze der Anlagen (Abb. 2.1) kann man sehen, dass der Molekularstrahl der Effusionszellen das Substrat so trifft, dass ein Gradient entsteht, durch die winklige Anordnung, die Zellenöffnung und den Füllstand der Zelle bedingt ist. Bei ausreichend hoher Rotation des Substrates äußert sich dieser Gradient in einer von innen nach außen abnehmenden Wachstumsrate. Die Abnahme der Wachstumsrate auf dem Wafer von innen nach außen wird bei der Messung des Reflexionsspektrum und der Resonanz einer planaren DBR Struktur deutlich. Abb. 3.6 zeigt die Verschiebung der Resonanz für zwei Proben, die jeweils auf den beiden verwendeten Anlagen gewachsen wurden. Im linken Graphen ist die absolute Verschiebung der Resonanz aufgetragen in Abhängigkeit von der Position zur Wafermitte. Der rechte Graph zeigt die relative Verschiebung. Da die Anlagen baugleich sind ist auch der

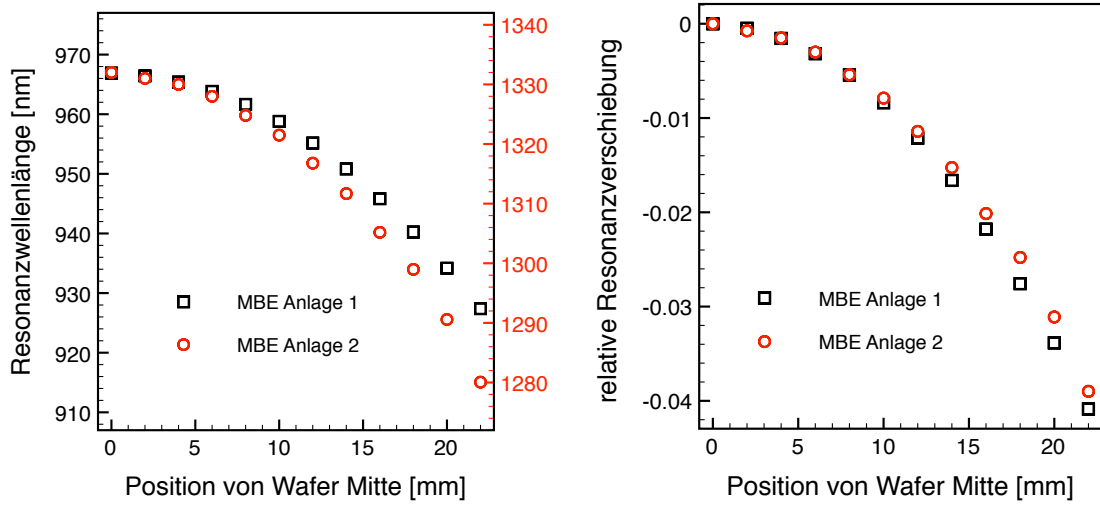


Abbildung 3.6: die absolute Lage der Resonanzwellenlänge (links) und die relative Resonanzverschiebung $\Delta\lambda/\lambda$ einer planaren DBR Struktur in Abhängigkeit der Position auf dem Wafer für je eine Struktur aus einer der beiden verwendeten MBE Anlagen

Unterschied im Gradienten der Wachstumsraten nur minimal, wie dieser Vergleich zeigt.

3.3.3 Güte von Mikroresonatoren

Die Güte der Resonatoren, d.h. ihr Vermögen Licht einzuschließen, wird im sogenannten Qualitätsfaktor (Q -Faktor) gemessen. Dieser ist definiert als:

$$Q = \frac{\lambda_c}{\Delta\lambda_c} = \frac{E_c}{\Delta E_c} \quad (3.3)$$

wobei λ_c die Wellenlänge der Resonatormode und $\delta\lambda_c$ deren Linienbreite ist (FWHM - full width at half maximum). Der Q -Faktor kann durch die effektive Kavitätslänge l_{eff} und die Reflektivität der beiden Spiegel R_1 und R_2 ausgedrückt werden.

$$Q = \frac{\lambda_c}{\Delta\lambda_c} = \frac{E_c}{\delta E_c} = \frac{E_c}{\gamma_{c,\mu}} = \frac{2L_{eff}}{\lambda} \frac{\pi}{1 - \sqrt{R_1 R_2}} \quad (3.4)$$

wobei die effektive Länge der Kavität $L_{eff} \approx n_{kav}d_{kav} + 2n_{eff}L_{eind}$ bestimmt wird durch den Brechungsindex der Kavität n_{kav} , deren Dicke d_{kav} sowie dem effek-

tiven Brechungsindex n_{eff} und der effektiven Eindringtiefe der Spiegel $L_{ind} = m_{eff}(d_1 + d_2)$, wobei $m_{eff} = 1/2(m_1 + m_2)/(m_1 - m_2)$ die effektive Anzahl von Spiegeln ist.

Der Q-Faktor wird durch den vertikalen Einschluss eines DBR-Spiegels und durch den horizontalen Einschluss beeinflusst. Die Güte eines Mikroresonators ist ein Maß für die Qualität des photonischen Einschlusses. Je höher die Güte des Mikroresonators ist, desto länger wird ein Photon im Resonator eingeschlossen.

Die Güte, d.h. der Q-Faktor kann experimentell bestimmt werden durch die Messung der Linienbreite der Resonatormode in PL.

Um einzelne Türmchen gezielt zu messen, wurde ein Mikroskopobjektiv mit einer 50-fachen Vergrößerung in einem Messaufbau mit hochauflösendem Spektrometer mit flüssigem Stickstoff gekühlter CCD verwandt. Ein so gemessenes Modenspektrum ist exemplarisch in Abb. 3.7 gezeigt. Die Halbwertsbreite von $32 \mu\text{eV}$ ergibt bei der Wellenlänge von $956,25 \text{ nm}$ einen Q-Faktor von 90000. Um den Q-Faktor zu

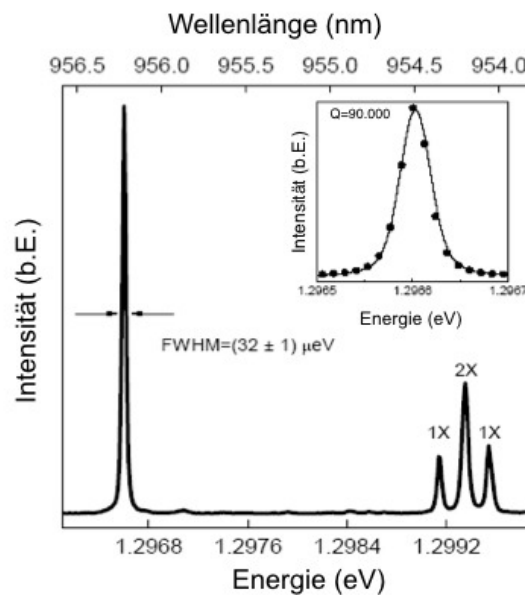


Abbildung 3.7: Modenspektrum eines Mikroresonatortürmchens mit $4 \mu\text{m}$ Durchmesser bei 8 K . Oben rechts: hoch aufgelöstes Spektrum der Fundamentalmode mit einer auflösungsbegrenzten Linienbreite von $32 \mu\text{eV}$, was einem Q-Wert von 90000 entspricht.

verbessern, kann man die limitierenden Faktoren, d.h. die Verlustmechanismen in ei-

nem einfachen Modell in drei wesentlichen Komponenten aufschlüsseln: Intrinsische Verluste, Streuung und Absorption.

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{\text{Intrinsisch}}} + \frac{1}{Q_{\text{Streuung}}} + \frac{1}{Q_{\text{Absorption}}} \quad (3.5)$$

Um die intrinsischen Verluste weiter zu minimieren, wurde in einem ersten Schritt die Anzahl der DBR-Spiegelpaare von ursprünglich 20/24 [RSL⁺04] auf bis zu 32/36 Spiegelpaare erhöht. Dies bedeutet nichts anderes als eine Verbesserung der Reflektivität der DBR-Spiegel und somit von Q_{int} . Geht man von planaren Strukturen aus, so kann man den Q-Faktor mittels Transfermatrixmethode in Abhängigkeit der Spiegellanzahl einfach bestimmen. Vernachlässigt man weitere Verlustmechanismen, so ergeben sich theoretische Q-Werte von 154.000 für 25/29, 639.000 für 29/33, 1.000.000 für 32/36 Spiegelpaare im oberen bzw. unteren DBR. Eine Erhöhung der Spiegellanzahl ist aber nur in begrenztem Umfang auch zweckmäßig, da mit zunehmender Reflektivität des oberen DBRs auch weniger Licht ausgekoppelt wird.

Der nächste limitierende Faktor aus Gl.3.5 ist die Absorption. Der Anteil der Absorption in einem Resonator mit der Länge λ_c ist bestimmt mit der materialabhängigen Absorptionskonstante α durch.

$$\frac{1}{Q_{\text{Absorption}}} = \frac{\lambda_c \alpha}{4\pi n} \quad (3.6)$$

Die Absorption kann man vereinfacht in zwei Anteilen betrachten. Den Anteil der Quantenpunkte α_{QD} und den der restlichen Struktur α_{Vol} , mit $\alpha = \alpha_{QD} + \alpha_{Vol}$. Um α_{QD} im Resonator zu minimieren, kann man den Einfluss auf die Dichte des absorbierenden Mediums, in diesem Fall die Dichte der Quantenpunkte reduzieren. Abb 3.8 zeigt zwei Proben mit GaInAs Quantenpunkten mit einem In-Gehalt von nominell 30%. Durch sorgfältige Anpassung der Wachstumsparameter Substrattemperatur sowie As-Fluss konnte die Quantenpunktdichte auf unter $5 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$ gesenkt werden. Neben der Quantenpunktdichte ist die Abstimmung von Resonatormode zum spektralen Verlauf der Quantenpunktmission ein wichtiger Beitrag. Hier wird die Bedeutung des im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Punktes der spektralen Abstimmbarkeit deutlich. Abb. 3.9 zeigt im rechten Graphen die gemessenen Q-Faktoren von Mikroresonatoren mit Durchmesser von $4 \mu\text{m}$ in Abhängigkeit der spektralen Lage zum Maximum der Quantenpunktmission. Im linken Graphen ist auszugsweise ein Spektrum mit Resonatormoden bei 1,322 eV und QP-Emission mit dem Maximum bei 1,347 eV gezeigt. Durch eine höhere Flächendichte und spektrale

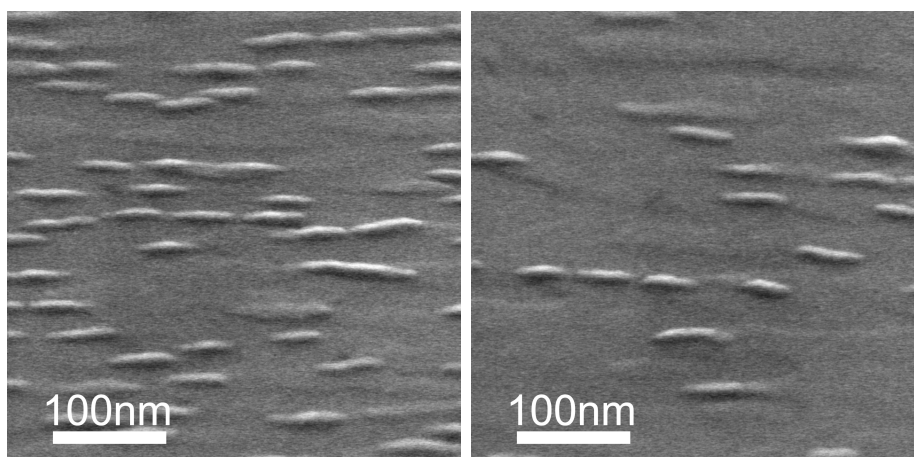


Abbildung 3.8: *GaInAs-Quantenpunkte mit einer Dichte von $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ (links) und $2 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ (rechts)*

Dichte der Quantenpunkte wird die Absorptionswahrscheinlichkeit für ein Photon im Resonator erhöht, d.h. seine Lebensdauer verringert. Demzufolge zeigen Resonatoren mit einer geringen spektralen Verstimmung zum Maximum der Quantenpunktemission Q-Faktorn von knapp 75.000. Liegt die Resonatormode im langwelligen Ausläufer des Quantenpunktspektrums, so nimmt die Absorptionswahrscheinlichkeit ab. Für die in diesem Beispiel untersuchte Probe wurden bei einem Abstand von 25 meV von Resonatormode und Quantenpunktmaximum Güten von über 125.000 gemessen.

Der Anteil der Verluste durch Streuung an den Seiten des Resonator ist im letzten

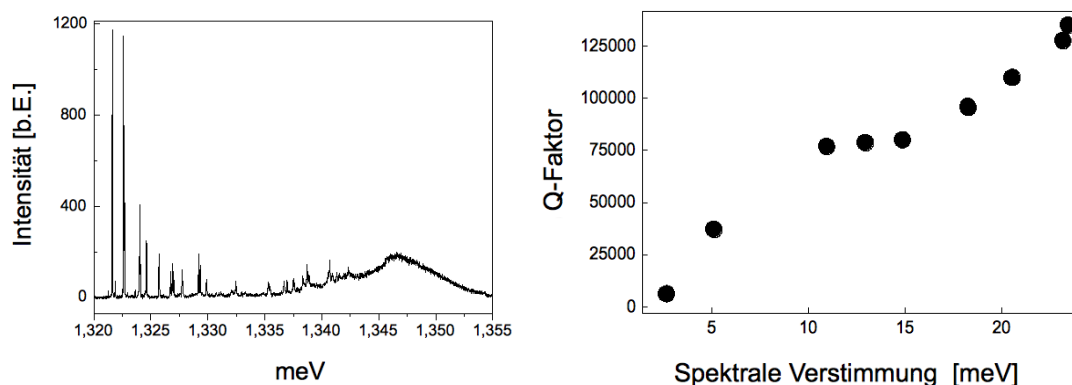


Abbildung 3.9: *Q-Faktor von Mikroresonatoren in Abhängigkeit der spektralen Verstimmung von Resonatormode und Maximum der Quantenpunktemission, im linken Graphen bei 1,347 eV zu erkennen*

3.3. Messungen an Mikroresonatoren

Teil von Gl. 3.5 berücksichtigt. Die Verluste durch Streuung in einem zylinderförmigen Resonator mit Radius r können beschrieben werden mit [Sal95]:

$$\frac{1}{Q_{\text{Streuung}}} = \frac{\kappa}{J_0^2(k_t r_c)/r_c} \quad (3.7)$$

wobei hier die Intensitätsverteilung der Fundamentalmode durch die Besselfunktion erster Ordnung J_0 beschrieben wird. κ steht für die phänomenologisch proportionale Konstante. Somit sind die Verluste durch Streuung indirekt proportional zum Durchmesser der Resonatoren. In vorangegangenen Arbeiten [Löf05] [Str06] wurde bereits die Prozessierung optimiert um Streuungen an Defekten der geätzten Flanken zu minimieren. Den Einfluss für kleiner werdende Durchmesser der Resonatoren sieht man deutlich an den maximal gemessenen Q-Faktoren von zwei Proben in Abhängigkeit der Durchmesser in Abb.3.10

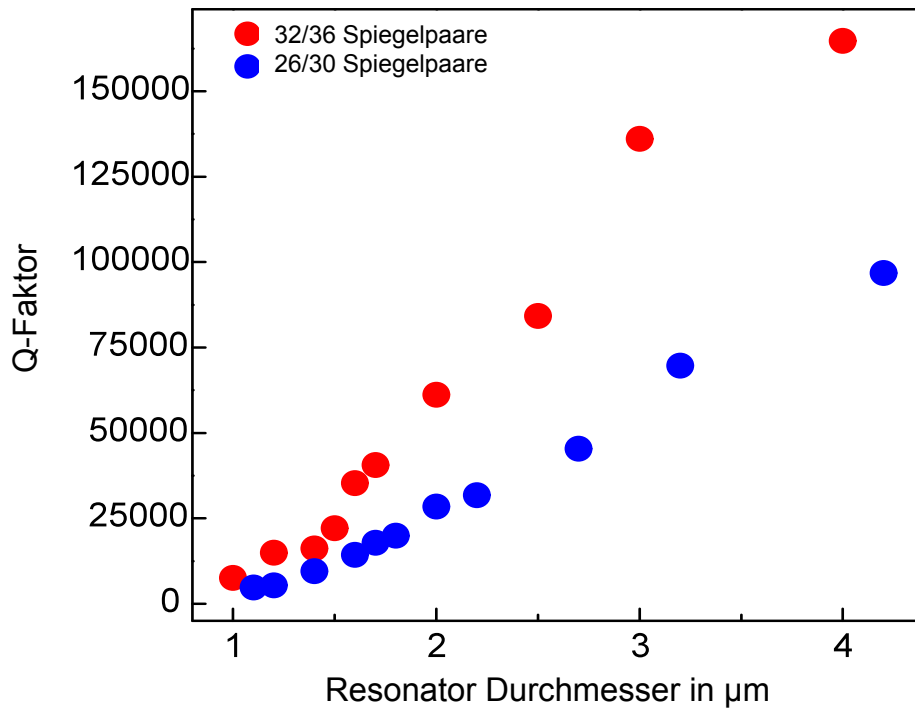


Abbildung 3.10: *Q-Faktoren von DBR Mikroresonatoren für zwei Strukturen mit 26/30 und 32/36 Spiegelpaaren im unteren/oberen DBR Spiegel*

Mit größer werdendem Durchmesser nimmt der Q-Faktor für die Struktur mit 32/36 Spiegelpaaren deutlich mehr zu und erreicht bei $4 \mu\text{m}$ den Rekordwert von 150000 [ARS⁺05] [RHG⁺07]. Bei kleinen Durchmessern $< 1,5 \mu\text{m}$ liegen die Werte für beide Strukturen nah beieinander und bleiben unter 40000. Hier wird die Limitierung durch den Lateralen Einschluss deutlich. Die anhand der hier beschriebenen Punkte optimierten Resonatoren zeigten erstmals Q-Werte von über 165.000 [Str06][RHG⁺07].

Die einzelnen Beiträge aus Gl. 3.5 sind in Abb. 3.11 nochmals graphisch dargestellt. Die schwarze Kurve zeigt wie der Q-Faktor für größere Durchmesser ohne Berücksichtigung von Streuung und Absorption stetig steigt. Wobei man jedoch nicht vergessen darf, dass beliebig große Durchmesser keinen Einschluss in der x-y Ebene mehr ermöglichen. Die wesentliche Bedeutung der Absorption wird durch die blaue Kurve deutlich. Durch diese steigt der Q-Faktor bereits ab einem Durchmesser von $3 \mu\text{m}$ nicht mehr wesentlich. Dieser Umstand ist sehr anschaulich, da das für die Absorption verantwortliche Volumen des Halbleiters mit r^2 zunimmt. die Streuung an den Rändern der Türmchen bewirkt einen Einbruch der Q-Faktoren für kleine Durchmesser ($r \leq 2,5 \mu\text{m}$), d.h. für Durchmesser $r \leq \lambda n$.

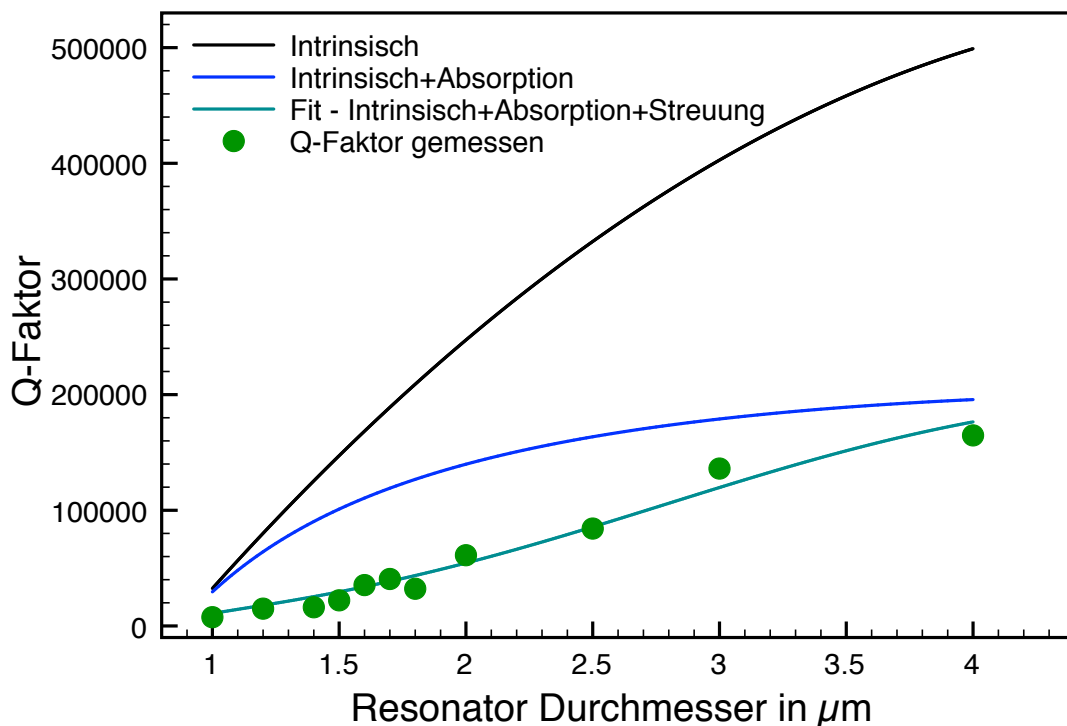


Abbildung 3.11: Q-Faktoren von DBR Mikroresonatoren mit Fit

Wenn der Durchmesser des geätzten Türmchens an die Abmessung der horizontalen Grundmode herankommt, werden die Verluste durch Streuung an den geätzten Rändern limitieren, was deutlich in der grünen Kurve, bzw. den eingezeichneten gemessenen Q-Faktoren zu sehen ist. Die gemessenen Daten aus Abb.3.10 für die Probe mit 32/36 Spiegelpaaren wurden anhand der zuvor diskutierten Gleichung angepasst und graphisch dargestellt. Gerade die Limitierung des Q-Faktors für Durchmesser $< 2,5\mu\text{m}$ wird im Vergleich mit den Teilen $Q_{\text{Intrinsisch}}$ und $Q_{\text{Absorption}}$ nochmals deutlich.

3.3.4 Mikroresonatortürmchen als Bauteil

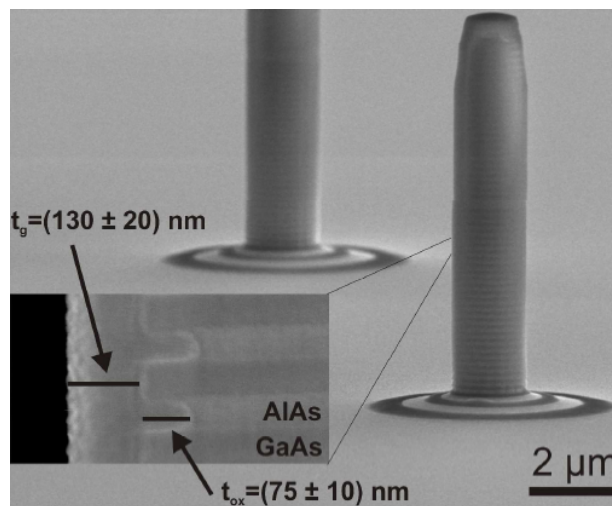


Abbildung 3.12: REM-Aufnahme eines Resonatortürmchens mit Vergrößerung der Seitenwand, mit den GaAs/ AlAs-Spiegelpaaren, sowie der außen anliegenden Glas-schicht; aus [GSK⁺10]

Daneben wurden aus diesen Strukturen weitere Experimente in der Quantenoptik entwickelt, in Form von Quantenpunktlasern [RKM⁺09] [KMR⁺10] bis hin zu Resonatoren mit nur einem gezielt positionierten Quantenpunkt [HSD⁺10].

Eingehendere Studien an diesen und weiteren Proben zeigen darüber hinaus einen noch komplexeren Zusammenhang des Q-Faktors und des Türmchendurchmessers [RGK⁺09]. Für mögliche Anwendungen der Resonatortürmchen in Experimenten für Quantenelektrodynamik [RSL⁺04] [KLR⁺09] [RSM⁺09] [KRM⁺10] ist ein hoher Q-Faktor entscheidend. Messungen an den im Rahmen dieser Arbeit erzielten

Proben sowie an vergleichbaren Proben zeigen eine quasi periodische Oszillation des Q-Faktors [RGK⁺09]. Ein Faktor für diese Oszillation ist die Beschaffenheit der Seitenflanken des Resonatortürmchens. Da sich das AlAs beim Ätzprozess und anschließend am Sauerstoff der Luft wesentlich schneller und tiefer oxidiert, entsteht am Rand des Türmchens eine Art Kamm- oder Gitterstruktur. Die REM-Aufnahme aus [GSK⁺10] in der Abbildung 3.12 zeigt deutlich diese Struktur. Zudem erkennt man, dass durch den Prozess eine Glasschicht auf der gesamten Außenfläche des Türmchens entsteht.

Kapitel 4

GaInAs Quantenpunkte

Nach einer kurzen, allgemeinen Einführung in die Eigenschaften von Quantenpunkten und Quantenpunktsystemen, werden in diesem Kapitel die Methoden der Molekularstrahlepitaxie beschrieben, die nötig waren, um Quantenpunkte zu positionieren und langwellige InAs Quantenpunkte für Einzelquantenpunktexperimente realisieren zu können.

4.1 Eigenschaften

Quantenpunkte sind als System mit einem dreidimensionalen, elektronischen Einschluss ähnlich einem Atom. Wie in einem Atom sind die Elektronen im Quantenpunkt lokalisiert und besetzen diskrete Energieniveaus (Abb. 4.1). Elektron-Loch-Paare der umgebenden Matrix, die in das Potentialminimum der Quantenpunkte relaxieren, rekombinieren hier unter der Abgabe eines Photons. Die Quantisierungsenergie hängt von der Größe der Quantenpunkte bzw. vorwiegend von der Dimension mit der kleinsten Abmessung ab. Untersucht man ein Ensemble von Quantenpunkten, so spiegelt die Intensitätsverteilung der Luminesz die Größenverteilung

der Quantenpunkte wider. Da die Größe der Punkte statistisch verteilt ist, hat das PL-Spektrum eine Gauß-Form. Die Breite des Spektrums ist ein Maß für die Homogenität der Quantenpunkte. Das Spektrum eines einzelnen Quantenpunktes ist in der Form nur durch seine Lebensdauer bestimmt und ist damit lorentzförmig. Die Überlagerung vieler einzelner Quantenpunktspektren ergibt dann näherungsweise ein gaußförmiges Spektrum. Hier spricht man von der inhomogenen Verbreiterung.

4.2 Methoden der Molekularstrahlepitaxie von InAs Quantenpunkten

Bei Materialien mit unterschiedlichen Gitterkonstanten treten während des MBE-Wachstums Verspannungseffekte auf, die von entscheidendem Einfluss auf das Verhalten der Materialien und Strukturen sind. Dabei unterscheidet man drei Wachstumsmodi für gitterverspannte Materialien: den Frank-van-der-Merve-Modus, den Volmer-Weber-Modus und den Stranski-Krastanov-Modus [HS96].

Im Frank-van-der-Merve-Modus sind die Atome stärker an das Substrat als untereinander gebunden. Die Atome kondensieren auf der Kristalloberfläche und es wird eine Monolage nach der anderen abgeschieden. Die Verspannung wird bei metamorphen Wachstum durch die Monolagen hindurch nach oben abgebaut, wohingegen sie bei einem pseudomorphem Wachstum erhalten bleibt.

Ist die Bindung an das Substrat, z.B. durch Verspannungseffekte, schwächer und bewirkt die Bindung der Atome untereinander, so kondensieren die ersten Atome durch Nukleation auf der Substratoberfläche zu Clustern, man spricht vom Volmer-Weber-Modus, welche dann zu Inseln heran wachsen.

Die Kombination aus beiden Modi ist der Stranski-Krastanov-Modus. Zunächst bildet sich eine Benetzungsschicht aus einer oder mehreren Monolagen, bis die Verspannungseffekte so stark werden, dass ein Inselwachstum einsetzt. Für GaAs und InAs betragen die Gitterkonstanten $a_{GaAs} = 5,6533 \text{ \AA}$ und $a_{InAs} = 6,0583 \text{ \AA}$, das heißt die Materialien haben eine Gitterfehlpassung von ca. 7 %. Im Stranski-Krastanov-Modus für InAs-Quantenpunkte auf GaAs bildet sich erst eine zweidimensionale Benetzungsschicht von etwa 1,2 Monolagen (ML) [MHBL94] auf dem

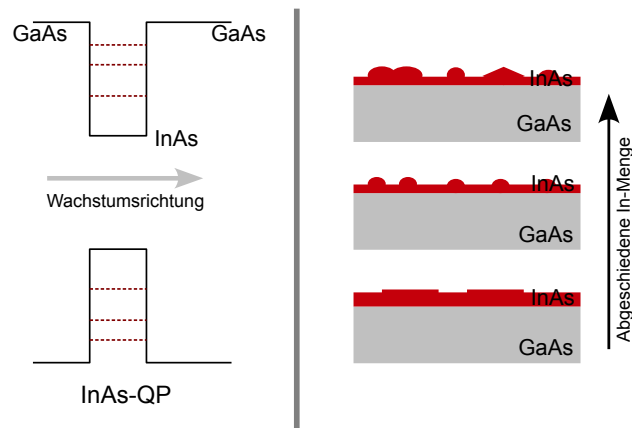


Abbildung 4.1: Links: Schema des Bandkantenverlaufs eines InAs Quantenpunktes in einer GaAs-Matrix. Rechts: Schema von InAs-Quantenpunkt-Wachstum auf GaAs.

Substrat (engl. wetting layer) (siehe Skizze Abb. 4.1). Durch die Gitterfehlانpassung von ca. 7 % ist die In-haltige Schicht druckverspannt. Das System strebt einen energetisch günstigeren Zustand an, und versucht somit die Verspannung abzubauen. Bei geeigneten Wachstumsbedingungen bilden sich 10-20 nm große Inseln, Quantenpunkte [MHBL94], [JHA98]. Eine Benetzungsschicht bleibt jedoch bestehen.

Abb. 4.2 zeigt die PL-Spektren für eine Probenserie von InAs Quantenpunkten. Der Probenaufbau besteht aus einer 200 nm GaAs-Pufferschicht, gewachsen bei einer Substrattemperatur von 590°C. Während der letzten 5 min wurde die Temperatur auf 510°C herabgesenkt und dann InAs abgeschieden. Für die einzelnen Proben der Serie war die InAs Wachstumszeit 12s, 15s, 18s, 24s, 30s, 36s. Dies entspricht bei der angestrebten Wachstumsrate nominell einer Materialmenge von 1,4 ML, 1,8 ML, 2,1 ML, 2,8 ML, 3,5 ML und 4,2 ML. Anschließend wurde die InAs Schicht mit 50 nm GaAs überwachsen, gefolgt von der gleichen Menge InAs wie zuvor. Die überwachsene InAs-Schicht dient der spektralen Untersuchung, während die Schicht auf der Oberfläche für morphologische Untersuchungen genutzt werden kann.

Die PL Spektren der Proben zeigen deutlich den Übergang vom InAs Quantenfilm bei 850 nm Wellenlänge und einer Linienbreite von nur 11 meV für eine nominell abgeschiedene Materialmenge von nur 1,4 ML zu Quantenpunkten mit einer größeren Halbwertsbreite und einer Emissionswellenlänge von über 1000 nm. Für die Proben ab 1,8 ML, bei denen es zu Bildung von Quantenpunkten kam, zeigen die Spektren die typische inhomogene Verbreiterung mit Halbwertsbreiten von 60, 52, 50, 63, 117 meV.

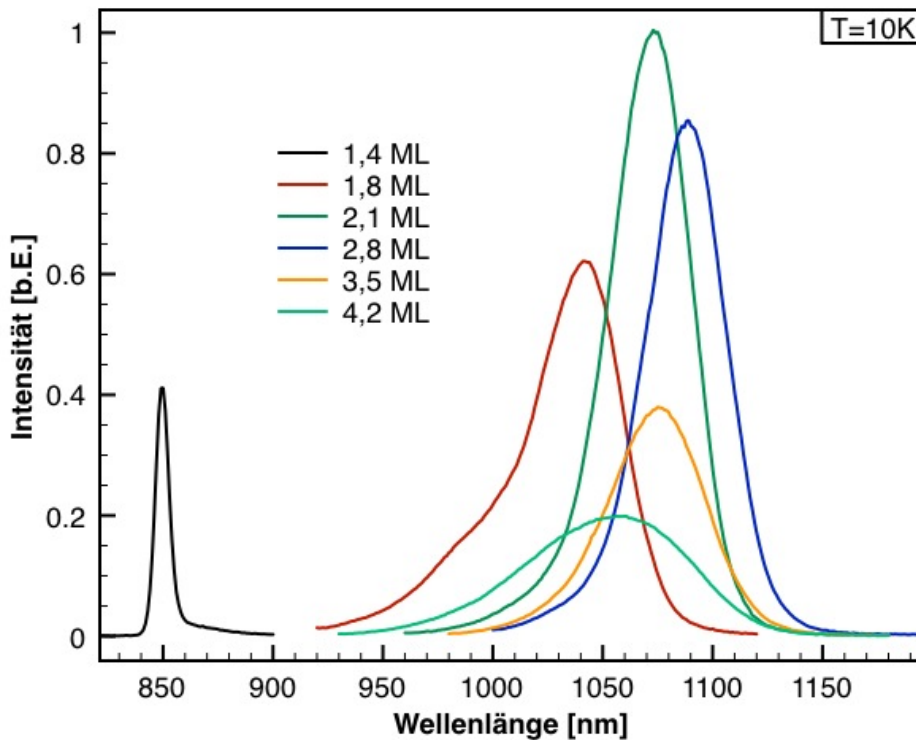


Abbildung 4.2: PL-Spektren einer InAs-Quantenpunkt Proben Serie für zunehmende Menge an abgeschiedenem InAs, beginnend bei einer Quantenfilmstruktur (schwarz), über Monolagenfluktuationen und dem Einsetzen von Quantenpunkt Wachstum und an der kritischen Schichtdicke (rot), dem Optimum (grün), bis hin zu bimodalen Quantenpunkten (gelb+ hell grün) aufgrund eines InAs-Überangebotes

Bemerkenswert ist die Zunahme der Intensität und Emissionswellenlänge bei zunehmender Materialmenge bei einer gleichzeitigen Abnahme der inhomogenen Verbreiterung. Durch die Erhöhung der angebotenen Materialmenge wird die Größenverteilung der Quantenpunkte in einem gewissen Rahmen gleichmäßiger. Im Rückschluss zeigt dies, dass durch weiteres Angebot an InAs die Flächendichte der Quantenpunkte nicht verändert werden kann. Nur der Durchmesser und die Größe der Quantenpunkte nimmt bei konstant bleibender Flächendichte zu.

Ab einem Punkt, in dieser Probenserie ab 2,8 ML, wird das Optimum überschritten. Zum Teil verschmelzen die Quantenpunkte und das System beginnt zu relaxieren. Die Intensität des PL Signals nimmt deutlich ab und verbreitert. Eine weiter Verschiebung zu größeren Wellenlängen kann nicht mehr beobachtet werden. Stattdessen liegt das Maximum wieder bei kürzeren Wellenlängen. Die SEM Aufnahmen der Oberflächen verdeutlichen diese Beobachtungen. In Abb. 4.4 sind auszugsweise drei Proben dargestellt. Das Bild a) zeigt die Probe mit 2,1 ML und stochastisch verteil-

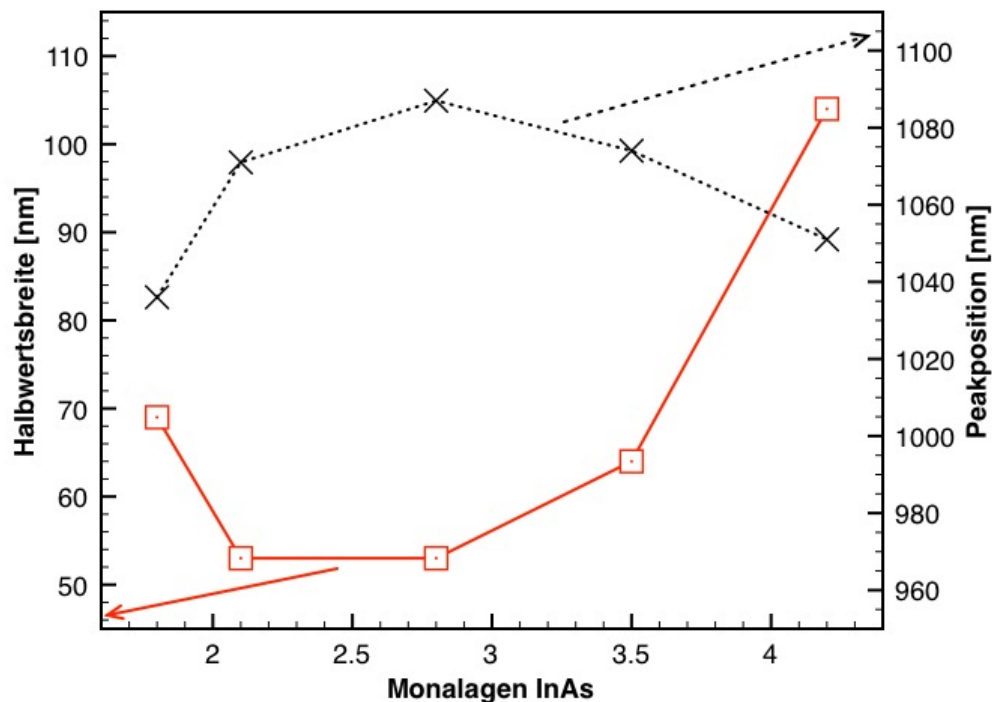


Abbildung 4.3: Die Halbwertsbreite und die Lage des Maximums (Peakposition) der PL-Spektren einer InAs-Quantenpunkte-Proben Serie aus Abb 4.2 dargestellt in Abhängigkeit der Monalagen InAs

ten Quantenpunkten mit Abmessungen von ca. 20 nm. Auf den Proben mit 3,5 ML (b) sind bereits einige Quantenpunkte auf über 80 nm Abmessung angewachsen. Und auf der Probe mit 4,2 ML (c) sind vorwiegend nur noch große Quantenpunkte erkennbar, was zu dem schwachen und sehr breiten PL-Signal korrespondiert. Zu große Quantenpunkte sind durch Versetzungsbildung optisch inaktiv und tragen nicht mehr zur Lumineszenz bei.

Die Größe (und damit auch die Emissionsenergie) der Quantenpunkte kann man im Falle von InAs auf GaAs in gewissen Grenzen durch die aufgewachsene Materialmenge kontrollieren. Die obere Grenze für die zu erreichende Wellenlänge stellt hierbei die Dicke dar, bei der die Quantenpunkte lateral verschmelzen und es zur Relaxation kommt, wodurch die Lumineszenzausbeute sehr stark abnimmt.

Um von diesen InAs-Quantenpunkten zu den beiden angestrebten Zielen der Positionierung der Quantenpunkte einerseits sowie der Übertragung in einen Wellenlängenbereich von $1,3 \mu\text{m}$ andererseits zu gelangen, muss man den Prozess des Kristallwachstums betrachten.

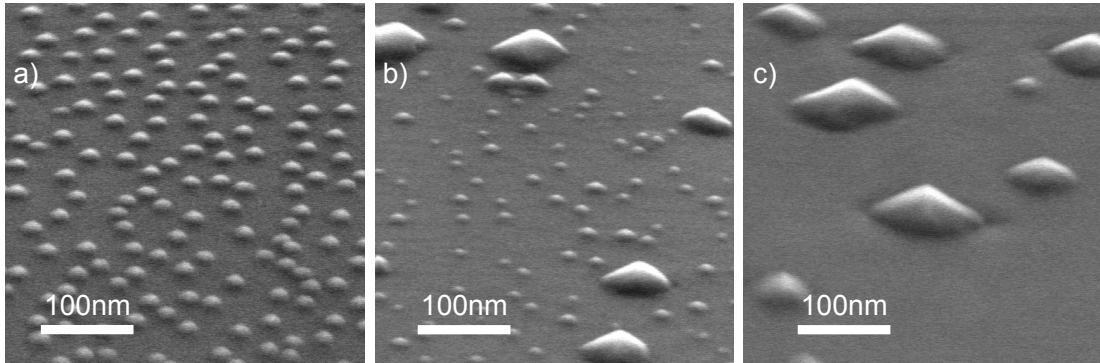


Abbildung 4.4: SEM Oberflächen Aufnahmen von InAs Quantenpunkte für nominal unterschiedlichen Mengen an InAs; a) 2,1 ML, b) 3,5 ML, c) 4,2 ML)

4.3 Chemisches Oberflächenpotential

Im folgenden Abschnitt wird kurz gezeigt, welche Parameter bei den Wachstumsprozessen an der Kristalloberfläche entscheidend sind für Eigenschaften wie Position und Größe der Quantenpunkte, und wie darauf Einfluss genommen werden kann.

Moleküle bzw. Atome die während des Kristallwachstums auf die Oberfläche treffen, werden nicht sofort in den Kristall eingebaut. Sie diffundieren zunächst auf der Oberfläche bis sie auf ein Nukleationszentrum treffen. Bei der Anlagerung an das Kristallgitter ist das Erreichen einer energetisch günstigen Lage entscheidend. Die freie Energie der Oberfläche wird beschrieben durch das chemische Potential, und das chemische Potential der freien Oberfläche im Gleichgewicht wiederum durch μ_0 . Berücksichtigt man die Verspannung an den Grenzflächen γ , Krümmung κ , sowie die Verspannungsenergie des Festkörpers, kann das chemische Potential geschrieben werden in der Form [Sal95]:

$$\mu(x) = \mu_0 + \Omega\gamma\kappa(x) + \frac{1}{2}S_{ijkl}\rho_{ij}(x)\rho_{kl}(x)\Omega \quad (4.1)$$

wobei der zweite Term unter Berücksichtigung des atomaren Volumens Ω , den Einfluss der Oberflächenenergie auf das chemische Potential beschreibt. Im dritten Term wird durch den Tensor S_{ijkl} und die Verspannungen ρ_{ij} und ρ_{kl} die Veränderung des chemischen Potentials durch die Verspannungsenergie des Festkörpers berücksichtigt.

Die Adatome an der Oberfläche streben einen energetisch niedrigen Zustand an und diffundieren in Bereiche mit niedrigem chemischen Potential. Die Geschwindigkeit

V der diffundierenden Oberflächenatome kann man mit Hilfe der Nernst-Einstein Beziehung

$$V = -\frac{D_s}{kT} \frac{\delta\mu}{\delta s} \quad (4.2)$$

erhalten. D_s ist die Diffusionskonstante an der Oberfläche, kT die thermische Energie und $\delta\mu$ die Veränderung des chemischen Potentials entlang einer Strecke δs . Je größer der Gradient $\frac{\delta\mu}{\delta s}$ des chemischen Potentials an der Oberfläche ist, desto schneller migrieren die Atome. Diese Migration erzeugt an Orten mit minimalem chemischen Potential eine Anlagerung von Atomen. Je größer die thermische Energie der Atome ist, desto weiter können diese im gleichen Zeitintervall auf der Oberfläche diffundieren. Zur Positionierung von Quantenpunkten mit niedrigen Dichten sind genau diese beiden Parameter entscheidend.

4.4 Niedrige Dichten für Experimente an einzelnen Quantenpunkten

Ziel der im folgenden Abschnitt beschriebenen Arbeiten war die Anpassung der Wachstumsparameter für die Positionierung von Quantenpunkten in Abständen im Bereich von Mikrometern. Geht man beispielsweise von einer Anordnung der Quantenpunkte auf einem quadratischen Gitter aus, so entspricht ein Gitterabstand von $1\ \mu\text{m}$ einer Flächendichte von $1 \times 10^8\text{cm}^{-2}$, wohingegen herkömmlich gewachsene Quantenpunkte Dichten von $1 \times 10^{10}\text{cm}^{-2}$ bis $1 \times 10^{11}\text{cm}^{-2}$ aufweisen[MHBL94][Sch07].

Die Flächendichte ist abhängig von den Wachstumsbedingungen beim Überschreiten der kritischen Schichtdicke, d.h. von der Temperatur, dem V/III-Verhältnis und besonders von der Beschaffenheit der Schicht, auf der die Quantenpunkte gewachsen werden. Durch diese Parameter kann man wesentlich die Migrationslänge der Teilchen, die auf die Oberfläche auftreffen, und damit die Flächendichte der Quantenpunkte beeinflussen. Eine kleine Migrationslänge führt dazu, dass die Teilchen schon kurz nach dem Auftreffen in das Kristallgitter eingebaut werden. So bilden sich an vielen Stellen Nukleationszentren, an denen Quantenpunkte entstehen, was bei gleicher Materialmenge zu relativ kleinen Quantenpunkten mit einer hohen Flächendichte führt. Ist die Migrationslänge groß, haben die Teilchen die Möglichkeit,

4.4. Niedrige Dichten für Experimente an einzelnen Quantenpunkten

sich über größere Entfernungen auf der Oberfläche zu bewegen. So können sie sich an vorhandenen Nukleationszentren anlagern, ohne selbst zu einem neuen Zentrum zu werden.

Um die Migrationslänge der In-Atome zu erhöhen, wurde in mehreren Schritten die In Wachstumsrate drastisch reduziert. Zeitgleich wurde die Substrattemperatur von bisher 510°C auf 530°C erhöht.

Abb. 4.5 zeigt REM-Oberflächenaufnahmen aus einer solchen Serie. Für eine fest-

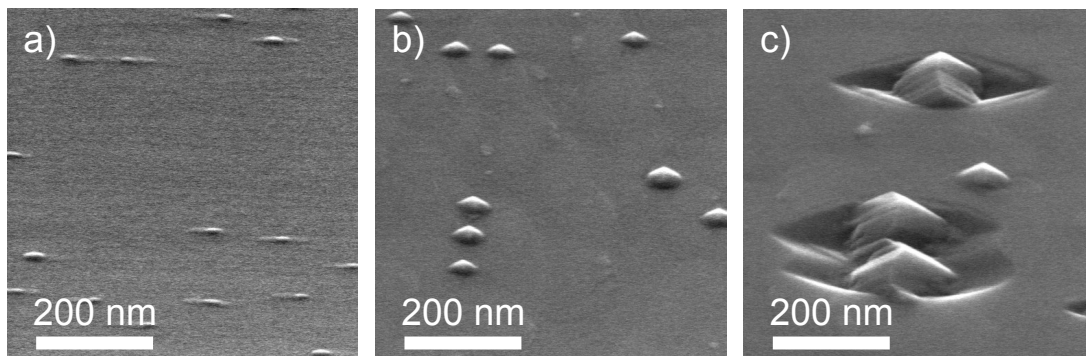


Abbildung 4.5: REM-Aufnahmen von InAs Quantenpunkte für niedrige Wachstumsraten

gelegte Wachstumszeit von 130 s wurde für mehrere Proben die Temperatur der In-Zelle von 720°C bis 740°C, variiert in Schritten von zwei bzw. fünf Grad. Aufnahme (a) in Abb. 4.5 zeigt die Probe, bei der gerade die kritische Schichtdicke überschritten wurde und erste kleinere Quantenpunkte sich bilden. Für Probe (b) sind Form und Größe wie angestrebt, während für Probe (c) bereits zu viel In abgeschieden wurde. InAs beginnt bereits zu relaxieren. Die Quantenpunkte bilden große, pyramidenförmige Strukturen, die durch die hohe Verspannung auf der Oberfläche wie in Gräben erscheinen. Durch diese Oberflächen-Quantenpunkte lässt sich recht einfach für die vorgegebene Wachstumszeit, durch Vergleich der SEM Aufnahmen, die optimale Wachstumsrate einstellen und reproduzieren.

Für die weitere Reduzierung der Dichte wurde die Substrattemperatur von 510°C zunächst auf 520°C und dann auf 530°C erhöht. Diese Werte sind nicht beliebig herausgriffen, sondern ergeben sich durch zwei Randbedingungen. In vorangegangenen Arbeiten wurde eine Substrattemperatur von 510°C für InAs und GaInAs Quantenpunkte als zuverlässiger Wert ermittelt, bei dem die angestrebten Ergebnisse reproduzierbar erreicht werden konnten. Die obere Grenze ist die Temperatur, bei der In beginnt, von der Oberfläche des Substrats zu desorbieren. Diese liegt knapp über 530°C. Das Ergebnis ist deutlich in Abbildung 4.6 zu erkennen. Probe (a),

gewachsen bei einer Substrattemperatur von 510°C , zeigt wie die Serie zuvor noch eine relativ hohe Dichte von $1,3 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$. Mit zunehmender Substrattemperatur nimmt die Dichte mit $7,8 \times 10^8 \text{cm}^{-2}$ für Probe b und nur noch $< 3,5 \times 10^8 \text{cm}^{-2}$ für Probe c ab.

Neben den gerade beschriebenen Wachstumsparametern, Wachstumsrate und Sub-

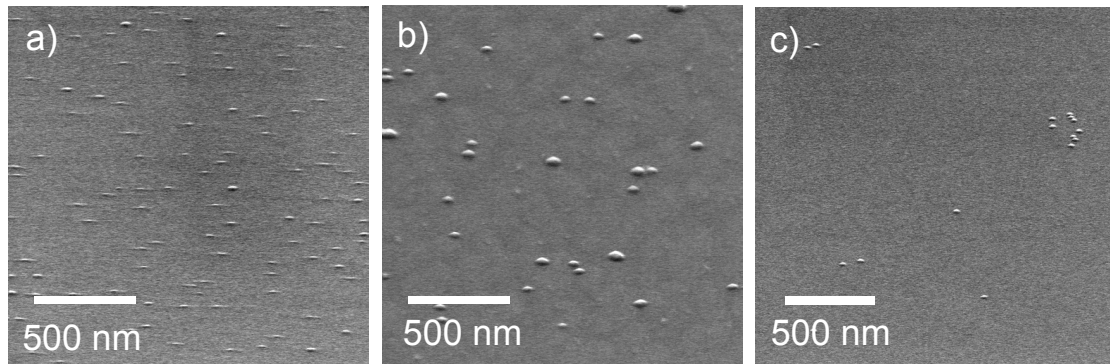


Abbildung 4.6: REM-Aufnahmen von InAs-Quantenpunkten Serien zur Anpassung der Wachstumsraten; a) $1,3 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$, b) $7,8 \times 10^8 \text{cm}^{-2}$, c) $3,5 \times 10^8 \text{cm}^{-2}$,

strattemperatur sollte auch das III-V-Verhältnis erwähnt werden. Als III-V Verhältnis bezeichnet man die Relation zwischen der beim Wachstum angebotenen Materialmenge an Gruppe-III und Gruppe-V-Elementen. Das III-V-Verhältnis wurde stets durch Kalibrierungsproben mit AlGaAs/GaAs- und GaAs/InAs-Quantenfilmen optimiert. Mittels dieser Proben kann ein Arbeitsbereich für den As-Fluss ermittelt werden. Für die InAs-Quantenpunkte wurde hier stets die untere Grenze dieses Arbeitsbereiches gewählt, um die gewünscht niedrigen Dichten zu gewährleisten.

4.5 Spektroskopie an einzelnen (Ga)InAs Quantenpunkten

Um die Eigenschaften von Quantenpunkten eingehender untersuchen zu können, ist es notwendig, einzelne Quantenpunkte zu isolieren. Bei Proben mit sehr niedrigen Quantenpunkt-Dichten kann dies durch hochauflösende mikroskopische Methoden erfolgen, bei denen die Proben direkt, ohne weiteres Prozessieren verwandt werden

4.5. Spektroskopie an einzelnen (Ga)InAs Quantenpunkten

können. Doch reicht dies oft nicht aus. Es wurden etliche Methoden entwickelt, wie durch Prozessierung mit optischer- und / oder Elektronenstrahlithographie Quantenpunkte zur Untersuchung vereinzelt werden können. Die in der Arbeit beschriebenen spektrographischen Ergebnisse an einzelnen Quantenpunkten wurden an Proben mit Mesa-Strukturen gewonnen. Eine REM-Aufnahme einer solchen Probe ist in Abb. 4.7 gezeigt. Für die Mesa (lat. Tisch) Strukturen wurden durch Elektronenstrahlithographie Quadrate von 50 nm bis 1000 nm Kantenlänge definiert. Aufgedampftes Gold dient als Ätzmaske. Der anschließende nasschemische Ätzschritt führt zu einem unterätzen der Goldmaske. Es entstehen pyramidale Strukturen unterhalb der Goldmaske. Die verbleibende Goldmaske lässt diese wie kleine Tische erscheinen (Abb. 4.7). Die Quantenpunkte befinden sich bei den untersuchten Strukturen 50 nm unter der Oberfläche. Bei einer Quantenpunktdichte von 10^{10} cm^{-2} kann man für die kleinsten Strukturen abschätzen, dass im Mittel weniger als ein Quantenpunkt auf eine Mesastruktur entfällt.

Die Mesastrukturen wurden mittels hochauflösender Photolumineszenzspektrosko-

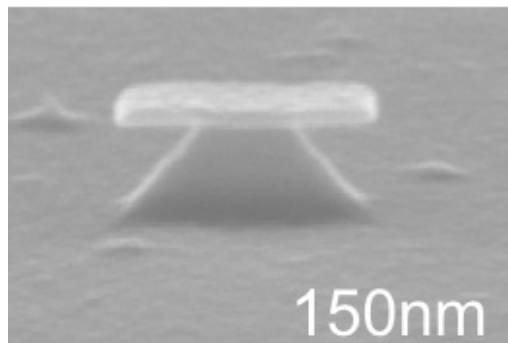


Abbildung 4.7: REM-Aufnahme einer Mesa Struktur mit InAs Quantenpunkt in einer GaAs Matrix

pie untersucht, womit man im Stande ist, durch entsprechende Mechanik und durch Verwendung von Mikroskopobjektiven einzelne Mesa gezielt zu betrachten (aufgenommen als mikro PL = μ -Pl. Abb. 4.8 zeigt ein solche Spektren von InAs Quantenpunkten mit GaInAs Deckschicht, aufgenommen an einer Mesa mit einer Kantenlänge von 500 nm für verschiedene Anregungsleistungen. Deutlich zu erkennen ist der Grundzustand bei 977,5 meV. Für höhere Anregungsleistungen werden dann ebenfalls höhere Zustände sichtbar. Das Inset in Abb. 4.8 zeigte exzitonische Emission mit einer Halbwertsbreite von 0,2 meV, was der Auflösungsgrenze des hier verwendeten Messaufbaus entsprach.

Der diskrete Grundzustand bei 977,5 meV ist das erste Indiz für die nulldimensionale

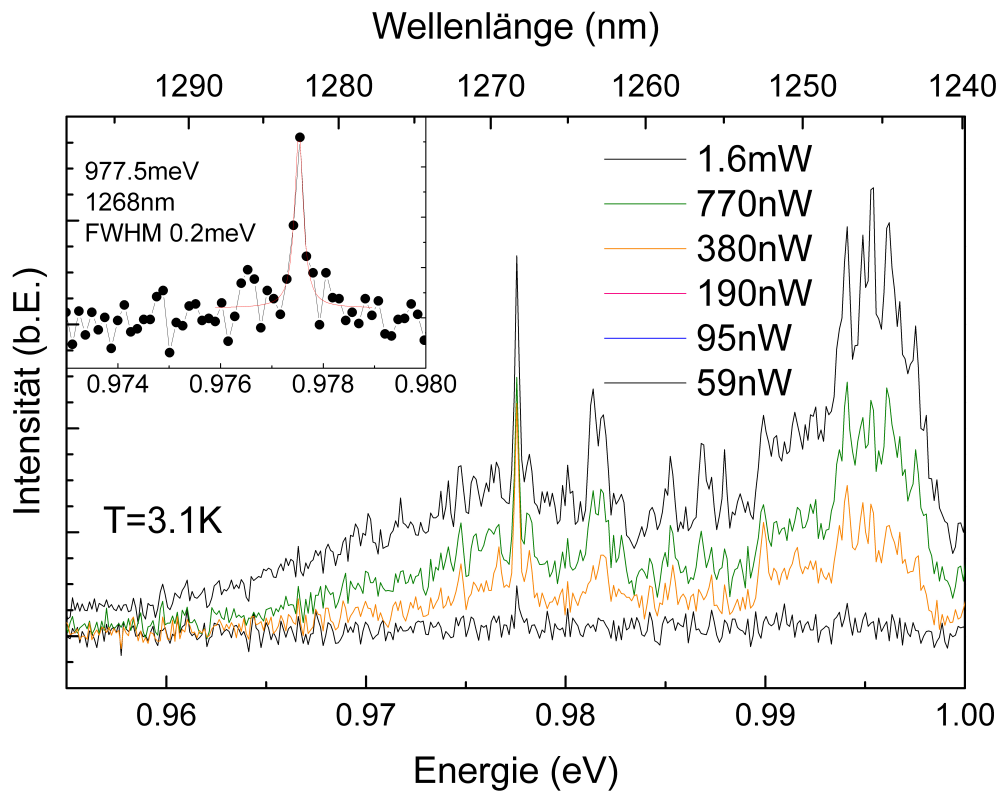


Abbildung 4.8: μ -PL Spektrum eines InAs Quantenpunkte für verschiedene Anregungsleistungen.

nale Eigenschaft des hier untersuchten Quantenpunktes. Die Zuordnung der Linien für höhere Anregungsleistungen zu den Zuständen im Quantenpunkt ist nicht immer eindeutig [Mic03]. Aus den μ -PL Aufnahmen lassen sich auf diese Weise nur der exzitonische und der biexzitonische Zustand aufgrund der unterschiedlichen Abhängigkeit von der Anregungsleistung identifizieren.

Abb. 4.9 zeigt im Inset Spektren einer weiteren Probe von InAs Quantenpunkten für verschiedene Anregungsleistungen. Für niedrige Anregungsleistungen von bis zu $28 \mu W$ ist nur der exzitonische Übergang zu erkennen. Ab $54 \mu W$ wird ein weiterer Übergang als Erhebung sichtbar. Die integrierte Intensität der beiden Peaks ist als Funktion der Anregungsleistung in Abb. 4.9 gezeigt.

Die integrierte Intensität kann als Funktion der Anregungsleistung für die gemessenen Daten in doppellogarithmischer Darstellung mit einer Geraden angepasst werden zu:

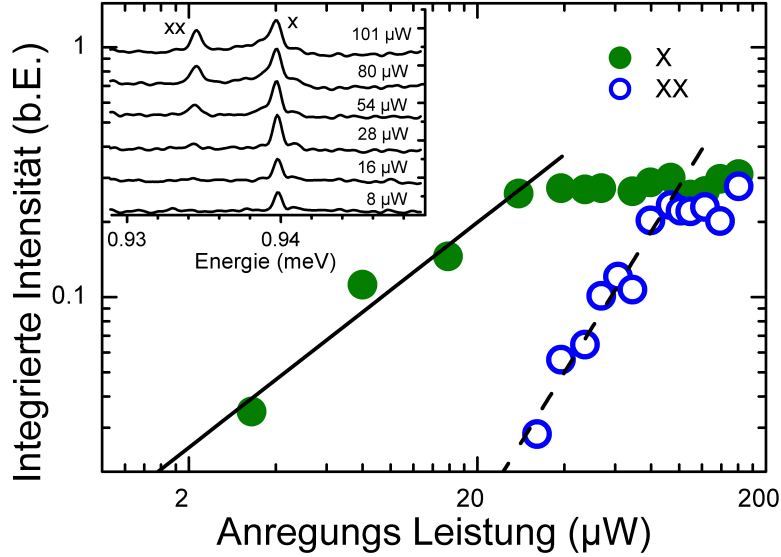


Abbildung 4.9: Integrierte Intensität von Exziton und Biexziton dargestellt in Abhängigkeit der Anregungsleistung

$$I_x \propto P^n \quad (4.3)$$

So erhält man für die beiden Geraden in Abb. 4.9 eine Steigung von 0,88 und 1,8 und damit $I_x \propto P^{0,88}$ und $I_{xx} \propto P^{1,8}$. Das Verhältnis der Anregungsleistung zur integrierten Intensität weicht hier zwar vor dem Idealfall von $I_x \propto P^1$ für exzitronische Bindung und $I_{xx} \propto P^2$ für biexzitronische Bindung ab. Vergleichbare Werte wurden schon für ähnliche Quantenpunkte in vorangegangenen Arbeiten berichtet [KMW⁺02]. Das Verhältniß $I_x/I_{xx} \sim 2$ ist ein Beleg für die exzitronische Eigenschaft des untersuchten Quantenpunktes [KMW⁺02] [AZZ⁺05].

In Rahmen dieser Arbeit wurde das Wachstum von InAs Quantenpunkten im GaInAsN Materialsystem systematisch untersucht und optimiert um Einzelquantenpunktemission unter 95 meV, d.h.mit Wellenlängen über 1300 nm zu erzielen. Gerade Quantenpunkte im GaInAs Materialsystem sind ein viel versprechender Baustein für optische Halbleiterbauelemente, der seit mehreren Jahren intensiv erforscht wird. Aufgrund ihres gut reproduzierbares epitaktisches Wachstum sind sie bestens geeignet für Laserdioden. Darüber hinaus hat das Feld der Quanten Information, Quantenoptik und

Quantenkryptographie stark an Bedeutung gewonnen [WIS⁺02] [IWK⁺07]. Die atomähnliche Eigenschaft eines Quantenpunktes ermöglicht dessen Einsatz als Quelle für gesteuerte [MKB⁺00] [SPS⁺01] und ununterscheidbare [SFV⁺02] einzelner Photonen. Durch das AlGaAs Materialsystem wird es so möglich diese Emittoren mit Resonatoren mit kleinem Modenvolumen und hoher Güte zu kombinieren wie sie im vorangegangenen Kapitel beschrieben wurden [RHG⁺07]. Diese Strukturen können sowohl optisch [KHS⁺08] wie auch elektrisch gepumpt betrieben werden [BRK⁺08]. Doch wie in Abb. 4.8 kann die Grenze von einer Emissionswellenlänge über $1,3\mu\text{m}$ bei Tieftemperatur mit reinen InAs Quantenpunkten nur schwer durchbrochen werden. Andere Ansätze hierfür wurden bereits in anderen Arbeiten untersucht [AZZ⁺05] [WKU⁺05].

Mit einem gezielten und fein abgestimmten Einsatz von Stickstoff im GaInAs System kann die Wellenlänge von InAs Quantenpunkten angehoben werden. Die hier gezeigten Spektren und deren Auswertung belegen, daß dieses Ziel erreicht wurde [SHF09] und neben der Laseranwendung von InAs/GaInAsN [MKS⁺07] [LSL⁺00] Quantenpunkte auch Anwendungen mit einzelnen Quantenpunkten möglich sein sollten. Um technologisch einzelnen Quantenpunkte besser in Bauteilen realisieren zu können wurde, wie im nächsten Kapitel dargelegt, die Technologie zur Positionierung eingehend untersucht und weiter entwickelt.

Kapitel 5

Positionierung von GaInAs-Quantenpunkten

Zur Verbesserung und Weiterführung der Ergebnisse für Mikroresonatoren mit GaInAs Quantenpunkten war das folgende Ziel, GaInAs-Quantenpunkte nicht mehr stochastisch verteilt sondern an definierte Positionen zu wachsen, um in der Folge die Resonatoren gezielt um einen einzelnen Quantenpunkt prozessieren zu können. Die nötigen Schritte für lithographische Prozessierung [Sün10], MBE-Wachstum und Abstimmung der beiden Techniken werden im folgenden Kapitel beschrieben.

5.1 Zielsetzung und Design

Die vorangegangenen Messungen an Proben mit stochastisch verteilten Quantenpunkten zeigen, dass die Anzahl und Position der Quantenpunkte im Resonator entscheidend sind. Nicht nur für Arbeiten im Bereich der starken Kopplung, sondern auch für Anwendungen als Einzelphotonenquellen ist es nötig, möglichst einen

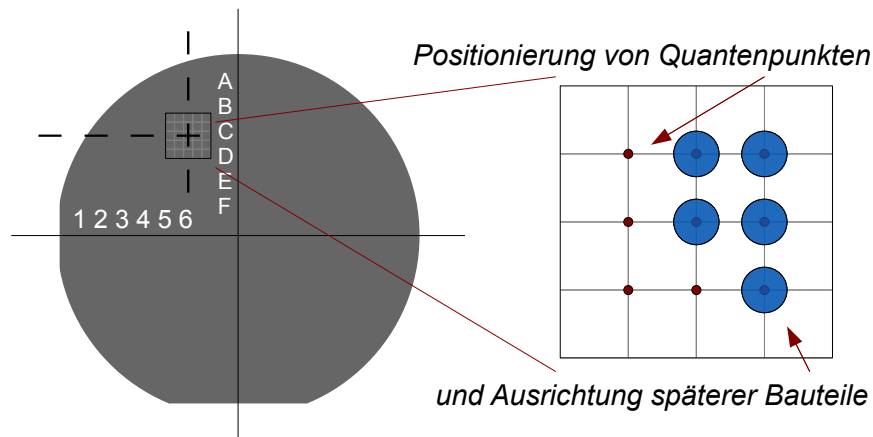


Abbildung 5.1: Skizze des Arbeitsziels von positionierten Quantenpunkten in definierten Bereichen auf dem Substrat, an denen in der Folge gezielt Bauteile ausgerichtet und prozessiert werden können

Resonator mit nur einem einzigen Quantenpunkt zu haben. So kann einerseits Absorption von umliegenden Quantenpunkten vermieden werden. Darüber hinaus ist es wichtig den Quantenpunkt möglichst gut mit dem Resonator zu koppeln. Sollte der Quantenpunkt nicht im Maximum der Resonatormode liegen, führt dies zu einer nicht resonanten Kopplung.

Bisher erfolgte dies durch Selektion der geeigneten Resonatoren auf einem Probenstück. Ziel der im Folgenden beschriebenen Arbeiten war die gezielte Positionierung von Quantenpunkten. Nach dem MBE Wachstum der Quantenpunkten und der überdeckenden Schichten, z.B. DBR-Spiegel, muss die Position für weitere Prozessschritte genau definiert sein. Die Resonatoren sollen dann in der Folge direkt um die Quantenpunkte prozessiert werden.

Die Anforderungen sind große Perioden mit mehr als $1 \mu\text{m}$ Abstand zum nächsten Quantenpunkt. Fehlbesetzungen, Ausbildung von doppelten Quantenpunkten und Ähnliches sollte vermieden werden. Für die Positionierung der Quantenpunkte sollten kleine Löcher von bis zu 50 nm in die Oberfläche strukturiert werden. InAs wird aufgrund der zu GaAs verschiedenen Gitterkonstanten bevorzugt an Kristalldefekten, d.h. den prozessierten Löchern, zu nukleieren.

Die folgenden Arbeiten gliederten sich in Lithographie und MBE-Wachstum. Während sich bisher ein Lithographieprozess erst an das abgeschlossene MBE-Wachstum anschließt, war es hier notwendig, MBE-gewachsene Proben in mehreren Schritten zu prozessieren, erneut mit MBE zu überwachsen und abschließend wieder zu prozessieren. Eine Abstimmung der lithographischen Arbeiten an die MBE war hierbei

eine der Herausforderungen.

Als erster Schritt wurden ganze zwei Zoll Wafer GaAs überwachsen, je nach Ziel mit nur 300nm GaAs Pufferschicht, oder mit einem halben DBR Resonator, d.h. einem DBR-Spiegel mit bis zu 30 Spiegelpaaren und einer Kavität der Dicke $\lambda/2$. Diese Wafer wurden dann im ersten Lithographieschritt prozessiert, um anschließend mit überwachsen und wieder prozessiert zu werden. Abbildung 5.2 zeigt einen schematischen Aufbau der Proben.

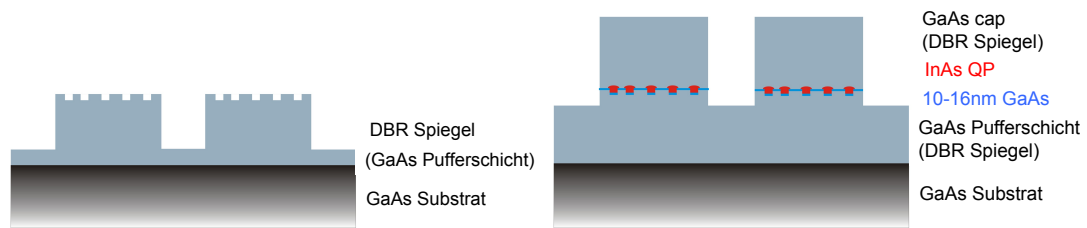


Abbildung 5.2: Querschnitt

5.2 Lithographische Strukturierung

Die lithographische Strukturierung erfolgte in mehreren Schritten und wurde in unmittelbarer Zusammenarbeit mit dem epitaktischen Wachstum erarbeitet. Es wurde der in der Folge beschriebene Prozess entwickelt, wobei jeder Schritt der Prozessierung permanent für das MBE-Wachstum überprüft und getestet wurde. Die lithographische Prozessierung ist eingehend in einer weiteren Arbeit [Sün10] behandelt. An dieser Stelle soll nur das Ergebnis zusammenfassend gezeigt werden.

1. optische Lithographie

- Aufbringen des Photolacks
- Optische Belichtung von Markern und großen Mesen
- Aufdampfen der Ätzmaske: 230 nm SiO_2
- trockenchemisches Ätzen der Marker und Mesen
- Abheben der Ätzmaske

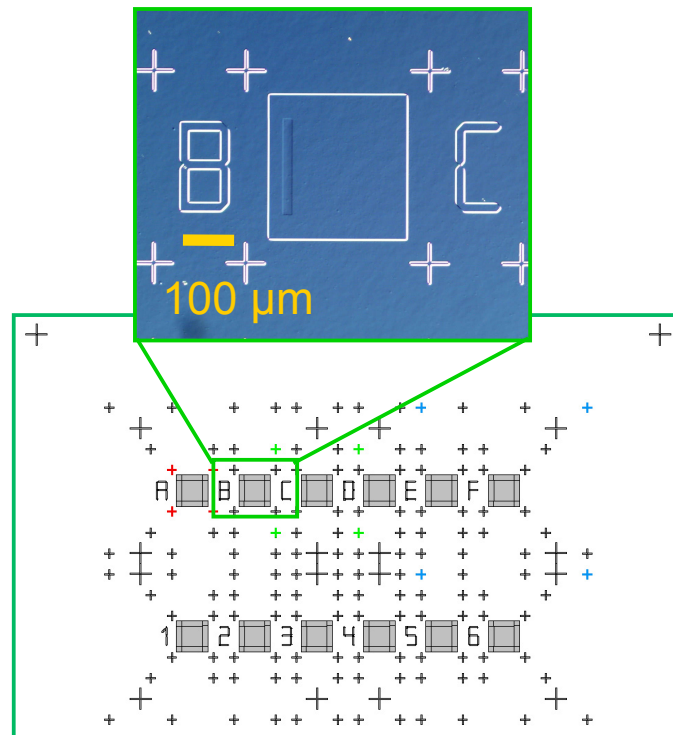


Abbildung 5.3: *Optische Maske zur Ausrichtung der Prozessschritte von Positionierten Quantenpunkten und späterem Bauteil, Bildausschnitt: Lichtmikroskopaufnahme eines Prozessfeldes*

2. Elektronenstrahl-Lithographie

- Aufbringen eines Photolacks
- Belichtung eines Lochgitters für die Positionierung mittels Elektronenstrahl (E-Beam)
- trockenchemisches Ätzen des Lochmusters
- Abheben des Photolackes
- nasschemische Reinigung und Lösung der Oxidationen

3. Reinigung

Damit man in der Lage ist, Bauteile gezielt um einen Quantenpunkt zu konstruieren, der sich an einem zuvor definierten Loch im Halbleitermaterial ausrichtet hat, benötigt man zur Orientierung mindestens drei Fixpunkte auf dem Halbleiter. Die beim Herstellungsprozess der GaAs-Wafer angefertigten Anschlüsse an den Seiten

sind dafür nicht ausreichend. Zur Orientierung und Ausrichtung der einzelnen Prozessschritte und Belichtungen wurde eigens eine Maske zur optischen Lithographie entworfen. Sie enthält Kreuze verschiedener Grösse als Marker, die ein Ausrichten in Elektronenstrahlbelichter (engl. Electron Beam, E-Beam) ermöglichen. Als Ätzmaske dient der Photolack und im unteren Teil von Abb. 5.3 sieht man den Aufbau der Maske mit den Markern bzw. Kreuzen und deren Anordnung. Der vergrößerte Ausschnitt zeigt eine lichtmikroskopische Aufnahme einer bereits prozessierten Probe. Die Kreuze resultieren aus der optischen Lithographie. Die Buchstaben sind das Ergebnis der nächsten Prozessschritte.

Durch hochauflösende Elektronenstahlithographie werden im zweiten Arbeitsgang Lochgitter prozessiert. Sowohl der Lochdurchmesser als auch die Lochperiode wurden zu Beginn auf einer Probe variiert, um eine Optimierung des Prozesses und der anschliessenden Epitaxie zu ermöglichen. Es wurde mit angestrebten Lochdurchmessern von 30 nm bis 100 nm sowie mit Gitterperioden von 200 nm bis 2000 nm gearbeitet. Neben den geometrischen Grunddaten mussten die Parameter der E-Beam ständig verbessert, angepasst und überwacht werden. Teilweise wurden aus diesem Grund auch Variationen der Belichtungsparameter auf einer Probe erzeugt. Variationen der Parameter mussten stets auf allen vier Vierteln des ganzen 2-Zoll-Wafers ausgeführt werden, denn für die folgende Epitaxie waren ebenfalls zur Optimierung größere Chargen notwendig. Der im Ausschnitt von Abb. 5.3 erkennbare senkrechte Balken innerhalb des Quadrates ist das Ergebnis der Elektronenstrahlithographie. Jedes Lochgitter enthält ein Moiré Gitter, das hier bereits im optischen Mikroskop sichtbar wird. Es dient zur bessern Justierung des Elektronenmikroskopes (SEM), da es auch hier einen wesentlich höheren Kontrast bietet als die einzelnen, wesentlich kleineren Löcher. Mittels REM wurden Abmessung und Beschaffenheit untersucht, angepasst und optimiert. Aufgrund der sehr geringen Abmessungen war eine ständige Kontrolle jedes Prozessschrittes notwendig. Von jeweils einem bewachsenen und prozessierten 2 Zoll Wafer wurde mindestens ein Viertel für Untersuchung und Prozesskontrolle herausgenommen. Für das weitere epitaktische Wachstum standen dann maximal drei Viertel zu Verfügung. Als Abschluss der Prozessierung, bzw. unmittelbar vor dem Wiedereinbau der Proben in das MBE-System, wurden die Proben noch gereinigt. Diese Reinigung bestand aus drei Schritten, beginnend mit Pyrilidon zur Entfernung von Lackrückständen. Anschließend wurden die Proben mit Schwefelsäure von möglichen organischen Rückständen gereinigt. Als letzter Reinigungsschritt wurde eine Salzsäure verwandt, um Oxidationen von der Ober-

fläche zu lösen. Die einzelnen Viertel der 2-Zoll-Wafer wurden dann wieder in das MBE-System eingebaut und überwachsen.

5.3 Epitaxie lithographisch prozessierter Proben

Die mit Markern und Lochgittern prozessierten Proben sollten in der Folge epitaktisch überwachsen werden. Ziel war es, defektfreie Halbleiterstrukturen mit Quantenpunkten, die sich an den Lochgittern ausrichten, zu realisieren. Sobald das Halbleitermaterial aus dem UHV-System der MBE entnommen wird, beginnt die Oberfläche zu oxidieren. Es bildet sich sehr schnell ein Oxidfilm an der Oberfläche. Für die Prozessierung ist diese Oxidschicht nicht hinderlich. Allerdings macht sie ein weiteres Kristallwachstum hoher Qualität mittels MBE unmöglich. Für nicht strukturierte III-V Halbleiterproben hat sich in der MBE-Technologie eine einfache Oxiddesorbtion bei hohen Temperaturen mit gleichzeitigem Stützdruck des entsprechenden Gruppe-V-Elementes etabliert. Für GaAs wird typischerweise eine Oxiddesorbtion in der MBE Kammer bei einer Probentemperatur von 630 °C und einem Arsenstützdruck von 1×10^{-7} Torr durchgeführt. Dieses Vorgehen ist allerdings hier nicht möglich. Bei erwähnten Temperaturen heilen die prozessierten Löcher, die im wesentlichen Defekte in der Kristalloberfläche darstellen. Die Konturen flachen ab und anstatt einzelner, gezielt definierter Löcher, entsteht eine mehr oder weniger raue Oberfläche [Hei04]. Bei dieser Art der Oxiddesorbtion wird zunächst die Oberfläche aufgeraut. Die ersten Lagen GaAs, die an der auf diese Weise behandelten Oberfläche anlagern, führen zu einer starken Aufrauung der Oberfläche. Eine entsprechende REM Aufnahme ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Hier sieht man, wie sich die Oberfläche der Probe entwickelt, wenn man nach einer Oxiddesorbtion von 630 °C unter As Stützdruck 10 nm GaAs aufwächst. Aus diesem Grund musste für das Überwachsen lithographisch prozessierter Proben ein anderes Verfahren etabliert werden.

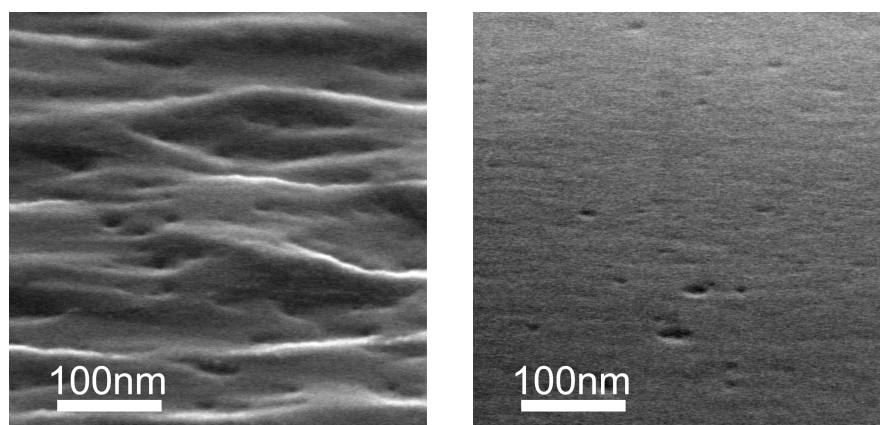


Abbildung 5.4: GaAs-Proben mit 300 nm epitaktisch gewachsenem GaAs, nach Entnahmen aus dem MBE-System, Lagerung an Luft und anschließendem weiterem epitaktischem Wachstum von 10 nm GaAs; links nach Oxidreinigung durch Erhitzen auf 630 °C unter Arsenstützdruck, rechts, nach Oxidreinigung mit atomarem Wasserstoff bei nur 400 °C

5.3.1 Epitaktische Methoden

Der Reinigung der prozessierten Proben durch Pyridin, Schwefel- und Salzsäure vor dem Einbau der MBE dient nicht nur der Entfernung von jeglichen organischen und Lackrückständen, sondern enthält durch die Salzsäure bereits eine Oxidentfernung. Diese Reinigung ist keinesfalls ausreichend für eine Oxidentfernung als Vorbereitung eines epitaktischen Wachstums. Aus diesem Grund wurde das MBE System im Rahmen dieser Arbeit durch eine Wasserstoffplasmazelle ergänzt. Die hier verwendete Zelle (Abb. 5.5) erhitzt einen Wolframdraht durch Elektronenbeschuss. So kann man Temperaturen von über 100 °C erreichen. An diesem heißen Draht wird Wasserstoff, d.h. Wasserstoffmoleküle, vorbeigeleitet. Die Wasserstoffmoleküle teilen sich thermisch und freie Wasserstoffatome bilden sich. Der Wasserstoff wird aufgebrochen - oder nach dem englischen Wort "to crack" für aufbrechen - gecrackt. Die freien Wasserstoffatome treffen auf die Probenoberfläche und lösen dort gebundene Sauerstoffatome. Auf diese Weise kann die Oxidschicht in UHV-Umgebung von der GaAs-Oberfläche entfernt werden [SK91] [CFH⁺93] [Hei04].

Die Zelle wird gemäß dem Funktionsprinzip als thermischer Cracker bezeichnet. Die Kontrolle der Cracker Temperatur konnte in dem hier verwendeten Model nur indirekt über den Emissionsstrom der Elektronenkanone eingestellt werden. Hierdurch entstehen drei miteinander verknüpfte Prozessparameter für den Betrieb der

5.3. Epitaxie lithographisch prozessierter Proben

Crackerzelle: der Kathodenstrom, die Beschleunigungsspannung und der Emissionsstrom.

Die Menge an freigesetztem Wasserstoff kann über ein Mikroventil gesteuert werden. Hier sind sowohl die Ventilstellung als auch der Hintergrunddruck der Kammer Operationsparameter. Die beschriebenen Parameter mussten nun angepasst, optimiert und reproduzierbar gemacht werden.

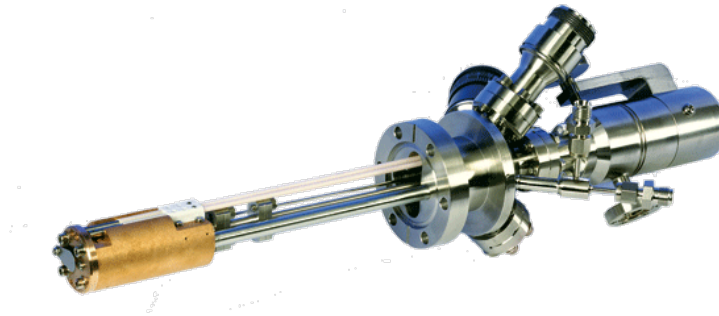


Abbildung 5.5: *photografische Abbildung der verwendeten Wasserstoffplasmaquelle [Gmb04]*

5.3.2 Ergebnisse

Ziel war eine möglichst vollständige Entfernung der Oxidverbindungen von der Oberfläche der Proben. Ausgehend von den Angaben des Herstellers für die maximalen Betriebsparameter wurde bei einem Kammerdruck von 1×10^{-5} Torr die Plasmakammer mit 1,3 A Kathodenstrom und 1,1 kV Beschleunigungsspannung betrieben. Hier stellte sich ein Emissionsstrom von 0,1 mA ein. Um Anlagerungen von Wasser an der Probe zu verhindern, wurde die Probe vor der Plasmareinigung auf 400 °C ausgeheizt. Erst als der Kammerdruck wieder unter 1×10^{-7} Torr gefallen war, wurde mit der Reinigung begonnen. Die Temperatur der Probe wurde dabei auf 400 °C gehalten.

Abbildung 5.6 zeigt drei Auszüge aus einer Serie von Proben, anhand derer die Reinigung durch aktiven Wasserstoff erprobt und optimiert wurde. Für die REM Aufnahmen von prozessierten Proben ist zu ergänzen, dass die Form der Löcher zum Teil nur scheinbar und zum Teil in Wirklichkeit von der eines Kreises abweichen kann. Die Abweichung von einer kreisrunden zu einer leicht dreieckigen Form

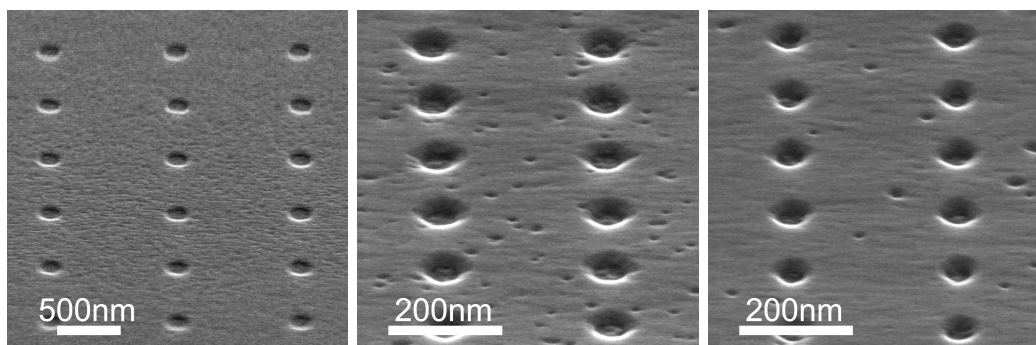


Abbildung 5.6: REM Aufnahmen von prozessierten Lochgittern, die nach einer nicht ausreichenden Reinigung durch Wasserstoffplasma mit 8 nm GaAs überwachsen wurden

kann mehrere Ursachen haben. Im Prozess der Elektronenstrahlolithographie war es bereits nicht möglich, völlig homogene Löcher herzustellen. Dieser Prozess wurde im Rahmen einer weiteren Arbeit eingehender untersucht [Sün10] und es hat sich gezeigt, dass es durchaus bei der Belichtung und insbesondere beim Ätzprozess zu leichten Abweichungen von der angestrebten Form kommen kann. Ein weiterer und wesentlich gravierender Effekt für die Verformung ist das Überwachsen. Für das Wachstum von GaAs auf GaAs gibt es Vorzugsrichtungen Kristallebenen entlang derer das Wachstum bevorzugt stattfindet [Hei04]. Hierdurch kommt es zu einer Elongation der Löcher. Aus den Kreisen werden Ovale. Ein dritter, und hier besonders starker Effekt, liegt in der Betrachtungsweise. Die Proben werden unter einem Winkel von 40° mit dem REM untersucht. Dies führt unweigerlich zu einer Verzerrung des Bildes. Kreise erscheinen als Oval und Ovale können als kreisrund erscheinen. Möchte man die Elongation genauer untersuchen, muss man eine Probe ein zweites Mal um 90° gedreht mit dem REM betrachten. Nur so kann man Aussagen über die tatsächliche Form der Strukturen treffen.

Um ein optimales Ergebnis der Reinigung zu erzielen, wurden sowohl die Wasserstoffmenge, als auch die Dauer der Reinigung in mehreren Serien stetig erhöht. Anschließend wurden alle Proben mit nominell 8 nm GaAs bei 510°C überwachsen. Das Ergebnis sieht man deutlich in den REM Aufnahmen der Abbildung 5.6. Auf der ersten hier gezeigten Probe ist bereits bei einer nicht allzu großen Auflösung eine starke Rauigkeit zwischen den Löchern zu erkennen. Dennoch ist der Effekt der Wasserstoffreinigung vorhanden. Die Probe wurde für 10 min bei einem Kammerdruck von 1×10^{-5} Torr dem aktiven Wasserstoff ausgesetzt. Die zweite Probe in der Mitte von Abbildung 5.6 zeigt eine deutliche Verbesserung. Nach 15 min bei einem Kammerdruck von 1×10^{-5} Torr sind erst bei hoher Auflösung des Elektronenstrahl-

5.3. Epitaxie lithographisch prozessierter Proben

mikroskopes noch Defekte auf der Oberfläche erkennbar. Für eine Reinigungszeit von 20 min bei einem Kammerdruck von 1×10^{-5} Torr nimmt die Anzahl der Defekte noch weiter ab. Das Ergebnis ist dennoch nicht zufriedenstellend. Quantenpunkte würden hier nicht nur an den geplanten und prozessierten Löchern, sondern auch an den Defektlöchern nuklieren.

Abbildung 5.7 zeigt REM-Aufnahmen zweier mit Löchern prozessierten GaAs-

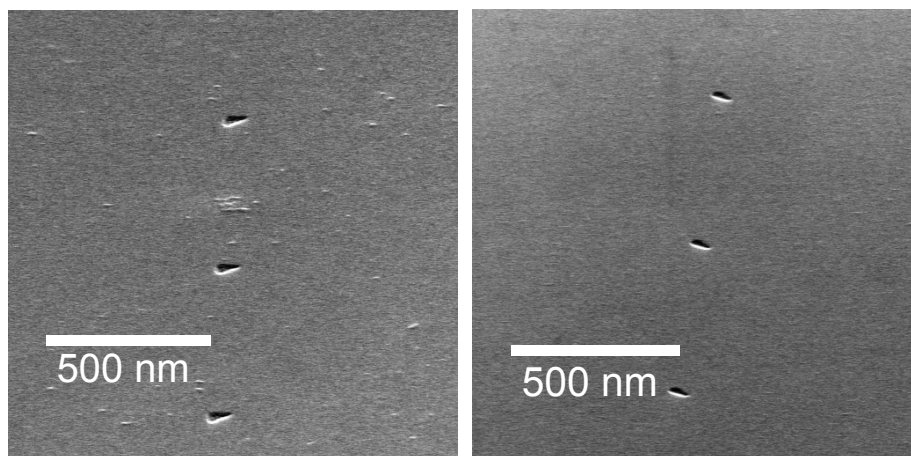


Abbildung 5.7: REM-Aufnahmen von überwachsenen Lochgittern nach verbesserter Wasserstoffplasma Reinigung; 30 min Reinigung bei (links) 1×10^{-5} Torr bzw. (rechts) 1×10^{-4} Torr

Proben einer weiteren Serie. Die linke REM Aufnahme Abbildung 5.7 zeigt eine Probe die bei 1×10^{-5} Torr für 30 min gereinigt wurde. Anschließend wurde auch diese Probe mit 8 nm GaAs überwachsen. Man kann hier trotz der Reinigung noch Defekte auf der Oberfläche erkennen. So wurde die Oxidreinigung weiter verstärkt, bis es bei einem Hintergrunddruck von 1×10^{-4} Torr und einer Reinigungszeit von 30 min möglich war, die zuvor strukturierte Probe mit 8 nm GaAs zu überwachsen ohne deutliche Defekte auf der Oberfläche finden zu können. Das Ergebnis sieht man in Abbildung 5.7 rechts. Nach Reinigung durch atomaren Wasserstoff konnten hier 8 nm GaAs auf eine zuvor gewachsene GaAs durch Epitaxie aufgebracht werden, während die Oberfläche glatt bleibt, in dem Sinne, dass keine Unebenheiten und Defekte im REM erkennbar sind .

5.4 Positionierte GaInAs Quantenpunkte

Löcher in der ebenen GaAs Probe stellen im Prinzip große Defekte des GaAs Kristallgitters dar. InAs mit einer von GaAs verschiedenen Gitterkonstanten bevorzugt beim epitaktischem Wachstum eben solche Defekte im Kristallgitter bei der Anlagerung. Das chemische Potential der Oberfläche wird durch die prozessierten Löcher verändert. Dieser Effekt soll im folgenden Schritt genutzt, werden um Quantenpunkte an den zuvor mit Löchern definierten Stellen gezielt zu wachsen und damit zu positionieren. Dabei müssen die Löcher so dimensioniert werden, dass die Änderung des chemischen Potentials an dieser Stelle die Wahrscheinlichkeit für die Anlagerung von InAs erhöht. Das Wachstum positionierter InAs-Quantenpunkte findet analog zu dem in Kapitel 4.2 beschriebenen Wachstum statt.

Wie im vorangegangenen Abschnitt beschrieben, wurden 2 Zoll GaAs-Wafer mit

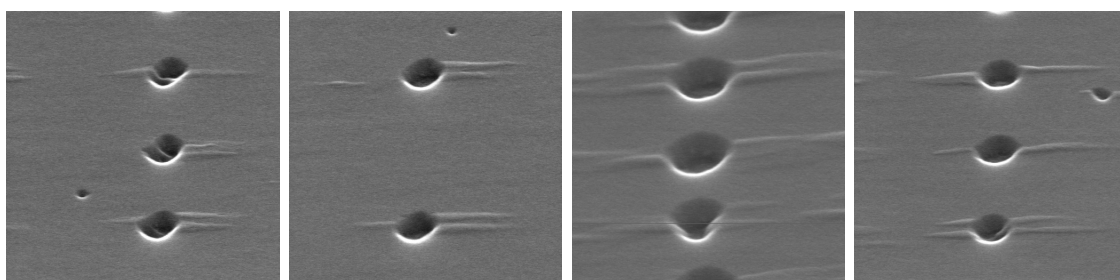


Abbildung 5.8: REM-Aufnahme mit ersten InAs-Anlagerungen an vorstrukturierten Lochgittern

einer 300 nm dicken GaAs Pufferschicht bewachsen, mit Lochgittern und Markern zur Ausrichtung prozessiert und wieder in das MBE System eingebaut. Nach der Oxidreinigung mittels Wasserstoff wurde eine Pufferschicht von 5 nm GaAs gewachsen. Anschließend wurde InAs abgeschieden. Es zeigte sich bald, dass die gängigen Wachstumsraten für InAs von ~ 6 ML/min nicht geeignet waren. Es fand nur eine geringe bis keine Ausrichtung an dem Lochgitter statt. Um die freie Migrationslänge zu erhöhen, wurde zum einen das III-V-Verhältnis verringert und der As-Hintergrunddruck reduziert. Zum anderen wurde die Wachstumsrate drastisch herabgesetzt auf 0,1 ML/min. Bei diesen sehr niedrigen Wachstumsraten ist eine Kalibrierung der Wachstumsrate mittels Messung des Molekularflusses nicht mehr möglich. Vielmehr wurden in regelmäßigen Abständen Serien von Kalibrierungsproben wie in 4.2 gezeigt gewachsen. In diesen Serien wurde der In-Fluss systematisch

5.4. Positionierte GaInAs Quantenpunkte

erhöht, bis für eine vorgegebene Wachstumszeit Quantenpunkt看stum einsetzte. Der so ermittelte Wert diente als Richtwert für das Wachstum der prozessierten Quantenpunktproben. Abbildung 5.8 zeigt REM-Aufnahmen aus einer Serie für positionierte InAs-Quantenpunkte. Eine erste Ausrichtung des InAs an den Störstellen bzw. Löchern ist deutlich erkennbar. Dennoch haben sich keine herkömmlichen Quantenpunkte ausgebildet. Vielmehr sind langgezogene Quantenpunkte mit einer Länge von mehr als 50 nm an den Kanten der Löcher entstanden. Dies kann mehrere Ursachen haben. Die Migrationslänge des In war noch zu gering. Die Oberfläche zeigt noch weitere Defekte, welche in der REM-Aufnahme nicht erkennbar sind. Die InAs-Menge ist zu niedrig.

Entsprechend den Ergebnissen wurden weitere Serien gewachsen, deren Ergebnis in

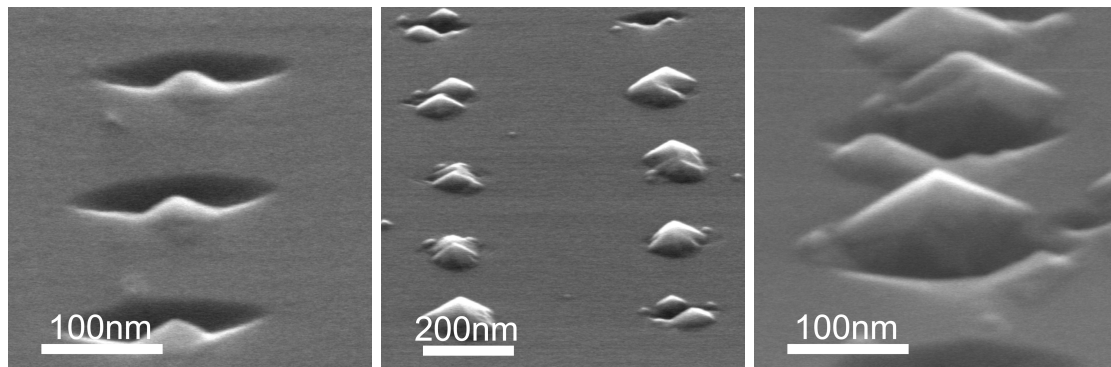


Abbildung 5.9: REM-Aufnahmen mit InAs-Quantenpunkten an vorstrukturierten Lochgittern.

Abbildung 5.9 gezeigt ist. Bei allen drei REM-Aufnahmen sieht man deutlich, wie sich die InAs Quantenpunkte bereits bevorzugt an den prozessierten Löchern ausrichten. Das erste Bild von links zeigt einen Bereich der Probe, an dem sich Quantenpunkte mit einem Durchmesser von weniger als 50 nm am unteren Rand der Löcher gebildet haben. Jedoch sind die Löcher mit einem Durchmesser von mehr als 120 nm noch sehr groß. Die mittlere Aufnahme zeigt eine weitere Probe der Serie, in der die abgeschiedene InAs-Menge erhöht wurde. Das Ergebnis zeigt deutlich, dass das Optimum bereits überschritten wurde. An den Löchern haben sich mehrere Quantenpunkte gebildet, die zum Teil miteinander verschmolzen sind. Die abgeschiedene InAs-Menge war zu groß. Auch ist die Abmessung der Löcher mit mehr als 150 nm Durchmesser erkennbar zu groß, was bereits auf eine zu starke Belichtung bzw. einen zu langen Ätzworgang im Prozess zurückzuführen ist. Die rechte REM-Aufnahme in Abbildung 5.9 zeigt eine weitere Vergrößerung dieser zur groß gewachsenen Quantenpunkte.

Die ausgewählten REM-Aufnahmen in den Abbildungen 5.8 und 5.9 zeigen, wie

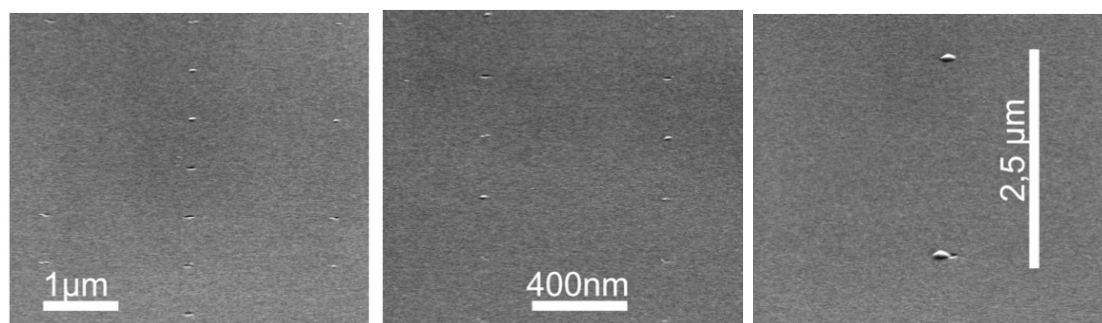


Abbildung 5.10: REM-Aufnahmen von positionierten Quantenpunkten mittels prozessiertem Lochgitter mit einer Dichte von $< 1,6 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$.

wichtig ein stets reproduzierbarer Prozess der Strukturierung und der Reinigung, aber auch eine Feinabstimmung der MBE-Parameter sind, um exakt nur einen Quantenpunkt pro Loch zu erhalten. Für die abgeschiedene In-Menge ist darüberhinaus wichtig, zu wissen, welche Dichte angestrebt wird. Bisherige Arbeiten [Hei04] [NSJP⁺02] fokussierten sich vornehmlich auf hohe Dichten, d.h. auf Abstände von wenigen 100 nm zum nächsten Quantenpunkt. Die Zielsetzung vorangegangener Arbeiten waren dreidimensionale Kristalle [NSJP⁺02] [KHS04] von InAs- bzw. GaInAs-Quantenpunkten. Der Ansatz zur Positionierung der ersten Lage von Quantenpunkten beruhte auch hier auf Elektronenstrahlithographie und einem Ätzschritt. Für die weiteren Lagen wurde die Verspannung der ersten Quantenpunktschicht genutzt, um auch die darüber liegenden wieder auszurichten. Dementsprechend sollte der Abstand der Quantenpunkte in der y-x-Ebene dem in der z-Richtung entsprechen und zwischen 105 nm und 200 nm betragen. Weitere Arbeiten verfolgten das Ziel einzelner Quantenpunkte, an definierten Positionen mit 400 nm Perioden [AWB⁺06]. Auch auf andere Materialsysteme wie InAs/InP-Quantenpunkte [SUH⁺05] wurde der Ansatz der Positionierung mittels Vorstrukturierung übertragen. Um positionierte Quantenpunkte in ein Bauteil wie die besprochenen Resonatortürmchen in Kapitel 3 zu integrieren, muss man zum einen den Abstand zwischen den nächsten Quantenpunkten auf die Größe der Bauteile anpassen. Zum anderen ist es entscheidend, nach dem Quantenpunktwachstum und dem Wachstum des Bauteils die Position des Quantenpunktes auch genau wiederzufinden um das Bauteil prozessieren zu können. Geht man von Durchmessern der Resonatortürmchen von 1 μm bis 4 μm aus, so sollten die Quantenpunkte Abstände von mindestens 0,5 μm bis 2 μm haben.

Es galt demnach sowohl die lithographischen Prozesse zu entwickeln und zu optimieren [Sün10] als auch die MBE Wachstumsparameter den Anforderungen anzupassen. Nimmt man quadratische Lochgitter mit der Annahme, dass alle Löcher mit genau einem Quantenpunkt besetzt werden und alle Quantenpunkte das gleiche Volumen haben, dann wird für einen Gitterabstand von 500 nm die vierfache Menge InAs benötigt als für einen Gitterabstand mit 1000 nm. Dementsprechend wurden die Wachstumsparameter weiter optimiert und angepasst. Abbildung 5.10 zeigt REM-Aufnahmen der ersten Serien mit positionierten Quantenpunkten. Auf dem ersten Bild von links ist das Lochgitter mit einem Abstand von $1,5\mu\text{m}$ zu erkennen. Gut die Hälfte der Löcher ist mit einzelnen Quantenpunkten besetzt. Die weiteren Aufnahmen von anderen Bereichen auf der Probe verdeutlichen das Ergebnis. Das mittlere Bild zeigt einen Bereich mit einem Lochgitterabstand von $1\mu\text{m}$. Auch hier sind noch nicht alle Löcher mit einem Quantenpunkt besetzt. Bemerkenswert ist, dass im Gegensatz zu den Aufnahmen in Abbildung 5.8 und 5.9, zum einen an den Löchern keine Mehrfachausbildung von Quantenpunkten zu beobachten ist, was darauf schließen lässt, dass die prozessierten Löcher in ihrer Größe hinreichend klein sind. Zum anderen haben sich zwischen den Löchern keine Quantenpunkte gebildet. Dies lässt wiederum auf eine sehr homogene und saubere GaAs Oberfläche schließen, deren Defekte vorwiegend durch die prozessierten Löcher bestimmt werden. Die rechte REM-Aufnahme in Abbildung 5.10 zeigt einen Ausschnitt aus einem Bereich mit einem Lochgitterperiode von $2,5\mu\text{m}$. Dies entspricht einer Quantenpunktdichte von $1,6 \times 10^7\text{cm}^{-2}$.

Aus den ausgewählten REM-Aufnahmen erkennt man, wie kritisch die Lochgröße, die Homogenität und Defektfreiheit der GaAs-Schicht, die Migrationslänge für In sowie die abgeschiedene InAs-Menge sind. In Abbildung 5.11 ist auf zwei REM-Aufnahmen gezeigt, was geschieht, wenn die prozessierten Löcher zu stark mit GaAs überwachsen werden. Die Löcher haben durch das Überwachsen ihre Form und Ausdehnung verändert und sind nun mehr oval oder gar zweigeteilt. An diesen länglichen Löchern können sich nun doppelte Quantenpunkte anlagern, sogenannte Quantenpunkt Moleküle [Hei04]. Dies kann gegebenenfalls sogar eine Anwendung finden oder Untersuchungen zu Wechselwirkung zwischen Quantenpunkten ermöglichen [BHW⁺06]. Im Rahmen dieser Arbeit sollten hingegen einzelne Quantenpunkte so positioniert werden, dass diese in der Folge gezielt in einen Mikroresonator eingebaut werden können. Wichtig hierfür ist die Genauigkeit der Positionierung bezogen auf den später zu prozessierenden Mikroresonator sowie der Abstand zweier Quantenpunkte. Um die Proben hinsichtlich dieser Eigenschaften besser untersuchen zu

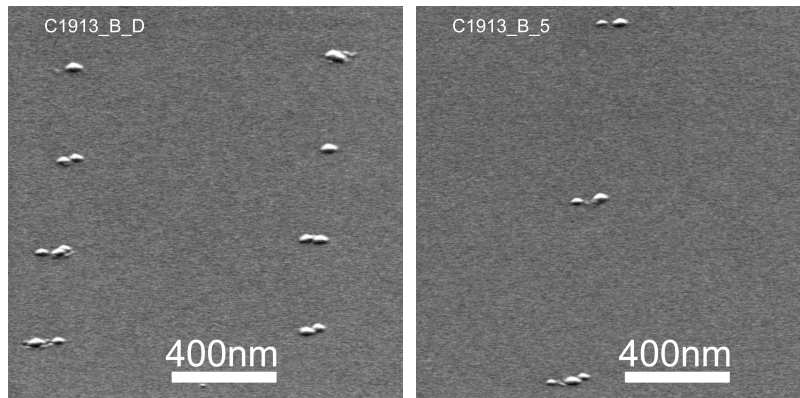


Abbildung 5.11: Positionierte Quantenpunkt-Moleküle, zwei REM-Aufnahmen der gleichen Probe; durch das Überwachsen genügend dicker GaAs-Sicht, entstehen aus kreisrunden prozessierten Löchern Ovale bzw. Doppellöcher an denen sich Quantenpunktmoleküle bilden. Links ein Lochgitterabstand von $1000\mu\text{m}$ und rechts von $2\mu\text{m}$

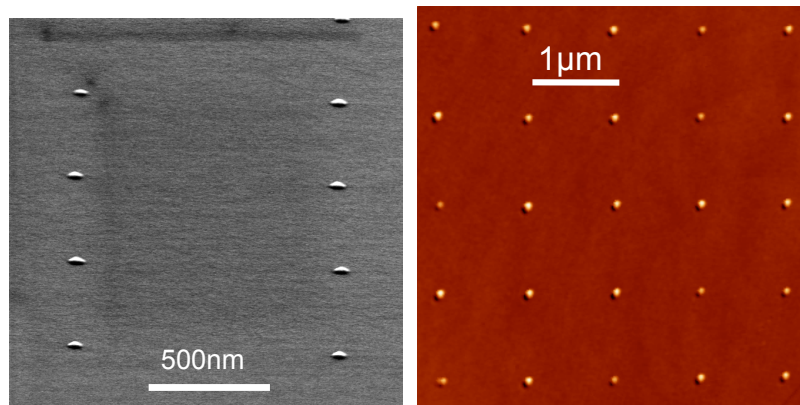


Abbildung 5.12: SEM + AFM Aufnahme: Ergebnisse positionierte InAs QP $1\mu\text{m}$ Periode

können, kam neben dem REM auch ein AFM zum Einsatz. Bei einer Wachstumsrate von $0,1\text{ ML}/\text{min}$, einer Substrattemperatur von 510°C und einer GaAs-Pufferschicht von 8 nm zwischen prozessierten Lochgittern und Quantenpunkten wurden die angestrebten Ergebnisse erzielt, wie sie in Abbildung 5.12 sowohl in einer REM- als auch einer AFM-Aufnahme gezeigt werden. Die REM-Aufnahme links zeigt noch deutlich die durch den Betrachtungswinkel bedingte Verzerrung, wohingegen die AFM-Aufnahme rechts die Quantenpunkte in der Ansicht direkt von oben darstellen kann. Die Quantenpunkte haben sich auf dieser Probe genau auf den prozessierten Löchern gebildet. In den Zwischenflächen sind keine Defekte oder Quantenpunkte erkennbar. Dieses Ergebnis konnte auch auf größere Lochgitterabstände übertragen werden, wie

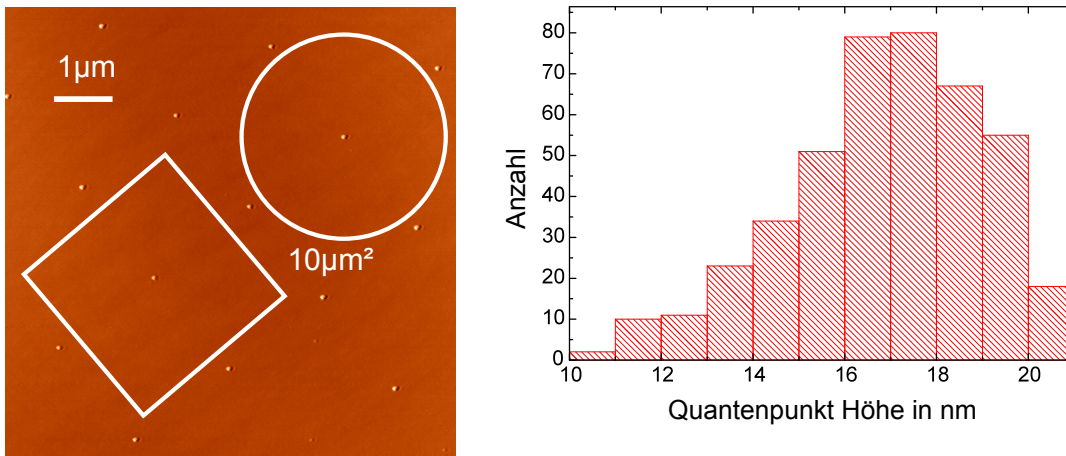


Abbildung 5.13: links) AFM Aufnahme: Ergebnisse 1 InAs QP auf 10 µm Probenfläche, rechts) Größenverteilung von positionierten QP, für eine Probe mit einer Lochgitterperiode von 1µm

die AFM Aufnahme in Abbildung 5.13 zeigt. Bei dieser Periode von 2µm befindet sich in einer Fläche von 10 µm² nur ein einzelner Quantenpunkt. Zur Veranschaulichung ist dies in Abbildung 5.13 eingezeichnet. Das macht diese positionierten Quantenpunkte besonders geeignet für den Einbau in Mikroresonatoren, um sicherstellen zu können, dass sich nur jeweils ein einziger Quantenpunkte in jedem Resonator befindet und mit diesem wechselwirken kann. Vorangegangene Arbeiten zeigten bisher nur Gitterperioden bis 400 nm [AWB⁺06] [Hei04] [NSJP⁺02] und keine derart genaue Besetzung der Löcher mit je nur einem Quantenpunkt.

Für eine bessere Auswertung der Effektivität der Positionierung wurden mehrere großflächige Aufnahmen mit dem AFM erstellt, von denen auszugsweise eine in Abbildung 5.14 gezeigt ist. Über 95% des Lochgitters sind mit Quantenpunkten zu besetzen. Nur knapp 12% der Quantenpunkte sind nicht positioniert, sondern an anderer Stelle nukleiert. In Abbildung 5.13 ist die aus den AFM-Aufnahmen gewonnene Größenverteilung der Quantenpunkte aufgezeigt. Die Abweichung von der zu erwartenden Gaußverteilung ist deutlich. Dies kann man darin deuten, dass die Quantenpunkte an Löchern d.h die positionierten sowie jene Quantenpunkte die an beliebigen Stellen dazwischen sitzen, unterschiedliche Größenverteilungen zeigen.

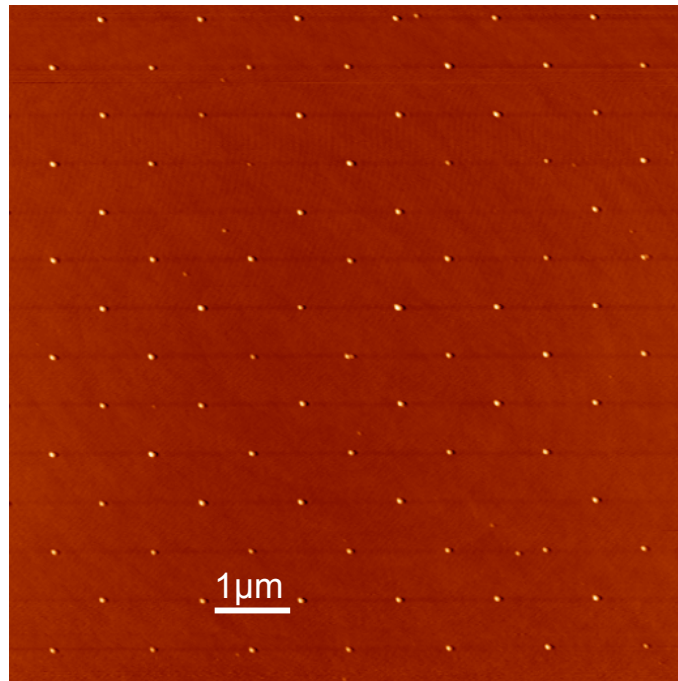


Abbildung 5.14: *AFM-Aufnahme: Ergebnisse positionierte InAs-Quantenpunkte bei 1 μm Lochperiode*

5.5 Positionierungsgenauigkeit

Die Zielsetzung zur Positionierung von Quantenpunkten im Rahmen dieser Arbeit bestand insbesondere darin, die positionierten Quantenpunkte in der Folge in Bauteile wie Mikroresonatoren [SSS⁺08a] [SHH⁺08] oder photonische Kristalle [SSS⁺08b] [Sün10] einbauen zu können. Das macht es notwendig, weite Abstände zwischen den Quantenpunkten zu erreichen und diese Quantenpunkte gezielt wiederfinden zu können, um die folgenden Prozesse und Bauteile genau ausrichten zu können.

In Abbildung 5.15 ist links die optische Maske gezeigt, mittels welcher Marker auf jedes 2-Zoll-Viertel prozessiert wurden. An diesen Markern wurde die Elektronenstrahlithographie der Lochgitter ausgerichtet und Felder mit unterschiedlichsten Lochgitterperioden von 500 nm bis 2,5 μm belichtet. Eine Aufnahme mit einem optischen Mikroskop in 100-facher Vergrößerung ist im rechten Bild der Abbildung 5.15 gezeigt. Die Lochgitter sind hier größtenteils sogar zu erkennen. Bei einem späteren Prozess von Bauteilen würden die Quantenpunkte im Halbleitermaterial verborgen liegen, d.h. eine Prüfung der Positionierungsgenauigkeit ist dann nicht mehr oder nur eingeschränkt möglich. In einem anderen Ansatz wurde gezeigt, dass auch noch

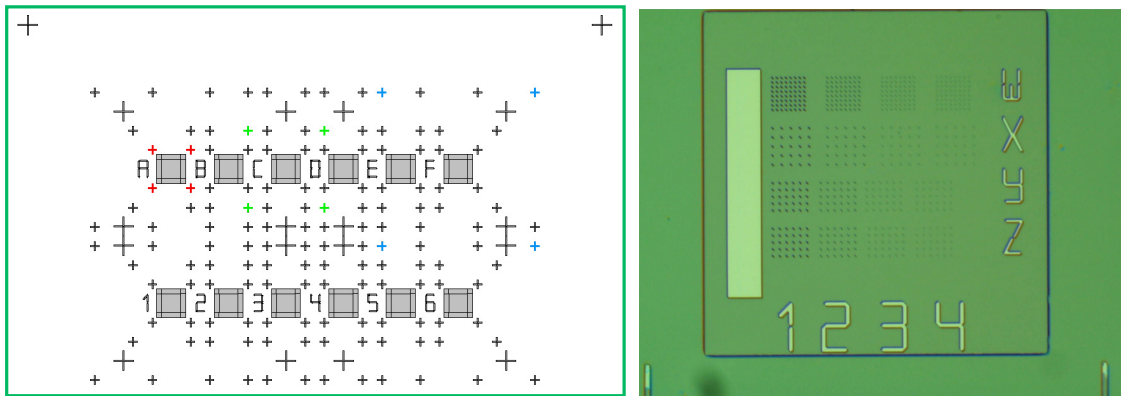


Abbildung 5.15: links) optische Maske zur Prozessierung von Markern zur Ausrichtung weiterer Prozessschritte - rechts) Aufnahme mit optischem Mikroskop eines mittels Elektronenstrahlolithographie belichteten Lochmusters

nach einem Überwachsen der InAs-Quantenpunkte mit einer GaAs-Schicht von wenigen Nanometern, diese noch mittels AFM wieder gefunden werden können. Die Erhebungen auf dem GaAs können reproduzierbar den InAs-Quantenpunkten zugeordnet werden. Grund sind die Verspannungen sowie die morphologischen Störungen aufgrund der Quantenpunkte. Dieses Prinzip mag ausreichend für Bauteile mit dünnen epitaktischen Schichtaufbauten sein, für Mikroresonatoren mit mehreren Mikrometern Schichtdicke ist es allerdings ungeeignet. Die Folge von GaAs und Al(Ga)As Schichten würde die Störungen nach und nach ausgleichen.

Aus diesem Grund wurden sowohl Proben mit Lochgittern als auch Proben, welche mit 8 nm GaAs und InAs überwachsen wurden, ein zweites Mal prozessiert. Auf ein Überwachsen der Quantenpunkte wurde verzichtet, um eine anschließende Betrachtung mit dem REM zu ermöglichen. Die lithographischen Schritte wurden bereits in einer weiteren Arbeit an weiteren Proben detaillierter untersucht und beschrieben [Sün10]. Hier sollen lediglich die Ergebnisse der Zusammenarbeit zwischen MBE und Lithographie nochmals herausgehoben werden.

Zur Prüfung der Positionierungsgenauigkeit wurden Goldlinien zwischen den Löchern bzw. Quantenpunkten aufgebracht. Hierfür wurden nach der ersten Prozessierung bzw. nach dem Quantenpunktwachstum ein Photolack aufgebracht. Dieser Lack wurde wiederum mittels Elektronenstrahlolithographie belichtet. Der Lack selbst diente hier als Maske für das Aufdampfen der Goldlinien. REM-Aufnahmen dieser Proben sind in den Abbildungen 5.16 und 5.17 dargestellt. Abbildung 5.16 zeigt ein Lochgitter mit einer Gitterperiode von $1\mu m$. In der linken Aufnahme sind

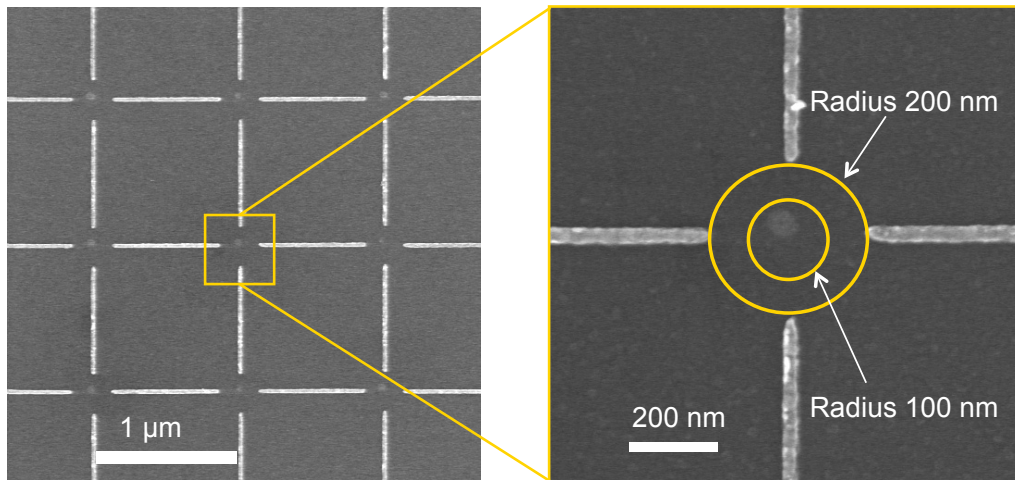


Abbildung 5.16: REM-Aufnahmen von Goldlinien, die nachträglich zwischen ein Lochgitter prozessiert wurden; im rechten Detailausschnitt erkennt man die Genauigkeit der Ausrichtung

die Goldlinien zwischen dem Lochgitter deutlich sichtbar. In der Detailansicht rechts ist dargestellt, mit welcher Genauigkeit die Goldlinien an das ursprünglich prozessierte Loch herankommen. Die Goldlinien selbst legen einen Kreis mit einem Durchmesser von 400 nm fest. Das im vorangegangenen Schritt prozessierte Loch liegt innerhalb eines Kreises mit 100 nm Radius. Ausschlaggebend für die Funktion eines späteren Bauteils ist die Lage des positionierten Quantenpunktes relativ zum Bauteil. Deswegen wurden auch positionierte Quantenpunkte mit Goldlinien versehen um die Positioniergenauigkeit abschätzen zu können, die man mittels der optisch belichteten Marker erreichen kann. Abbildung 5.17 zeigt REM-Aufnahmen von positionierten Quantenpunkten mit in einem zweiten Schritt aufgetragenen Goldlinien. Um die Quantenpunkte erkennen zu können, muss hier die Probe mit dem REM von der Seite betrachtet werden und kann nicht wie beim Lochgitter in Abbildung 5.16 direkt senkrecht von oben untersucht werden. In der repräsentativen Detailansicht rechts ist der maximale Abstand der Goldlinie zum Quantenpunkt mit 75 nm eingezeichnet. Eine statistische Analyse zeigt, dass 30 % innerhalb von 50 nm sowie 60 % innerhalb von 100 nm liegen [SSS⁺08a] [HBW⁺07] [DLS⁺08].

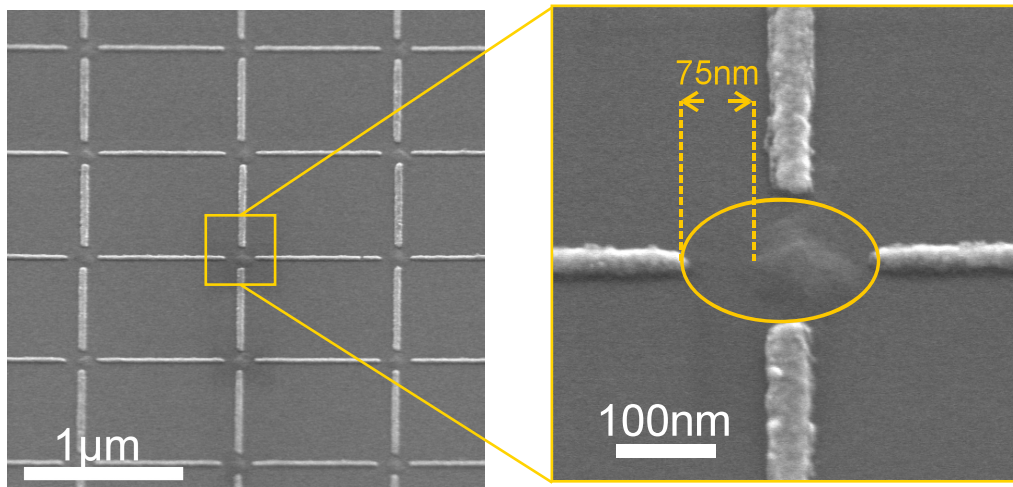


Abbildung 5.17: REM Aufnahmen von Goldlinien die zwischen positionierten Quantenpunkten prozessiert wurden, im rechten Detailausschnitt die relative Ausrichtung zum Quantenpunkt durch Kreise markiert

5.6 Optische Eigenschaften von positionierten Quantenpunkten

Neben der optimalen geometrischen Lage des Quantenpunktes in einem zukünftigen Bauteil, ist insbesondere auch dessen optische Eigenschaft wichtig. Gerade die Wechselwirkungen zwischen Licht und Festkörper sind von besonderem Interesse für die aktuelle Forschung. Quantenpunkte mit ihrer nulldimensionalen Eigenschaft spielen hier eine wichtige Rolle [RSL⁺04] [GSG⁺98]. Bevor demnach die hier vorgestellten, positionierten Quantenpunkte in Bauteile integriert werden können, muss ihre optische Eigenschaft untersucht werden. Hierfür wurden die Quantenpunkte wie in den vorangegangenen Abschnitten beschrieben, mittels prozessiertem Lochgitter positioniert und mit einer GaAs-Deckschicht von 50 nm überwachsen. Die nicht überwachsenen, rein auf der Oberfläche liegenden Quantenpunkte sind optisch nicht oder nur schwach aktiv und spiegeln nicht das Verhalten eines Quantenpunktes wider, der innerhalb einer Halbleitermatrix eingebettet liegt.

Die Graphen in Abbildung 5.18 zeigen Spektren von zwei Proben mit positionierten Quantenpunkten für verschiedene Anregungsleistungen. Deutlich erkennbar ist die relative große Halbwertsbreite dieser Spektren. Die Auflösung des hier verwendeten Messplatzes lag bei $\sim 1\text{meV}$. Die Spektren der Quantenpunkte zeigen allerdings

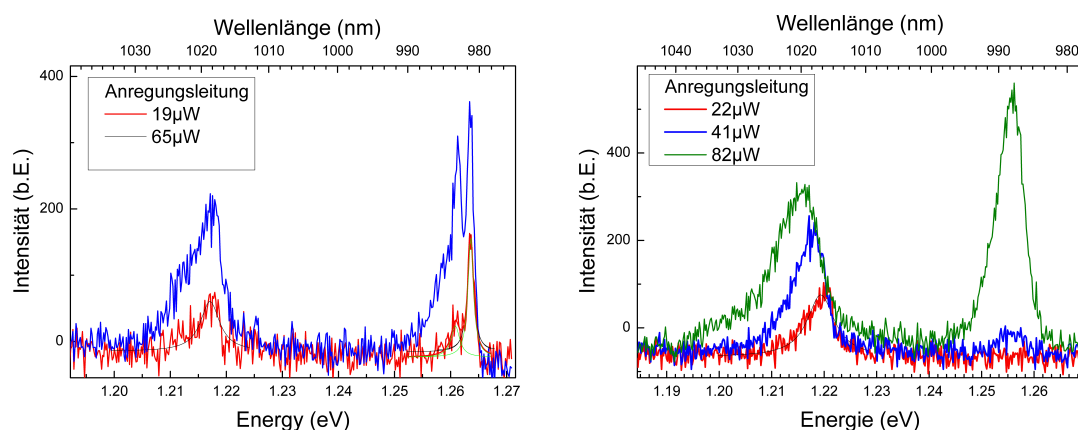


Abbildung 5.18: μ PL-Spektren von zwei Proben mit vorpositionierten InAs-Quantenpunkten

Halbwertsbreiten von mehr als 3meV . Dies bedeutet starke Verlustmechanismen in der Probe. Weitere Arbeiten, die unmittelbar an diese anschließen, könnten diese Eigenschaften jedoch noch leicht verbessern [SHS⁺09] [SHG⁺12].

Der rechte Graph in Abbildung 5.18 zeigt bei höheren Emissionsenergien, d.h. bei kleineren Wellenlängen ein wesentlich schärferes Signal mit einer Halbwertsbreite von nur $1,3\text{meV}$. Diese Emission stammt nicht von einem positionierten Quantenpunkt, sondern von einem der wenigen Quantenpunkte, die zwischen den prozessierten Löchern zu finden sind. Die kleinere Emissionswellenlänge deckt sich mit der Beobachtung, dass die Quantenpunkte außerhalb des Lochgitters kleinere Abmessungen haben.

Durch die PL-Untersuchung lässt sich auch eine Information über die Position der Quantenpunkte gewinnen. Abbildung 5.19 zeigt eine PL-Karte, die von einer Probe mit positionierten Quantenpunkten im Abstand von $2\mu\text{m}$ erstellt wurde. Für diese Messung wurde die Probe kontinuierlich in eine Richtung verschoben und PL-Spektren aufgenommen. In der Graphik sieht man nun nach rechts die Wellenlänge und noch oben den relativen Abstand aufgetragen. Der Fokus des anregenden Lasers hat mindestens einen Durchmesser von $4\mu\text{m}$. Dadurch werden immer zwei benachbarte Quantenpunkte zugleich angeregt. Die grünen Linien in Abbildung 5.19 markieren die Position der zu erwartenden Quantenpunkte.

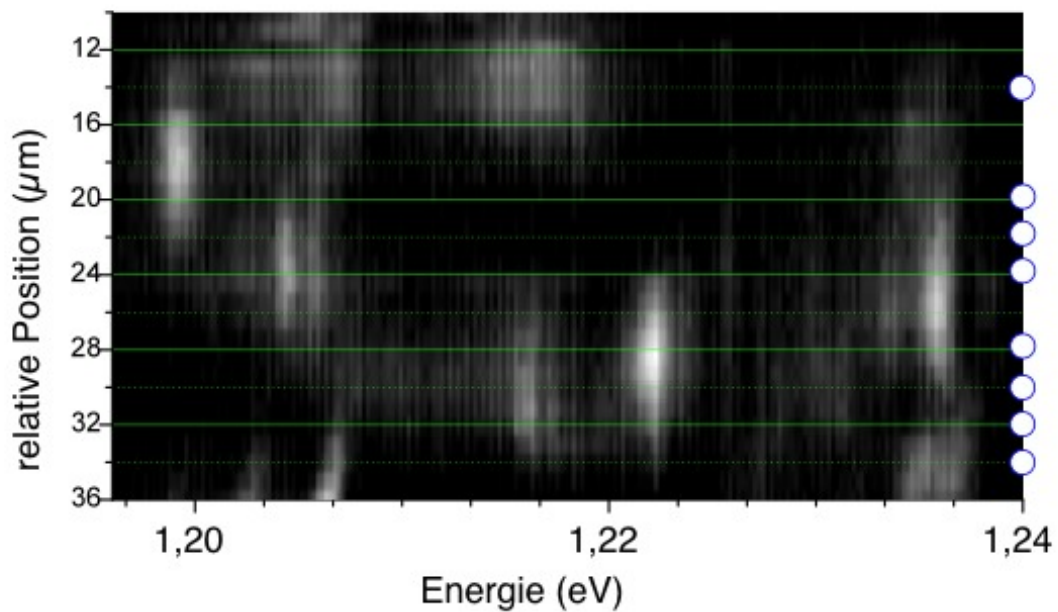


Abbildung 5.19: μ PL-Karte von positionierten Quantenpunkten mit $2\ \mu\text{m}$ Periode

5.7 Positionierte GaInAs-Quantenpunkte für die Bauteilintegration

Reine InAs-QP sind aufgrund ihrer spektralen Lage von ca 1100 nm bei 10 K für Untersuchungen an einzelnen Quantenpunkten nur bedingt geeignet für die Grundlagenforschung. Der Bereich zwischen 700 nm und 950 nm ist aufgrund der zur Verfügung stehenden Messtechnologie wesentlich besser für Untersuchungen von Wechselwirkung zwischen Licht und Materie geeignet. Aber nicht nur die Messtechnik, sondern auch Verlustmechanismen innerhalb der Halbleiter machen eine kürzere Wellenlängen für Grundlagenuntersuchungen wesentlich interessanter.

Im folgenden Abschnitt sollen einige Ausblicke gezeigt werden, um zu kleineren Wellenlängen zu kommen. Ein einfacher Weg von, InAs-Quantenpunkten mit Emissionswellenlängen von über 1000 nm zu kleineren Wellenlängen zu gelangen, ist der Übergang von InAs zu GaInAs Quantenpunkten [LRF⁺06]. Der Wechsel von InAs- zu GaInAs-Quantenpunkten, bringt mehrere Faktoren mit, die Einfluss auf die Emissionswellenlänge haben. Die Bandlücke nimmt mit steigendem Ga-Gehalt für GaInAs-Quantenpunkte zu, welches ein Beitrag für eine Blauverschiebung der Emission bedeutet. Hingegen nimmt der Unterschied der Bandlücken von Matrixmaterial GaAs-

zu InGaAs-Quantenpunkten mit steigendem Ga-Gehalt und somit auch das Einschlusspotential ab. Hierdurch werden die Zustände im Quantenpunkt zu kleineren Energien verschoben und somit nimmt die Emissionswellenlänge zu. Auch die Verspannung der Quantenpunkte nimmt mit zunehmenden Ga Gehalt ab, was direkten Einfluss auf Größe und das chemischen Potenzial hat [LRF⁺06] [Mic03]. Dennoch ist es möglich, mit dem hier beschriebenen Verfahren auch GaInAs-Quantenpunkte zu positionieren. Abbildung 5.20 zeigt zwei Aufnahmen von positionierten GaInAs-Quantenpunkten. Der nominelle Lochdurchmesser des prozessierten Lochgitters war

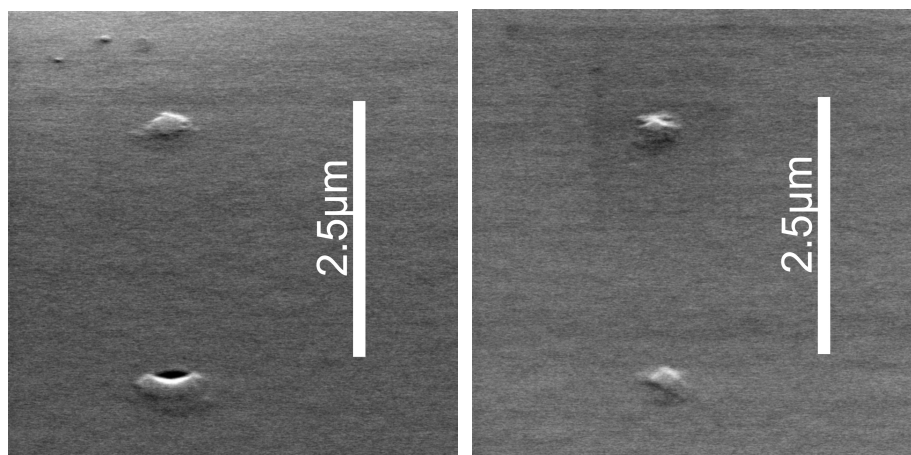


Abbildung 5.20: REM-Aufnahmen von positionierten GaInAs-Quantenpunkten.

hier 50 nm bis 70 nm. Die GaAs-Pufferschicht zwischen der strukturierten Oberfläche und den GaInAs-Quantenpunkten war 8 nm. Für das Wachstum der GaInAs-Quantenpunkte musste eine zweite Ga-Zelle verwendet werden. Die Wachstumsrate für GaAs-Pufferschichten war bei 800 nm/h. Für die GaInAs-Schicht wurde eine zweite Ga-Zelle verwendet. Die nominelle Wachstumsrate war $\sim 1,75$ ML/min. Die Wachstumsrate der In-Zelle lag wie bei den reinen InAs-Quantenpunkten bei nominell $\sim 0,1$ ML/min. Um einen Ga-Gehalt von weniger als 30% zu erhalten, wurde InAs für 4 min angeboten, während die Ga-Zelle kontinuierlich für 1 Sek geöffnet und für 40 Sek geschlossen wurde. So wurden erstmalig positionierte GaInAs-Quantenpunkte mit einem Abstand von bis zu $2,5\mu\text{m}$ realisiert [SSS⁺08a] während diese großen Abstände nur für reine InAs-Quantenpunkte gezeigt wurden [AWB⁺06] [KRS05] [WRK⁺08]. Diese Quantenpunkte erscheinen in den REM-Aufnahmen wesentlich flacher und weiter ausgedehnt, was auf die geringe Verspannung von GaInAs zu GaAs zurück zu führen ist.

Neben dem direkten Wachstum von GaInAs-Quantenpunkten ist es auch möglich, diese nach dem Quantenpunktwachstum durch Ausheilen bei hohen Temperaturen

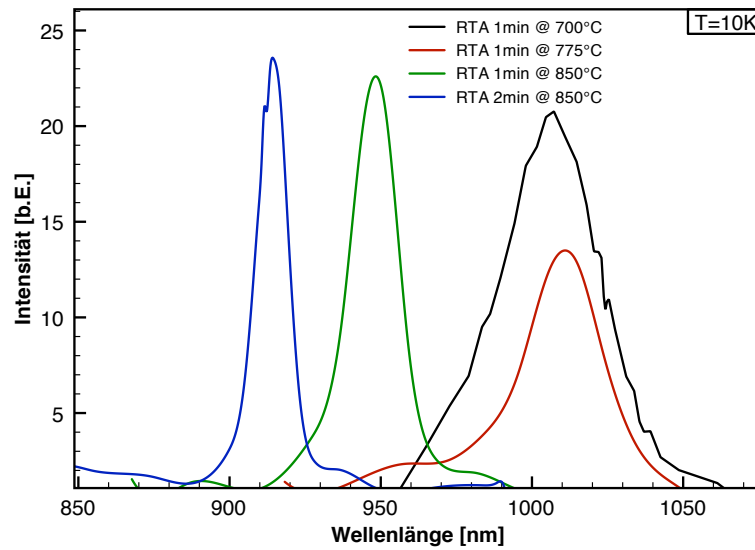


Abbildung 5.21: PL Spektren von InAs QP mit RTA

kurzwelliger zu verschieben [XWC⁺98] [MRM97]. Das Ausheilen kann sowohl noch in der MBE als Zwischenschritt während des Wachstums stattfinden oder bereits an fertigen Quantenpunktproben nach dem Wachstum. Abbildung 5.21 zeigt eine Serie von ausgeheilten InAs-Quantenpunkten. Das hier verwendete Ausheilverfahren nennt man nach dem englischen Ausdruck *Rapid Thermal Annealing* (RTA) schnelle thermische Ausheilung. Hierbei werden die Probenstücke innerhalb von 10 Sekunden auf bis zu 1000 °C erhitzt. Wendet man dieses Verfahren auf InAs-Quantenpunktproben an so diffundiert das In der Quantenpunkte in das umgebende GaAs Material. Hierdurch werden zum einen die Quantenpunkte verkleinert, zum anderen werden aus den InAs-Quantenpunkten GaInAs-Quantenpunkte. Für das hier gezeigte Beispiel wurde eine Referenzprobe mit InAs Quantenpunkten verwendet, die wie die vorstrukturierten Probe mit den identischen Wachstumsparametern von $\sim 0,1$ ML/min In-Wachstumsrate gewachsen wurde. Das Spektrum in Abbildung 5.21 zeigt deutlich, wie die Emissionwellenlänge durch Ausheilen weit unter 1000 nm verschoben werden kann.

Diese und ähnliche Techniken können verwendet werden, um die beschriebenen positionierten Quantenpunkte in den Bereich unter 1000 nm zu schieben [SHS⁺09]. In der Fortführung dieser Arbeit wurden sowohl diese, als auch weitere Ansätze untersucht, um die Eigenschaften der positionierten Quantenpunkte für die Integration in Bauteile weiter zu verbessern. Als erfolgreich erwies sich die Kombination zweier Techniken: Die erste Lage Quantenpunkte, welche sich direkt an den Löchern anlagern, werden noch in situ, d.h. im MBE-System vor dem weiteren Wachstum

wie oben gezeigt ausgeheilt. Darüber wird eine dünne Schicht GaAs gewachsen. Anschließend folgt eine weitere Lage InAs-Quantenpunkte. Hierbei wird die Verspannung der ersten Quantenpunkte genutzt; die zweite Lage Quantenpunkte ordnet sich dann verspannungsgekoppelt an die erste an [SHH⁺08]. Der Ansatz für verspannungsgekoppelte Quantenpunkte, wurde bereits vorher für positionierte Quantenpunkte genutzt [KHS04], wobei hier alle Quantenpunkte möglichst bei der gleichen Wellenlänge emittieren sollten. Für Anwendungen mit einzelnen Photonen, sollte sich hier die erste Lage von Quantenpunkten spektral deutlich von der zweiten unterscheiden [SHH⁺08] [HSD⁺10].

Neben der Integration in die hier beschriebenen Resonatortürmchen, wurden die hier beschriebenen positionierten Quantenpunkte in photonische Kristalle integriert, bzw. photonische Kristalle um diese herum prozessiert [SSS⁺08b]. Diese photonischen Kristall Resonatoren sind zentraler Bestandteil einer anderen Arbeit [Sün10].

Kapitel 6

GaInAsN-Quantenpunktsystem für Telekommunikationswellenlängen

Für Datenübertragung und Telekommunikationsanwendungen liegt ein Fokus auf Wellenlängenbereichen um $1,3\ \mu\text{m}$ und $1,55\ \mu\text{m}$, da die Transmissionsverluste für konventionelle Glasfaser im Bereich von $1,26 - 1,36\ \mu\text{m}$ und $1,46 - 1,625\ \mu\text{m}$ ein deutliches Minimum zeigen. Das macht es notwendig, auch Einzelphotonenquellen möglichst für diese Wellenlängen zu realisieren, möchte man diese zur Datenübertragung einsetzen. Deswegen ist es von aktuellem Interesse, neue Bauteile hierfür zu entwickeln sowie bereits erworbenes Wissen in diesen Wellenlängenbereich zu übertragen [WKU⁺05] [SHF09]. Laserdioden, basierend auf dem GaAs-System mit InAs Quantenpunkten oder GaInAsN Quantenfilmen, die bei Raumtemperatur im Bereich um $1,3\ \mu\text{m}$ emittieren, werden schon seit langem erforscht, entwickelt und eingesetzt. [CC95] [CH95]. Für Einzelphotonenanwendungen, die bei einigen 10 K oder knapp unter 100 K betrieben werden, konnte die Emissionswellenlänge nahe $1,3\ \mu\text{m}$ bisher nur vereinzelt erzielt werden [AZZ⁺05] [WKU⁺05]. Der Wellenlängenunterschied von 300 K auf 10 K für InAs Quantenpunkte in einer GaAs-Matrix beträgt etwa 100 nm. Es wurden bereits einige Ansätze untersucht, um einzelne Quantenpunkte mit Emissionswellenlängen von $1,3\ \mu\text{m}$ und $1,55\ \mu\text{m}$ bei Tieftemperaturen zu realisieren. Da

die Emissionswellenlänge direkt von der Höhe der Quantenpunkte abhängt, wurden durch Wachstum von bimodalen InAs-Quantenpunkten-Ensembles Einzelquantenpunktemissionen von knapp $1,3\ \mu\text{m}$ realisiert [WKU⁺05]. In einem anderen Ansatz wurden sehr langsame Wachstumsraten von wenigen Nanometern pro Stunde genutzt, um möglichst große Quantenpunkte bei einer möglichst niedrigen Dichte zu erreichen [AZZ⁺05].

In dieser Arbeit soll gezeigt werden, wie mittels der Einbindung von Stickstoff in das GaInAs System die Emissionswellenlänge von Einzelquantenpunkten deutlich in den Bereich von $1,3\ \mu\text{m}$ und darüber hinaus geschoben werden kann. Es werden verschiedene Ansätze untersucht und ein Weg erarbeitet, wie insbesondere für die Emission von einzelnen Quantenpunkten jenseits der 1300 nm Stickstoff im GaAs-Materialsystem eingesetzt werden kann.

6.1 Einbettung von Stickstoff in das InAs/GaInAs-Quantenpunktesystem

Um die Emissionswellenlängen von Quantenpunkten zu beeinflussen, wurde das Dot-In-A-Well-Design [KMW⁺02] entwickelt [LSL⁺00], das dank seiner Vorzüge weite Anwendung findet. Die Quantenpunkte werden nicht direkt mit dem Volumenmaterial in diesem Fall GaAs sondern mit einem Quantenfilm hier GaInAs überwachsen. Die Bandlücke dieses GaInAs-Quantenfilms ist kleiner als die des GaAs Volumenmaterials. Die Zustände im Quantenpunkt werden zu niedrigeren Energien, d.h. die Emissionswellenlänge des Exziton aufgrund des schwächeren elektrischen Einschlusses zu längeren Wellenlängen verschoben [LSL⁺00]. Abbildung 6.1 zeigt im ersten Bild von links schematisch den Bandkantenverlauf für InAs Quantenpunkte in einer GaAs Matrix und im zweiten Bild von links eine Dot-In-A-Well-Struktur mit einem GaInAs-Quantenfilm. Mit diesem Design von GaInAs-Quantenpunkten und einer GaInAs-Deckschicht können bei einem In-Gehalt von 20% und einer Schichtdicke von 8-10 nm Wellenlängen von 1300 nm Quantenpunktemission bei Raumtemperatur erreicht werden. In Kombination mit bimodalen oder sehr langsam gewachsenen Quantenpunkten wurden Wellenlängen von knapp 1300 nm [AZZ⁺05] [WKU⁺05] für

10 K gezeigt.

Als weitere Möglichkeit zur Realisierung von größeren Wellenlängen im GaAs-System dient Stickstoff als Gruppe V-Element, was bereits seit längerem in Anwendung und Bauteilen genutzt [SYY⁺00] wird. Durch den Einsatz von Stickstoff wird die Bandkante deutlich beeinflusst [KAR08], sodass die Realisierung von größeren Emissionwellenlängen möglich wird. Bisher war der Fokus hier auf Laseranwendungen gerichtet, für die entweder nur Quantenfilme oder Quantenpunkte mit hoher Dichte nötig sind [MKS⁺07]. Um Stickstoff für InAs Quantenpunkte zu nutzen, kann man grundsätzlich drei Modelle ansetzen, die in der Folge eingehender untersucht werden sollen. Der Bandkantenverlauf für diese drei Designs ist als Schema in Abbildung 6.1 gezeigt, beginnend von links mit dem Verlauf für reine InAs Quantenpunkte, Dot-In-A-Well-Quantenpunkte, einem zweiten Schema und InAs Quantenpunkte unter Beigabe von Stickstoff in drei weiteren Schemata.

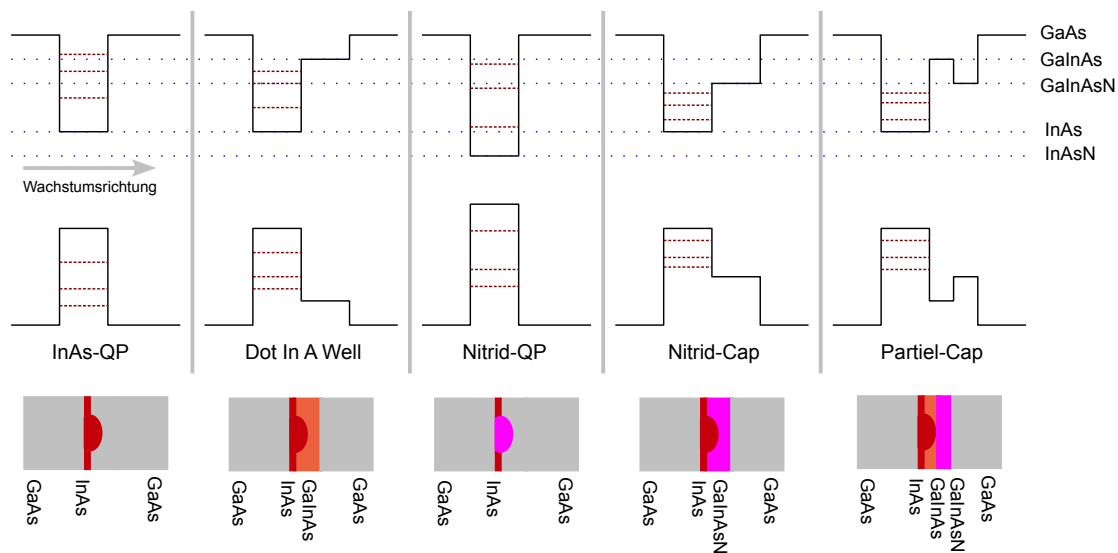


Abbildung 6.1: Schematischer Bandkantenverlauf für Konzepte zur Rotverschiebung der Emissionswellenlänge von InAs-Quantenpunkten, von links nach rechts: (Schema 1) InAs-Quantenpunkte in GaAs-Matrix; (Schema 2) InAs-Quantenpunkte mit GaInAs-Deckschicht bezeichnet als Dot In A Well Struktur; (Schema 3) InAsN-Quantenpunkte in einer GaAs-Matrix; (Schema 4) InAs-Quantenpunkte mit GaInAsN-Deckschicht; (Schema 5) InAs-Quantenpunkte mit partiellem GaInAs-Cap und anschließendem GaInAsN-Deckschicht

1. InAsN-Quantenpunkte - im Weiteren bezeichnet mit *Nitrid-QP*
InAs-Quantenpunkte werden mit Stickstoff als zweites Gruppe-V-Element ergänzt. Dies hat zur Folge, dass die Bandlücke im Quantenpunkt kleiner wird [KAR08] [Kud07] und folglich die Emissionswellenlänge des Exzitons größer wird im Vergleich zu reinen InAs Quantenpunkten⁸ Abb. (6.1, Schema 3).
2. InAs/GaInAsN-Quantenpunkte - im Weiteren bezeichnet mit *Nitrid-Cap*
Dies ist eine reine Erweiterung des bekannten Dot-In-A-Well-Schemas [UMZ⁺99] [LSL⁺00] um das Gruppe-V-Element Stickstoff, wobei InAs-Quantenpunkte mit einer GaInAsN-Deckschicht überwachsen werden (Abbl. 6.1 Schema 4).
3. InAs/GaInAs(N) Quantenpunkte - im Weiteren bezeichnet mit *Teil-Cap*
Dies ist eine Kombination der beiden vorangegangenen Schemata, wobei die InAs-Quantenpunkte in eine Deckschicht aus GaInAs/GaInAsN eingebunden werden (Abb. 6.1 Schema 5).

6.2 InAsN Quantenpunkte

Um den Einfluss von Stickstoff auf die Formation und Eigenschaften von InAs-Quantenpunkten zu untersuchen, wurden mehrere Proben mit jeweils zwei Quantenpunktschichten gewachsen. Die erste Lage zur optischen Charakterisierung wurde nach einer 200 nm GaAs-Pufferschicht aufgewachsen und unmittelbar mit 50 nm GaAs überwachsen. Darauf folgte eine zweite Lage von Oberflächenquantenpunkten zur morphologischen Untersuchung (siehe Kap. 4.2). Diese zweite Lage wurde unter identischen Wachstumsbedingungen gewachsen wie die erste. Bei allen folgenden Proben betrug die Substrattemperatur für das Wachstum der GaAs-Pufferschicht 590°C. Diese wurde jeweils rechtzeitig vor der ersten Quantenpunktschicht auf 510°C verringert und stabilisiert.

Abbildung 6.2 zeigt REM-Aufnahmen von konventionellen InAs- (a) und InAsN (b) Quantenpunkten im Vergleich. Für die InAsN-Quantenpunkte wurde das Ventil zur Plasmaquelle zeitgleich mit dem In-Shutter geöffnet. Die Leistung der Plasmaquelle betrug 120 W. Dies entspricht bei den verwendeten In-Wachstumsraten bei planarem Schichtwachstum einem Stickstoffgehalt von etwa 3% Prozent bei GaAs. Für beide

Proben wurden nominell 2,4 ML InAs bei einer Wachstumsrate von 10 ML/min abgeschieden.

Probe (a) zeigt typische InAs Quantenpunkte mit weitestgehend zu erwartenden

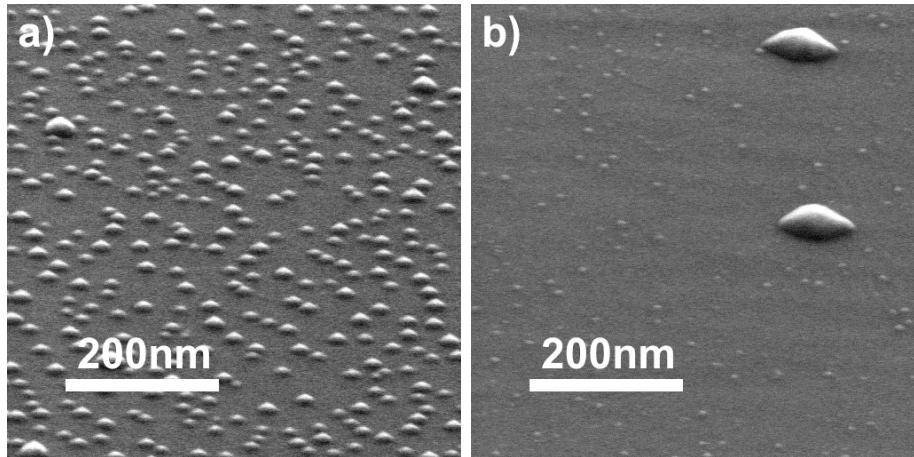


Abbildung 6.2: REM Aufnahme von (a) InAs mit flächigem Quantenpunktwachstum, einer Dichte von $3 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$ und nur wenigen deutlich größeren Quantenpunkten und im Vergleich (b) InAsN Quantenpunkten mit wenigen kleinen Quantenpunkten und stark vergrößerten Quantenpunkten bedingt durch die Stickstoffbindung

Größenverteilung. Der Einfluss von Stickstoff auf die Formation der InAs Quantenpunkte ist in dieser Oberflächenaufnahme deutlich zu sehen. Für Probe (a) bilden sich auf der gesamten Fläche Quantenpunkte mit einer Dichte von $3 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$. Nur einige vereinzelte Quantenpunkte zeigen in der REM Aufnahme deutlich erkennbare größere Ausdehnung. Für Probe (b) kann unter dem Einfluss von Stickstoff kein homogenes Quantenpunktwachstum mehr beobachtet werden. Stattdessen bilden sich vergrößerte Quantenpunkte mit lateralen Abmessungen von circa 100 nm und nur einige wenige kleine Quantenpunkte dazwischen. Jene extrem großen Quantenpunkte sind weitestgehend optisch inaktiv [SGR⁺04] [YYS04].

Wie aus der in Abbildung 6.2 gezeigten Serie und aus anderen Untersuchungen ersichtlich wird, hat Stickstoff Einfluss auf die Formation von InAs-Quantenpunkten [SGR⁺04]. Stickstoff führt zur Bildung von bimodalen Quantenpunkten bzw. großen, inhomogenen Quantenpunkten. Wenn die Substratoberfläche im Wachstum Stickstoffplasma ausgesetzt wird, entstehen Störstellen, an denen sich die beobachteten, großen Quantenpunkte bilden. Mögliche Ursachen können Ansammlungen von Stickstoffatomen oder Defekte, verursacht durch die Plasmaquelle, sein [SGR⁺04].

Um den unerwünschten Einfluss in der Quantenpunktbildung zu vermindern, ist der erste Schritt deshalb eine Reduzierung der Stickstoffmenge. Prinzipiell kann das

6.2. InAsN Quantenpunkte

III/V-Verhältnis an diesem Punkt durch eine Reduzierung des angebotenen Stickstoffs oder eine Erhöhung der In-Wachstumsrate erreicht werden. Eine Erhöhung der Wachstumsrate ist hier für Quantenpunkte niedriger Dichte nicht zielführend. Mit 120 W Leistung ist man allerdings bereits am technischen Limit der verwendeten Stickstoff Plasmaquelle angelangt. Für kleinere Leistungen, d.h. geringeren Zufluss von Stickstoff, kann ein Plasma bei der genutzten Plasmaquelle nicht stabil eingestellt werden. Eine Verminderung der Stickstoffmenge ist technologisch so nicht erreichbar.

Deshalb wurde im nächsten Schritt der Stickstoff-Gehalt indirekt reduziert. Das Angebot an Stickstoff wurde auf einen Teil des Quantenpunktwachstums beschränkt, was durch die spezielle Anlagenkonfiguration ermöglicht wurde (siehe Abschnitt 2.1). Die Separation der Stickstoff-Plasmaquelle in eine separate Vakuumkammer, die mittels Ventil mit der Wachstumskammer verbunden ist, ermöglicht einen punktgenauen Start der Stickstoffzufuhr. Die Plasmaquelle wird in der separaten Kammer gestartet und stabilisiert. Das Ventil zu dieser Kammer wird dann nur kurzzeitig für einen Teil des Quantenpunktwachstums geöffnet. Somit kann der nominelle Gesamtgehalt des Stickstoffs weiter reduziert werden. Abb. 6.3 und 6.4 zeigen REM-Aufnahmen einer solchen Serie.

Bei diesen Proben wurde erst nach zwei Drittel des Quantenpunktwachstums das

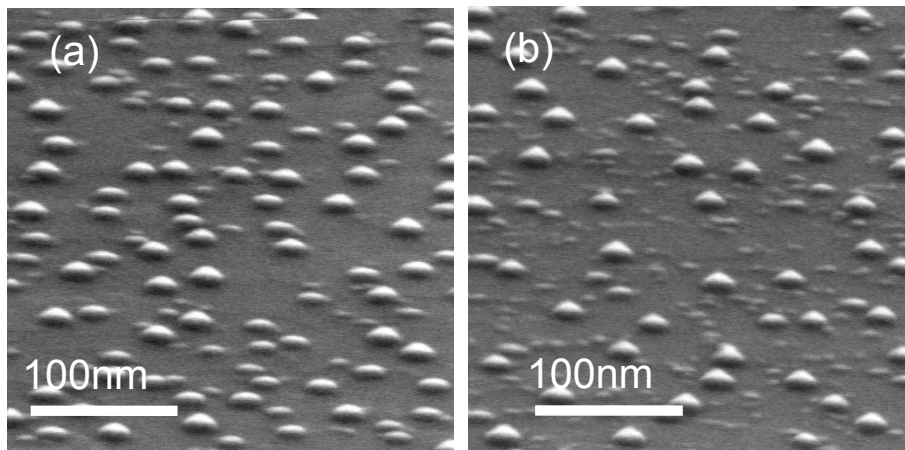


Abbildung 6.3: REM-Aufnahmen von InAsN Quantenpunkten mit insgesamt jeweils nominell 2,3 ML aufgewachsenem InAs(N) und verschiedenem Stickstoffgehalt : (a) 1,8 ML InAs + 0,6 ML InAsN; (b) 1,2 ML InAs + 1,2 ML InAsN

Ventil zur Plasmaquelle geöffnet. So wurden für Probe (a) nominell 1,8 ML InAs abgeschieden, gefolgt von 0,6 ML InAsN. Für die Proben (b) und (c) (siehe Abb. 6.4) waren es 1,2 ML InAs und 1,2 ML InAsN bzw. 0,6 ML InAs und 1,8 ML InAsN. Die

Oberflächenaufnahmen zeigen deutlich, wie Quantenpunkte mit zwei unterschiedlichen Größen entstehen.

Bei der ersten Probe in Abb. 6.3 (a), mit einer kurzen Zeit an Stickstoffangebot, ist der Effekt noch klein. Die größeren Quantenpunkte mit lateralen Ausdehnungen die denen herkömmlicher InAs Quantenpunkte entsprechen, überwiegen. Die Verteilung liegt in etwa bei 1:2 mit einer Dichte von 2×10^{10} für die kleinen Quantenpunkte und 4×10^{10} für die größeren Quantenpunkte. Bei dieser Probe war nach 1,8 ML InAs Wachstum die kritische Schichtdicke für die Bildung der Quantenpunkte bereits überschritten. Dennoch wachsen nicht alle Quantenpunkte im gleichen Maße weiter wenn Stickstoff angeboten wird. Diesen Effekt beobachtet man verstärkt für die nächste Probe bei der bereits nach 1,2 ML InAs Stickstoff angeboten wurde. Die Dichte der größeren Quantenpunkte nimmt um 50% ab auf 2×10^{10} . Mit einer Dichte von $3,5 \times 10^{10}$ für die kleinen, im Wachstum gestoppten Quantenpunkte bleibt die Gesamtdichte in etwa gleich.

Bei einer weiteren Erhöhung des Stickstoffgebots, wie in der dritten Probe in Abbildung 6.4 gezeigt, wird die Ausbildung der Quantenpunkte nun so stark beeinträchtigt, dass auf dem größten Teil der Oberfläche nur sehr kleine Quantenpunkte entstehen. Statt homogener Quantenpunkte bilden sich nun mehr große Tropfen. Die

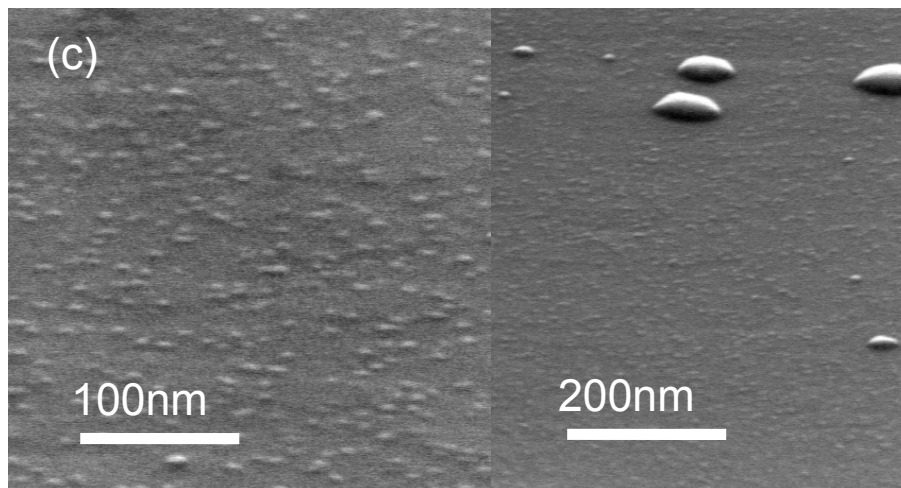


Abbildung 6.4: *InAsN-Quantenpunkte, 0,6 ML InAs + 1,8 ML InAsN.*

Dichte dieser Quantenpunkte lässt sich aufgrund der geringen Größe nur abschätzen zu 7×10^{10} . Für die übergroßen Quantenpunkte liegt die Dichte hingegen bei unter 1×10^9 . Dieser Ausschnitt von drei Proben aus einer Wachstumsserie zeigt die Grenzen der Stickstoffeinbindung in InAs Quantenpunkte.

Noch aussagekräftiger als die Untersuchung der Morphologie sind die optischen Ei-

enschaften dieser Probe. Bei einer Untersuchung mittels Photolumineszenzspektroskopie wird der Einfluss von Stickstoff noch deutlicher. In Abbildung 6.5 sind die PL-Spektren dieser drei Proben, einschließlich einer InAs-Quantenpunkt-Referenzprobe, dargestellt. Beginnt man nun, ausgehend von reinen InAs-Quantenpunkten im Wachstum Stickstoff anzubieten, wird die Emission zu größeren Wellenlängen verschoben wie für Probe (a) im Graphen von Abb. 6.5 rot dargestellt, zu sehen ist. Diese Rot-

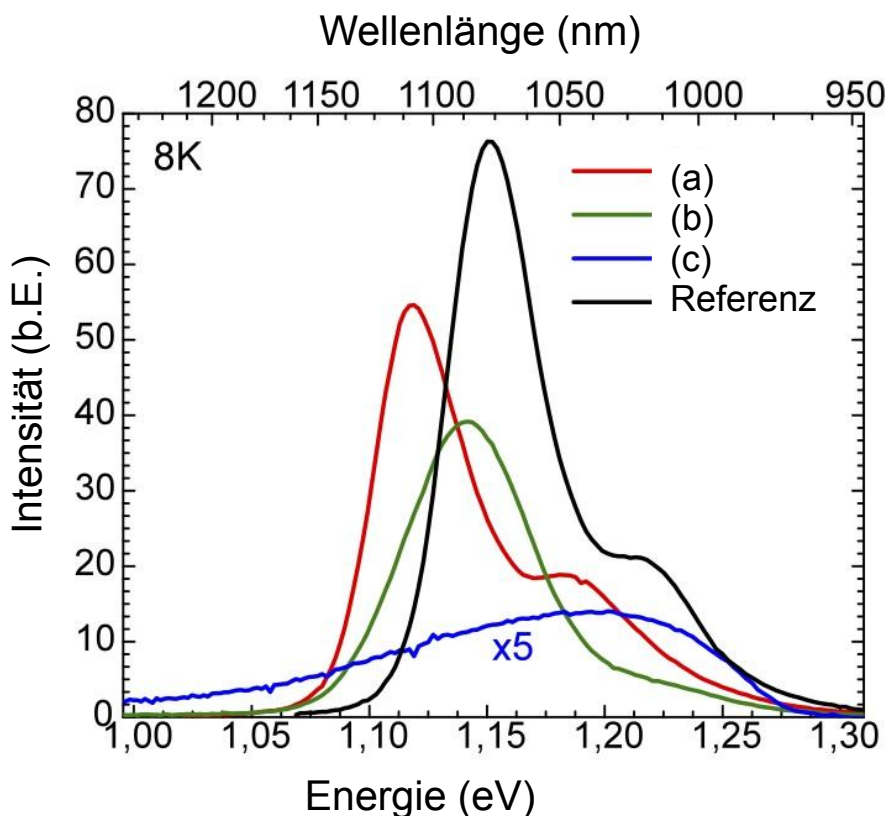


Abbildung 6.5: PL Spektren von InAsN Quantenpunkte: mit zunehmendem Stickstoffgehalt der InAs(N) Quantenpunkte von a, b, bis c, im Vergleich zu reinen InAs-Quantenpunkten einer Referenzprobe (schwarz)

verschiebung kann zum einen auf den Einbau von Stickstoff zurückzuführen sein. Durch den Einbau von Stickstoff nimmt die Bandlücke im Quantenpunkt von InAs zu InAsN ab und damit die Übergangsenergie des Exzitons. Zum anderen führt Stickstoff bei InAs-Quantenpunkten, wie an den REM-Aufnahmen deutlich wird, zu einem bevorzugten Wachstum eines Teils der Quantenpunkte. Das angebotene Material verteilt sich nicht mehr auf alle Quantenpunkte, sondern durch den Stickstoff initiiert entstehen bimodale Quantenpunkte, d.h. Quantenpunkte mit zwei deutlich

voneinander unterscheidbaren Grössenverteilungen. Diese Vergrößerung der Quantenpunkte würde ebenfalls zu einer Abnahme der Exziton-Übergangsenergie und somit zu einer Rotverschiebung des PL Spektrums führen. Bereits für die erste Probe mit geringstem Stickstoffanteil ist eine Abnahme der PL Intensität zu beobachten, was auf die durch den Stickstoffeinbau bedingten Verlustmechanismen zurück zu führen sein kann.

Die Rotverschiebung ist bei den folgenden Proben mit erhöhtem Stickstoffangebot nicht mehr zu beobachten. Stattdessen nimmt die Intensität für Probe b weiter ab. Die inhomogene Verbreiterung nimmt zu und die Emissionswellenlänge wird leicht blau verschoben. Wohingegen Probe (c) so stark an Intensität verliert, dass die extrem großen Punkte wahrscheinlich optisch inaktiv sind. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Serien von mehreren InAsN-Quantenpunkte-Proben gewachsen. Hierbei wurden sowohl die Wachstumsrate, als auch die Substrattemperatur und der Stickstoffgehalt variiert. Alle Proben waren in Untersuchungen mittels hochauflösender Photolumineszenzspektroskopie optisch inaktiv bzw. zeigten keine Emissionslinien wie man diese für exzitonische Übergänge in einzelnen Quantenpunkten erwarten würde.

Ausschlaggebend hierfür kann unter anderem die angestrebte niedrige Dichte sein. Es wurde mit niedrigen Wachstumsraten und Wachstumsparametern für Quantenpunktproben mit niedrigen Dichten begonnen. Für Quantenpunktproben mit hohen Dichten für Raumtemperaturanwendungen wurde beobachtet, dass bei gleicher Emissionswellenlänge ein höherer Stickstoffgehalt im Vergleich zu einem höheren In-Gehalt von Vorteil sein kann [Tom07]. Der Einbau von Stickstoff bedeutet auch bei optimiertem Wachstum immer eine Erhöhung der Defektdichte im Kristallgitter und damit der Zentren für nichtstrahlende Rekombination [MKS⁺07]. Wie die Serien in dieser Arbeit zeigen und auch andere Ergebnisse bestätigen [MKS⁺07] [Tom07] [SGR⁺04], kann man durch eine Erhöhung des Stickstoffgehaltes bei InAsN-Quantenpunkte aktuell keine Emission von einzelnen Quantenpunkten beobachten. Die bisherigen Untersuchungen konzentrierten sich meist auf Anwendungen mit hohen Quantenpunktdichten und der Emission der gesamten Quantenpunktschicht für Anwendungen in Laserdioden. Dies lässt sich nicht auf die hier angestrebten Ziele für Einzelquantenpunktanwendungen bei Tieftemperatur übertragen. Das Ziel waren Quantenpunkte mit niedriger Dichten und einem Minimum an Stickstoff.

6.3 Dot-In-A-Well InAs/GaInAsN Quantenpunkte

Eine Eigenschaft, die Quantenpunkte auszeichnet, ist die Möglichkeit ihre Emissionswellenlänge durch vielfältige Methoden zu beeinflussen und auf die Anwendung abzustimmen. Ein wichtiges System dabei ist der Einschluss der Quantenpunkte in Quantenfilme. Die Quantenpunkte (engl. Quantum Dots) werden in Quantenfilme eingebettet. Dadurch werden die exzitonischen Zustände in den Quantenpunkten von einem System umgeben, dessen Bandlücke geringer ist als die des Bulkmaterials, aber größer als die der Quantenpunkte. Bildlich gesprochen liegen nun die exzitonischen Zustände der Quantenpunkte in einem Tal oder Schacht (well) eingebettet. Quantenfilme unter-, oberhalb oder beidseitig der Quantenpunkte mit einer niedrigeren Bandlücke als das Matrixmaterial sorgen für ein energetisches Tal, in welches die Quantenpunkte eingeschlossen werden. So können im gleichen Materialsystem Quantenpunkte mit größeren Wellenlängen realisiert werden, *Dot-In-A-Well*. Das Schema des Bandverlaufes wird in Abbildung 6.1 (zweite Skizze von links) gezeigt. Die Quantenpunkte werden bei diesem Aufbau in einem oder teilweise auch zwei Quantenfilme eingewachsen. Die GaInAs-Quantenfilme, welche bei diesem Aufbau Quantenpunkte umgeben, haben eine kleinere Bandlücke als das Matrixmaterial, hier GaAs. Indem man die angrenzenden Bandlücken verkleinert, werden auch die Übergänge im Quantenpunkt energetisch verringert. Dieses Prinzip findet häufig Anwendung bei Laserdioden, in denen beispielsweise InAs-Quantenpunkte mit einer GaInAs-Deckschicht überwachsen werden und auch in anderen Materialsystemen. Dieses Prinzip wurde im Rahmen dieser Arbeit nun auch für das Materialsystem GaInAsN umgesetzt.

Der Graph in Abbildung 6.6 zeigt ein Spektrum von InAs-Quantenpunkten überwachsen mit einem GaInAsN-Film (grün) im Vergleich mit reinen InAs-Quantenpunkten in GaAs als Referenz (schwarz) und InAsN-Quantenpunkten (rot). Die Rotverschiebung des Spektrums durch die Einbettung der InAs-Quantenpunkte in den GaInAsN-Film von 1110 nm auf über 1200 nm ist deutlich.

Unter der Verwendung von Stickstoff wurden InAs-Quantenpunkte mit einer GaInAsN-Deckschicht gewachsen, hier als *nitrid-Schicht*-Quantenpunkte bezeichnet. Für die InAs-Quantenpunkte wurden in einer Serie konventionelle InAs-Quantenpunkte als Referenz gewachsen, während die abgeschiedene Menge an InAs variiert wurde. Die

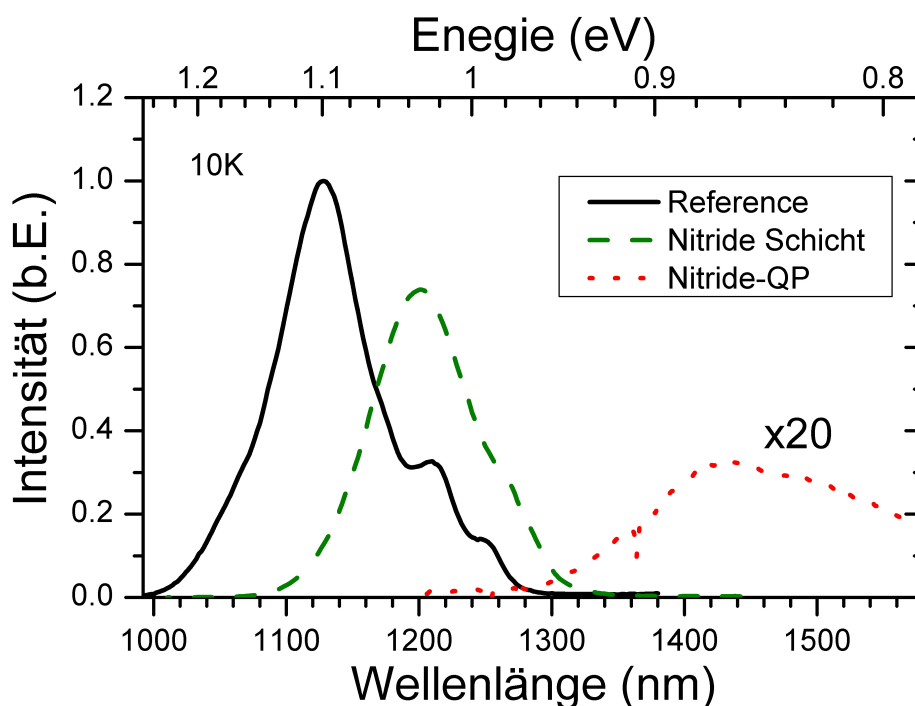


Abbildung 6.6: InAs Quantenpunkte mit a) GaInAs Deckschicht als Referenz, b) mit GaInAsN Deckschicht und c) InAsN Quantenpunkte mit GaInAs Deckschicht

Wachstumsraten der einzelnen Verbindungen waren 700 nm/h für GaAs und 40 nm/h für InAs. Für die InAs-Quantenpunkte wurde ein Zyklus von 1 s geöffneter Shutter und 10 s geschlossener Shutter genutzt, um die effektive Wachstumsrate weiter zu verringern. Dieses zyklische Öffnen und Schließen der Indium-Zelle war notwendig, da die verwendete Anlage nur über eine Indiumquelle verfügte. Ein Anpassen der Wachstumsrate zwischen InAs-Quantenpunkten und GaInAs(N)-Deckschicht führt zu längeren Wachstumspausen zwischen Quantenpunkten und Deckschicht. Hierbei kann es zu Ausheilmechanismen bei den Quantenpunkten kommen, was in alternativen Probenserien ebenfalls getestet wurde. Auch die Wachstumsraten der In Zelle werden hierdurch nicht in dem Maße reproduzierbar, wie erforderlich.

Für die GaInAs-Deckschicht wurde ein Zyklus von 1,2 s GaInAs gefolgt von 3,0 s InAs verwendet, der bei den gegebenen Wachstumsraten nominell zu einem In-Gehalt von 18% führt. Die Leistung für das Stickstoffplasma wurde von GaAsN-Kalibrationsproben übertragen und auf nominell 2% bis 3% Stickstoff eingestellt. Durch sehr langsame Wachstumsraten für die InAs Quantenpunkte resultiert auch eine niedrige Wachstumsrate für GaInAs. Die Stickstoffplasmaquelle kann nicht auf niedrigere als die hier

verwendeten Leistungswerte, stabil eingestellt werden. Somit waren auch niedrigere Konzentrationen von Stickstoff im GaInAsN-Deckschicht technisch nicht realisierbar.

Der grüne Graph in 6.6 zeigt eine deutliche Rotverschiebung durch die GaInAsN Deckschicht mit einem Ausläufer von 1100 nm bis hin zu 1300 nm. Dennoch ist der gewünschte Effekt nicht ausreichend, um deutlich die Grenze von 1300 nm zu überschreiten. An mehreren Proben wurden zudem Mikrophotolumineszenz-Untersuchungen durchgeführt. Keine davon zeigte scharfe, einzelne Übergänge die auf nulldimensionale Quantenpunkte schließen lassen könnten, während die Referenzprobe ohne Stickstoff stets deutlich Einzellinien aufwies.

Dies lässt den Schluss zu, dass auch Stickstoff unmittelbar vor dem Wachstum der Deckschicht negativen Einfluss auf die optischen Eigenschaften der InAs Quantenpunkte hat [MKS⁺07]. Mögliche Ursachen hierfür sind induzierte Störstellen und dadurch verursacht nicht strahlende Rekombination. Eine genauere Untersuchung dieser Mechanismen war jedoch nicht Ziel dieser Arbeit und würde weiterer Techniken wie Rastertunnelmikroskopie, optische Absorptionsmessungen und vielem mehr bedürfen.

6.4 Optimierte Stickstoffeinbindung für Dot-In-A-Well InAs/GaInAs(N)-Quantenpunkte

Die Stickstoff Atome in der GaAs Matrix sorgen für eine Verspannung sowie zusätzliche Gitterfehler, an denen freie Ladungsträger gestreut werden können. Dies führt zu Verlustmechanismen innerhalb des Halbleiters. Für optische Bauteile, bei denen einzelne Photonen einzelner Quantenpunkte von Interesse sind, ist das kritisch. Auch die Bildung der Quantenpunkte wird stark, wie im Vorfeld gezeigt, durch die Stickstoffeinbringung beeinflusst, sodass Untersuchungen an einzelnen Quantenpunkten nicht möglich waren. Im folgendem Schritt wurde nun die stickstoffhaltige Schicht weiter von den Quantenpunkten entfernt, um den Verlust durch stickstoffinduzierte Mechanismen zu verringern.

Zwischen die InAs-Quantenpunkte und die stickstoffhaltige Schicht wurde eine Zwischenschicht von GaInAs gewachsen. Das Schema des Bandkantenverlaufes ist in

Abbildung 6.1 rechts außen dargestellt. Diese Zwischenschicht wurde von nominell 2,4 nm bis 4,9 nm variiert. Hierfür wurde der gleiche Wachstumszyklus wie in den zuvor beschriebenen Proben genutzt. Für die GaInAs-Deckschicht wurde für 1,2 s GaInAs im Wechsel mit 3,0 s InAs angeboten, das nominell zu einem In-Gehalt von 18% führt, bei den gegebenen Wachstumsraten. Dieser Zyklus wurde entsprechend so oft wiederholt, um nominell 2,4 nm, 3,7 nm und 4,9 nm GaInAs abzuscheiden. Anschließend wurde für den gleichen Zyklus von InAs und GaInAs die Stickstoffquelle geöffnet, um Stickstoff in das Schichtsystem einzubauen. Die gesamte Schichtdicke wurde dabei stets bei nominell 9 nm gehalten. Diese Proben wurde abschließend stets mit 50 nm GaAs überwachsen.

Die Ergebnisse der PL-Messungen sind in Abbildung 6.7 gezeigt. Dargestellt ist eine Serie mit einem gleichbleibenden Stickstoffgehalt von nominell 2% für die GaInAsN-Schicht und eine Variation der GaInAs Trennschicht (schwarz, grün, blau), sowie eine Probe, für die der Stickstoffgehalt nominell auf 3% angehoben wurde (rot). In den PL Spektren ist der Einfluss von Stickstoff in der Decksicht deutlich zu er-

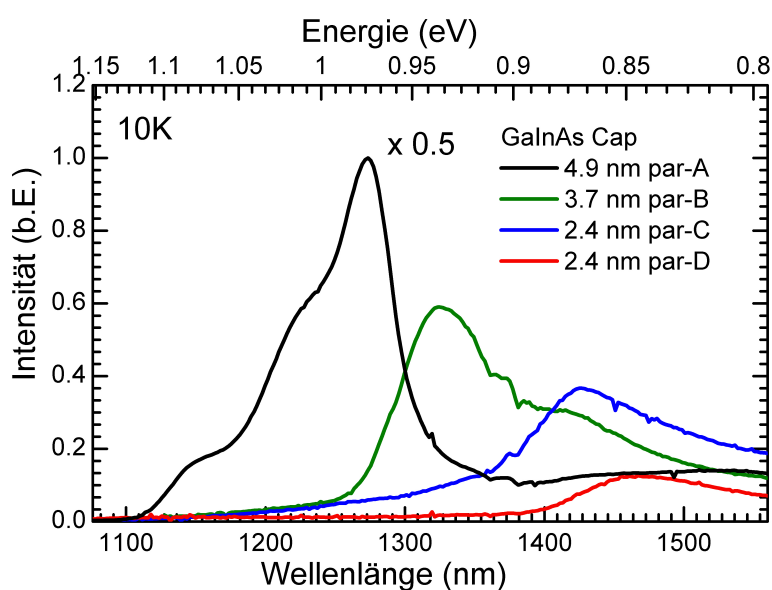


Abbildung 6.7: InAs QP mit partiellem GaInAs cap

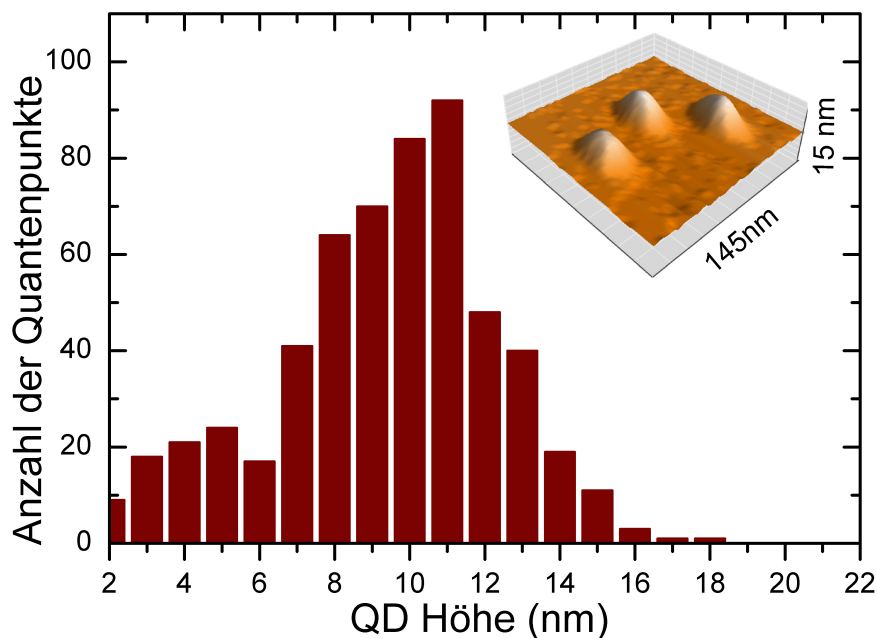
kennen. Mit abnehmender Barriere zwischen der stickstoffhaltigen Schicht und den Quantenpunkten nimmt auch die Intensität der Photolumineszenz ab. Für Probe A (schwarz in Abb. 6.7) mit einer GaInAs Deckschicht von fast 5 nm kann noch fast die vierfache Intensität beobachtet werden, wie für Probe B (grün) mit weniger als

4 nm GaInAs Deckschicht. Proben C (blau) und D (rot) sind identisch gewachsene Proben. Allerdings sieht man hier trotzdem einen Unterschied in der Intensität. Das verdeutlicht, wie empfindlich das MBE-System auf kleinste Schwankungen ist. Proben A,B,C wurden unmittelbar nacheinander gewachsen. Probe D wurde innerhalb einer weiteren Serie zur Kontrolle der Reproduzierbarkeit gewachsen. Deutlich wird die Abnahme der PL-Intensität von Probe C auf Probe D, d.h. von einer Serie auf eine nachfolgende. Weitere Serien zeigten, dass die PL-Intensität immer in dem dargestellten Bereich schwanken würde. Dies kann sehr wohl abhängig sein von der Dichte der Quantenpunkte. Besonders schwer wiegt hier allerdings die Temperaturabhängigkeit des Stickstoffeinbaus [YYS04].

Mit einer GaInAs-Deckschicht von etwa 4 nm wurde bereits der angestrebte Bereich von $1,3 \mu\text{m}$ erzielt, und war stabil reproduzierbar. Eine Einschätzung, wie weit die Quantenpunkte von der stickstoffhaltigen Schicht getrennt sind, lässt eine Untersuchung der Oberflächenquantenpunkte mittels Rasterkraftmikroskop (engl. Atomic Force Microscope - AFM) zu. Hierfür wurden wie bei den REM-Aufnahmen auf jeder der Proben Oberflächenquantenpunkte mit den gleichen Parametern gewachsen. Abb. 6.8 zeigt im Inset einen Ausschnitt aus einer solchen AFM-Aufnahme. Darunter ist die Höhenverteilung aus mehreren Messungen an verschiedenen Stellen der Probe gezeigt. Für diese sind die Quantenpunkte mindestens zur Hälfte in GaInAs eingebettet, wie AFM Untersuchungen zeigen.

Die Höhenverteilung ist annähernd gaussförmig. Das Maximum liegt bei etwa 11 nm Quantenpunkthöhe. Auch wenn die Höhe der Quantenpunkte beim Überwachsen deutlich abnehmen wird [SS03], kann man davon ausgehen, dass die Quantenpunkte noch in die stickstoffhaltige Deckschicht hineinragen. Zudem wird der Stickstoff nicht perfekt in der angestrebten Sicht separiert bleiben, sondern auch in die angrenzenden Schichten diffundieren.

Die Struktur mit weniger als 4 nm Deckschicht GaInAs wurde mehrfach reproduziert und für weitere spektroskopische Untersuchungen herangezogen, um die Eigenschaften einzelner Quantenpunkte zu prüfen. Die Quantenpunkte befinden sich hier hinter einem GaInAsN-Quantenfilm als Barriere, sind selber aber nicht vollständig von einer stickstoffhaltigen Matrix umgeben.

Abbildung 6.8: *InAs-Quantenpunkt Höhenverteilung*

6.5 Mikrophotolumineszenzuntersuchung an InAs-P mit GaInAs(N)-Deckschicht

Für eine mögliche Anwendung als Emmitter von einzelnen Photonen in einem Wellenlängenbereich von über 1300 nm sind vor allem die Eigenschaften einzelner Quantenpunkte und weniger das Ensemble von Interesse. Um grundlegend zu prüfen, ob die in dieser Arbeit entwickelten InAs Quantenpunkte mit einer partiellen GaInAsN-Deckschicht auch als Einzelphotonenemitter dienen könnten wurden die zuvor beschriebenen Proben mittels Mikrophotolumineszenzspektroskopie untersucht.

Für die Messung mittels Mikrophotolumineszenz wurden die Proben mit Mesen prozessiert. Abbildung 6.9 zeigt eine REM-Aufnahme einer auf der Oberfläche einer Quantenpunktprobe strukturierten Mesa. Aus mehreren Serien von InAs Quantenpunkten mit GaInAsN-Deckschicht wurden Proben ausgewählt mit einem PL-Spektrum bei 1300 nm. Mittels Elektronenstrahlolithographie wurden Mesen bzw. kleine Bereiche prozessiert, wie in Abschnitt 4.5 beschrieben. Mittels Plasmaätzpro-

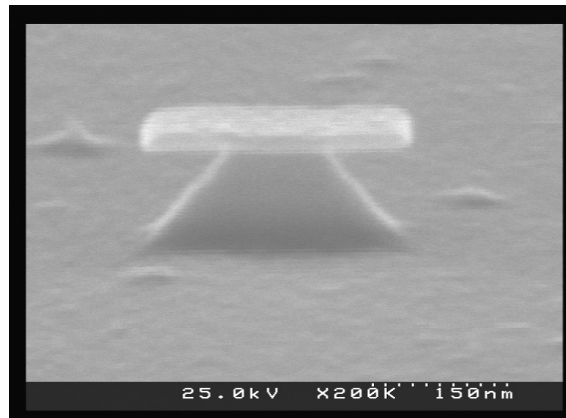


Abbildung 6.9: REM-Aufnahme einer auf der Oberfläche einer Quantenpunktprobe strukturierte Mesa zur Untersuchung einzelner Quantenpunkte in der feinen Platte an der spitze des Fußes

zess wurden Mesen mit einer Größe von $2,0\ \mu\text{m}$ bis zu $200\ \text{nm}$ realisiert. Durch diese Prozessierung werden die Quantenpunkte vereinzelt. Je nach Größe der Mesa und Dichte der Quantenpunkte bleiben nur noch wenige Quantenpunkte übrig. In Abbildung 6.9 sind auf der Oberfläche der Mesa sogar noch die auf der Oberfläche der Probe aufgewachsenen Quantenpunkte zu erkennen. Die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte auf der Probe ist normalverteilt. Werden nun die Quantenpunkte einer Mesa mit einem Laser angeregt, können die wenigen verbliebenen Quantenpunkte, da sie spektral getrennt sind, mit hochauflösender Photolumineszenzspektroskopie einzeln untersucht werden.

Das Spektrum von zwei Quantenpunkten isoliert in einer solchen Mesa ist in Abbildung 6.10 gezeigt.

Deutlich zu erkennen sind zwei scharfe Linien bei $1345\ \text{nm}$ und $1319\ \text{nm}$ bzw. $934,6\ \text{meV}$ und $939,8\ \text{meV}$. Die Halbwertsbreite von nur $\sim 0,3\ \text{meV}$ entspricht der spektralen Auflösung des Messaufbaus. Dies ist bereits ein erstes Indiz für Emission eines einzelnen Quantenpunktes [KMW⁺02]. Um dies zu verdeutlichen wurden Aufnahmen für verschiedene Anregungsleistungen gemacht. Ein Auszug aus einer Serie ist in Abbildung 6.11 dargestellt. Bei niedrigen Anregungsleistungen sind nur die zwei deutlich voneinander getrennten Linien zu erkennen. Mit zunehmender Anregungsleistung wird im rechten Bereich ein weiteres Signal deutlich.

Die Linien im Spektrum wurden unter Berücksichtigung der integrierten Intensität der Rekombination des einfachen Exzitons von zwei verschiedenen Quantenpunkten sowie der Rekombination eines Biexzitons zugeordnet. Diese sind in Abbildung 6.12 gezeigt. Die integrierte Intensität erscheint bei doppellogarithmische Darstellung

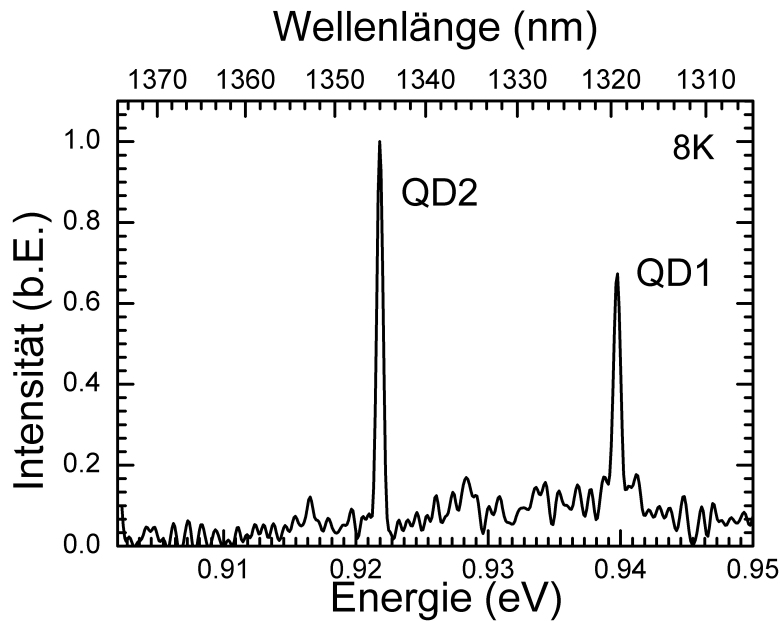


Abbildung 6.10: μm -PL Spektrum von zwei InAs/GaInAs(N)-Quantenpunkten

als Funktion der Anregungsleistung nach 4.3 mit $I_x \propto P^n$. Für die beiden Linien findet man $n=0,88$ und $1,8$. Für ein Exziton sollte im Idealfall $I_x \propto P^1$ sowie für das Biexziton $I_x \propto P^2$ sein. Das Verhältnis 2 von n_x zu n_{xx} zeigt dennoch, dass es sich hier um einen exzitonische und biexzitonische Übergänge in einem handeln muss. Die biexzitonische Bindungsenergie von 5 meV liegt innerhalb des bisher berichteten Bereichs für InAs Quantenpunkte. [AZZ⁺05] [WSK⁺99].

Vergleichbare Nachweise für die Emission von Quantenpunkten, die geeignet sind als Einzelphotonenemitter im Bereich von $1,3\ \mu\text{m}$ genutzt zu werden wurden bisher nur auf InP und im Grenzbereich knapp unter $1,3\ \mu\text{m}$ gezeigt [IWK⁺07] [FZA⁺07] [WKU⁺05]. Auch im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben mit direkt auf die InAs gewachsenen GaInAsN Deckschichten oder GaInN Quantenpunkten, konnten keine nachhaltigen Anhaltspunkte für vergleichbare Eigenschaften liefern. Stickstoff bietet vielversprechende Möglichkeiten für die Weiter- und Neuentwicklung von Bauteilen im Ga(In)As Materialsystem [Tom07], wenn auch der Einbau von Stickstoff Einfluss auf die Kristallstruktur und die optische Güte der Halbleiter hat [SGR⁺04]. Wachstum, Form und Größe [YYS03], sowie die optischen Eigenschaften der Quantenpunkte reagieren hoch sensitiv auf den Hintergrunddruck von Stickstoff [FYTF08] und Substrattemperatur [FYF08] [YYS04].

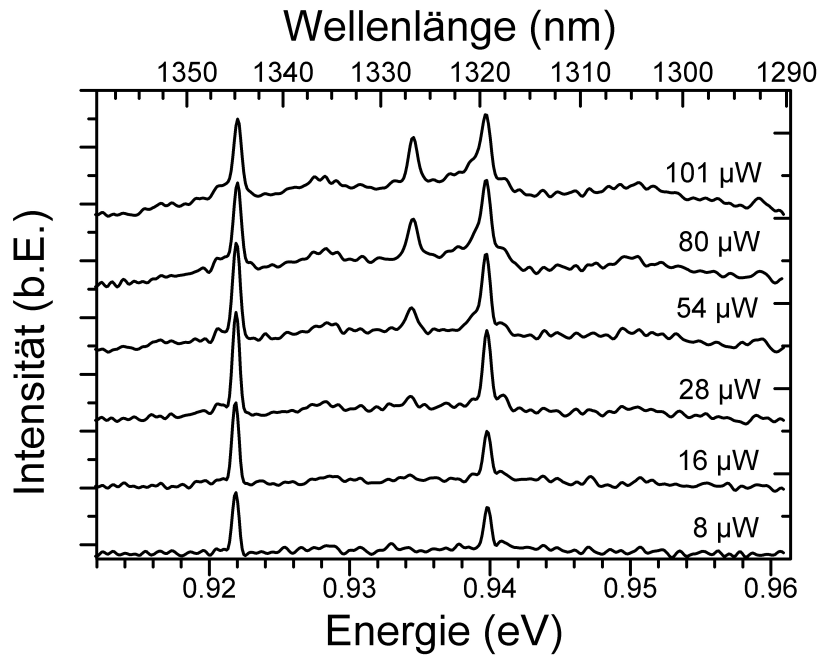


Abbildung 6.11: Serie von Spektren von GaInAs Quantenpunkten mit partieller GaInAs(N) Schicht für verschiedene Anregungsleistung

Durch die Trennung der Quantenpunkte von der stickstoffhaltigen Deckschicht mittels einer GaInAs-Schicht konnten die Emissionswellenlängen von InAs Quantenpunkten über $1,3 \mu\text{m}$ verschoben werden [SHF09]. Da vorangegangene Arbeiten im GaInAsN ihren Fokus auf Proben mit hohen Dichten, mit Emission bei Raumtemperatur richteten, wurden diese Quantenpunkte nicht für die Entwicklung von Einzelphotonenemittern optimiert und untersucht [MKS⁺07]. Auch Ergebnisse mit InAs Quantenken ohne die Zuhilfenahme von Stickstoff kamen nur knapp an die Wellenlänge von 1300 nm und zeigten hier das Limit der Möglichkeiten im GaInAs Materialsystem mittels MBE [WKU⁺05] [AZZ⁺05]. Durch sensible Optimierung und durch das Design einer Pufferschicht zwischen den Quantenpunkten und der GaInAsN Schicht ist es gelungen, erstmals Emission von einzelnen Quantenpunkten mit einer Wellenlänge von über 1300 nm im GaInAsN System zu zeigen. Dies ist eine weitere vielversprechende Möglichkeit, Einzelphotonenquellen im Bereich von Telekommunikationswellenlängen zu erreichen [GLNA08].

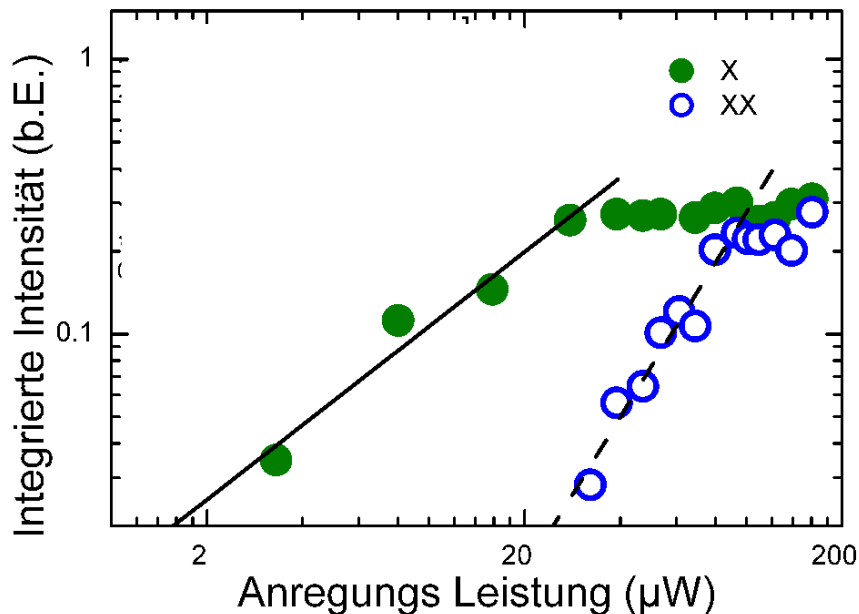


Abbildung 6.12: Integrierte Intensität von Exziton und Biexziton dargestellt in Abhängigkeit der Anregungsleistung

6.6 InAs/GaInAs(N) in Mikroresonatortürmchen

Quantenpunkte und ihre Erforschung bieten durch ihren Quantisierungseffekt eine Vielzahl von einzigartigen Anwendungen. Unterschiedliche Ansätze wurden entwickelt, um mit Hilfe einzelner, isolierter Quantenpunkte Einzelphotonenquellen zu realisieren [KMZW00] [MIM⁺00] [SPS⁺01]. Die Möglichkeit, Einzelphotonenquellen effektiv für Quantencomputer und Quantenkryptografie einsetzen zu können, hat eine Vielzahl von Arbeiten basierend auf Quantenpunkten motiviert [SFV⁺02] [SPS⁺01] [WIS⁺02].

Aufgrund der diskreten Energiezustände können Quantenpunkte als Einzelphotonenemitter dienen. Wenn sie allerdings im Halbleitermatrixmaterial eingebettet sind, sind ihre Auskopplungseffizien verhältnismäßig schlecht da die meisten emittierten Photonen durch totale interne Reflexion für die Anwendung verloren gehen [YKS⁺02] [MKB⁺00].

Wenn ein Quantenpunkt in einen optischen Resonator eingebunden wird, kann die Auskopplungseffizienz in Abhängigkeit der Güte des Resonators verstärkt werden.

6.6. InAs/GaInAs(N) in Mikroresonatortürmchen

Für verschiedene Resonatoren wie photonische Kristalle, optisch und elektrisch gepumpte Mikroresonatortürmchen, wurden bereits Einzelphotonenquellen mit Quantenpunkten demonstriert [HSL⁺10] [YKS⁺02]. Wenn ein Quantenpunkt in Resonanz mit der Mode eines Resonators ist, emittiert dieser mit hoher Wahrscheinlichkeit β in die Mode bevor die Photonen den Resonator verlassen. Gerade Mikroresonatortürmchen sind für die Anwendung besonders interessant, aufgrund ihrer hohen Auskopplungseffizienz und der senkrecht zur Proben Oberfläche gerichteten Emission [PSV⁺02] [SSR⁺07].

Das System von AlAs und GaAs bietet durch den hohen Unterschied im Brechungs-

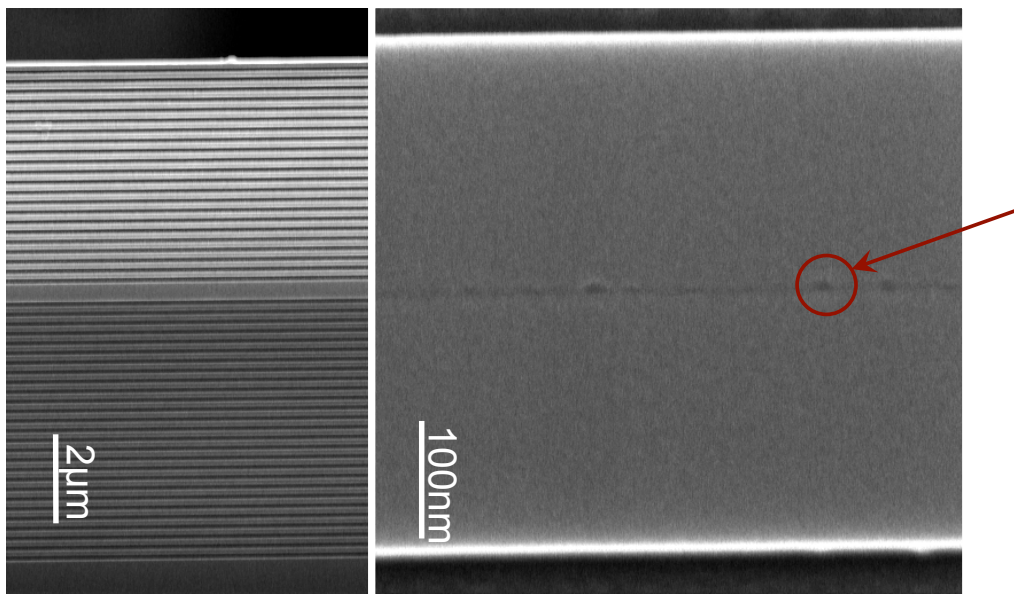


Abbildung 6.13: REM-Aufnahme eines planaren DBR-Resonators mit InAs/GaInAsN-Quantenpunkten in der Mitte der Kavität

index von GaAs und AlAs die Möglichkeit, durch alternierende Schichtenfolgen von GaAs und Al(Ga)As Bragg-Spiegel unter und oberhalb einer optisch aktiven Schicht zu wachsen. In zuvor beschriebenen Arbeiten wurde gezeigt, dass Güten Q von über 165.000 für Mikroresonatoren mittels MBE und Prozessierung durch Elektronenstrahlolithographie und Plasmaätzen im AlGaAs-System möglich sind, wie in den vorangegangenen Kapiteln beschrieben [RSL⁺04]. Die in dieser Arbeit entwickelten InAs/GaInAsN-Quantenpunkte haben somit ein hohes Potenzial für eine mögliche Anwendung als Emittier in einer Einzelphotonenquelle mit einem Wellenlängenbereich über 1300 nm.

Hierfür wurden auch in dieser Arbeit bereits erste Proben gewachsen. Auf ein GaAs-Substrat wurde nach einem Puffer von 300 nm eine alternierte Folge von GaAs und

AlAs gewachsen. Die Schichtdicke wurde mit $d = \frac{\lambda}{4n}$ so gewählt, dass die DBR Spiegel mit der Mitte des Reflexionsspektrums bei 1300 nm entstehen würden, wie in Kapitel 3.2 beschrieben. In der Mitte der Kavität wurden sodann die oben beschriebenen InAs Quantenpunkte mit einer GaInAsN Deckschicht eingebettet. Abbildung 6.13 zeigt die REM Aufnahme der Spaltkante eines solchen AlAs/GaAs Resonators mit Quantenpunkte in der Mitte der Kavität. Deutlich sind im linken Bild von Abbildung 6.13 wie bereits erläutert die GaAs (dunkel) und AlAs (hell) Spiegelpaare mit einer GaAs Kavität zu erkennen. Der Unterschied in der Helligkeit der unteren und oberen Probenhälfte ist bedingt durch die Aufnahme. Betrachtet man den mittleren Probenbereich mit einer höheren Auflösung, so lassen sich mehr Details erkennen. Im rechten Bild von Abbildung 6.13 sind kleine Unebenheiten oder Punkte zu sehen, bei denen es sich um die InAs Quantenpunkte handelt. Um genauer zu prüfen, inwieweit dieser Probenaufbau für Einzelphotonenquellen dienen könnte, wurden auf diesen planaren Strukturen Resonatortürmchen prozessiert, analog zu Kapitel 3.3. Zur Messung der Resonatortürmchen wurde der gleiche Messaufbau wie für die

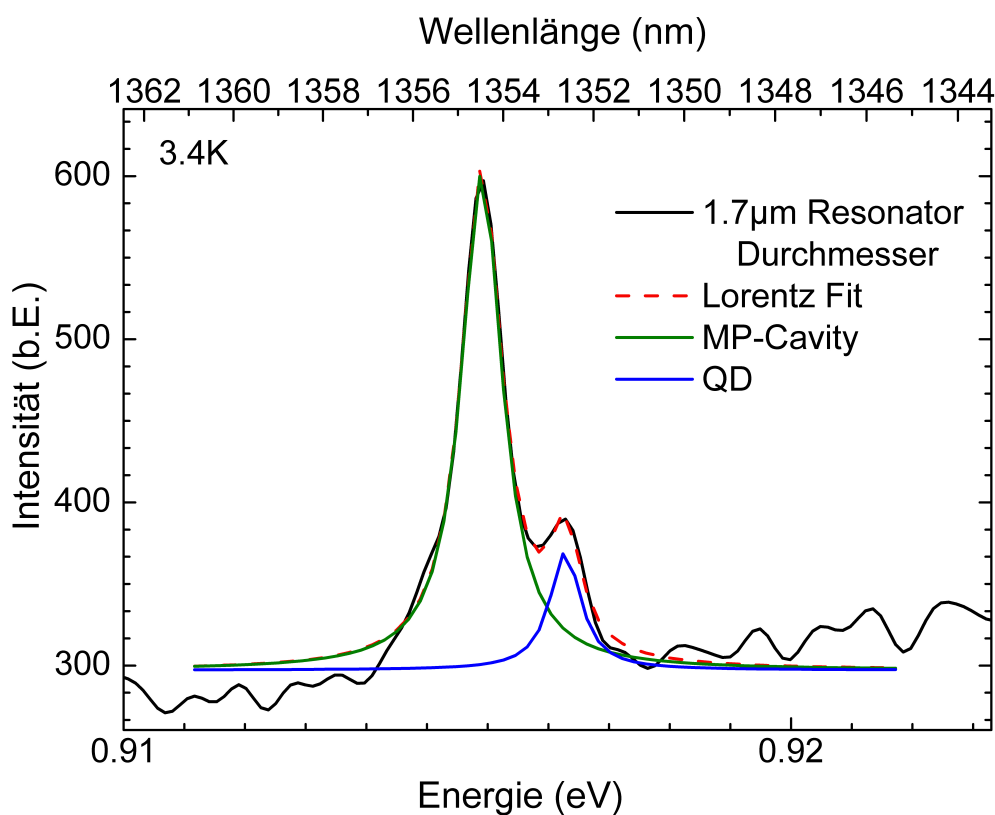


Abbildung 6.14: PL-Spektrum eines DBR-Mikroresonators mit InAs/GaInAsN-QP: (grün) Resonatormode, (blau) QP

Mikrophotolumineszenzmessungen genutzt (Kapitel 6.5). Das Spektrum eines Resonatortürmchens mit InAs/GaInAs(N) Quantenpunkten ist in Abbildung 6.14 dargestellt.

Deutlich zu erkennen ist die Resonanz bei 1356,7 nm und einer Halbwertsbreite von 0,8 meV, was einer Güte Q von knapp 1250 entspricht. Neben dem Signal des Resonators ist rechts ein weiteres Signal sichtbar. Dieses stammt von einem InAs Quantenpunkt mit einer Emissionswellenlänge von 1354,6 nm, nur knapp zwei Nanometer zur Resonanz verschoben. Die Zuordnung dieses Signals zu einem Quantenpunkt wird deutlich, betrachtet man die Emission in Abhängigkeit der Temperatur. In Abbildung 6.15 ist diese in einem Graphen für den Bereich zwischen 5 K und 35 K dargestellt. Mit 0,6 meV Halbwertsbreite hat der Quantenpunkt in dieser Messung gerade das doppelte der max. Auflösung des Messplatzes von 0,3 meV. Auch wenn die Güte der Probe noch nicht an die zuvor erreichten Werte heranreicht [RHG⁺07], zeigt sie dennoch das Potenzial einen Resonator aus GaAs/AlAs bei über 1300 nm Wellenlänge, mit einem Emitter in nur 2 nm Wellenlängenunterschied. Für eine Kopplung muss nun der Resonator genauer auf den Emitter abgestimmt werden, so dass diese in Resonanz gebracht werden können, wie zuvor GaInAs Quantenpunkte [RSL⁺04].

Die Anwendungsmöglichkeiten sind vielfältig. Während die Untersuchungen an

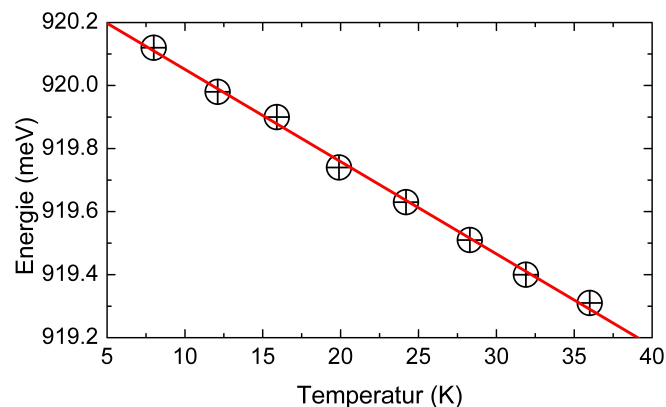


Abbildung 6.15: Spektrale Lage des Exzitonenübergangs eines InAs/GaInAsN QP in Abhängigkeit der Temperatur

GaInAs-Quantenpunkten sich noch auf den Wellenlängenbereich von 950 nm konzentrierten, der im GaInAs-Materialsystem sehr gut beherrschbar ist und für den hoch sensible Mess- und Detektortechnik zur Verfügung steht, ist für die Übertragung in Glasfasernetze der Bereich um 1300 nm wesentlich besser geeignet. Die hier gezeigten Quantenpunkte können es ermöglichen, Ergebnisse in diesen Bereich zu übertragen. Neben einer optisch gepumptem Einzelphotonenquelle [ZSP⁺05] könnte

durch geeignete Dotierung eine solche Struktur auch als elektrisch betriebenes Bauteil realisiert werden [HSL⁺10]. Es ist möglich geworden, einzelne Quantenpunkte gezielt in Resonatoren einzubinden [SSS⁺08b] [Sch07]. Aber nicht nur die hier gezeigten Resonatoren bieten eine mögliche Integration für diese Quantenpunkte. Auch das Prinzip der photonischen Kristalle in einer GaAs Membran [SSS⁺08b] ließe sich hier anwenden. Die Entwicklung eines Nanolaser ist eine Herausforderung für die Erforschung von Quantenpunkten in Mikroresonatoren. Ein solcher Nanolaser könnte mit nur einem Quantenpunkt als Emitter operieren [Nod06].

Insgesamt bieten die beschriebenen Quantenpunkte mit GaInAs(N) Deckschicht eine vielversprechende Möglichkeit, Mikroresonatortürmchen oder andere Resonatoren wie photonische Kristalle im Bereich von Telekommunikationswellenlängen zu nutzen.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

7.1 Zusammenfassung

Die Erforschung von Quantenpunkten mit ihren quantisierten, atom-ähnlichen Zuständen, bietet eine Vielzahl von Möglichkeiten auf dem Weg zum Quantencomputer und für Anwendungen wie Einzelphotonenquellen und Quantenpunktlasern. Vorangegangene Studien haben grundlegend gezeigt, wie Quantenpunkte in Halbleiterresonatoren integriert und mit diesen gekoppelt werden können [ARS⁺05] [RSL⁺04]. Dazu war es zum einen notwendig, die Quantenpunkte und ihr epitaktisches Wachstum besser zu verstehen und zu optimieren [LRF⁺06]. Zum anderen mussten die Bragg-Resonatoren optimiert werden, sodass Güten von bis zu 165.000 realisiert werden konnten [RHG⁺07]. Eingehende Studien dieser Proben zeigten im Anschluss einen komplexeren Zusammenhang von Q-Faktor und Türmchendurchmesser [RGK⁺09]. Man beobachtet eine quasi periodische Oszillation des Q-Faktors mit dem Pillar Durchmesser [RGK⁺09]. Ein Faktor für diese Oszillation ist die Beschaffenheit der Seitenflanken des Resonatortürmchens, bedingt durch die unterschiedlichen Eigenschaften von AlAs und GaAs bei der Prozessierung der Türmchen. Darüber hinaus wurden in der Folge auf den Grundlagen dieser Strukturen sowohl optisch [SHH⁺08]

als auch elektrisch [HSL⁺10] gepumpte Einzelphotonenquellen realisiert.

Da in diesen Bauteilen auch die Lage des Quantenpunkts innerhalb des Resonatortürmchens einen erheblichen Einfluss auf die Effizienz der Kopplung zwischen Resonator und Quantenpunkt hat, war das weitere Ziel, die Quantenpunkte kontrolliert zu positionieren. Mit einer gezielten Positionierung sollte es möglich sein, ein Resonatortürmchen direkt über dem Quantenpunkt zu plazieren und den Quantenpunkt somit in das Maximum der optischen Mode zu legen.

Besondere Herausforderung für die Aufgabenstellung war, Quantenpunkte in einem Abstand von mind. der Hälfte des angestrebten Türmchendurchmessers, d.h. $0,5\ \mu\text{m}$ bis $2\ \mu\text{m}$, zu positionieren. Die Positionierung musste so erfolgen, dass nach dem Wachstum eines AlAs/GaAs DBR Spiegel über den Quantenpunkten, Resonatortürmchen zielgenau auf die Quantenpunkte prozessiert werden können. Es wurden geeignete Prozesse zur Strukturierung eines Lochgitters in die epitaktisch gewaschene Probe mittels Elektronenstrahlolithographie entwickelt. Für ein weiteres Wachstum mittels Molekularstrahlepitaxie, mussten die nasschemischen Reinigungsschritte sowie eine Reinigung mit aktivem Wasserstoff im Ultrahochvakuum optimiert werden, sodass die Probe möglichst defektfrei überwachsen werden konnte, die Struktur des Lochgitters aber nicht zerstört wurde. Es wurden erfolgreich InAs-Quantenpunkte auf die vorgegebene Struktur positioniert, erstmals in einem Abstand von mehreren Mikrometern zum nächsten Nachbarn [SHH⁺08]. Eine besondere Herausforderung war die Vorbereitung für eine weitere Prozessierung der Proben nach Quantenpunktwachstum. Eine Analyse mittels prozessierten Goldkreuzen, dass 30 % der Quantenpunkte innerhalb von 50 nm und 60 % innerhalb von 100 nm [SHS⁺09] prozessiert wurden. In der Folge wurde mit der hier erarbeiteten Methode Quantenpunkte erfolgreich in DBR-Resonatoren sowie photonische Kristalle eingebaut [SHH⁺09] [Sün10] [SSS⁺08b] [SHH⁺08].

Die gute Abstimmbarkeit von Quantenpunkten und die bereits gezeigte Möglichkeit, diese in Halbleiterresonatoren einbinden zu können, machen sie auch interessant für die Anwendung im Telekommunikationsbereich. Um für Glasfasernetze Anwendung zu finden, muss jedoch die Wellenlänge auf den Bereich von 1300 nm oder 1550 nm übertragen werden. Vorangegangene Ergebnisse kamen allerdings nur knapp an die Wellenlänge von 1300 nm [WKU⁺05] [AZZ⁺05]. Eine für andere Bauteile sowie für Laserdioden bereits häufig eingesetzte Methode, InAs-Quantenpunkte in den Bereich von Telekommunikationswellenlängen zu verschieben, ist die Verwendung von Stickstoff als weiteres Gruppe-V-Element. Bisherige Untersuchungen fokussierten sich auf Anwendungen in Laserdioden, mit hoher Quantenpunktdichte und Stick-

stoff sowohl in den Quantenpunkten als in den umgebenen Strukturen [MKS⁺07]. Da InAsN-Quantenpunkte in ihren optischen Eigenschaften durch verschiedene Verlustmechanismen leiden, wurde das Modell eines Quantenpunktes in einem Well (Dot-in-Well) unter der Verwendung von Stickstoff weiterentwickelt. Durch gezielte Separierung der Quantenpunkte von den stickstoffhaltigen Schichten, konnte eine Emission von einzelnen, MBE-gewachsenen InAs Quantenpunkten von über 1300 nm gezeigt werden. Anstatt den Stickstoff direkt in die Quantenpunkte oder unmittelbar danach in die Deckschicht ein zu binden, wurde eine Pufferschicht ohne Stickstoff so angepasst, dass die Quantenpunkte gezielt mit Wellenlängen größer 1300 nm emittieren. So ist es nun möglich, die Emission von einzelnen InAs Quantenpunkten jenseits dieser Wellenlänge zu realisieren.

Es ist nun daran, diese Quantenpunkte mit den beschriebenen Mikroresonatoren zu koppeln, um gezielt optisch und elektrisch gepumpte Einzelphotonenquellen für 1300nm zu realisieren.

7.2 Summary

The research of quantum dots with their quantized, atom-like states provides many possibilities for quantum computing and for application in technologies like single photon sources and quantum dot lasers. Previous studies have demonstrated how quantum dots can be integrated with and linked to semiconductor resonator [ARS⁺05] [RSL⁺04]. For this reason, it is necessary to better understand and optimize the epitaxial growth of quantum dots [LRF⁺06]. Within the context of this work, the Bragg-Resonators must be optimized so that Q factors of up to 165.000 can be realized [RGK⁺09]. Extensive studies of these samplings indicate a complex dependency between Q factors and diameter of the micropillar. This is how a quasi-periodic Q factor oscillation looks [RGK⁺09]. One factor for these oscillations is the composition of the side flanks of the resonator micropillars, caused by the various properties of AIAs and GaAs during processing the micropillar. In addition, both optically and electrically pumped single photon sources have been realized on the basis of this structure [SHH⁺08].

Due to the fact that the position of the quantum dot within the resonator micropillar has a significant effect on the efficiency of the coupling between the resonator and the quantum dot, a further goal was to control the position of the quantum dot. With a precise positioning, it should be possible to place a micropillar directly over a quantum dot, thus the quantum dot is located in the center of the pillar mode. A particular challenge in the scope of work was to position the quantum dots with a distance of at least half of the target micropillar diameter \tilde{U} in other words, between $0,5 \mu\text{m}$ and $2 \mu\text{m}$. The positioning must be done in such a way so that a AIAs/GaAs DBR micropillar can be processed over the quantum dot [SHH⁺08]. Therefore processes were developed to place a lattice of holes on an MBE grown sample via Electron Beam Lithography.

The lithographical process was optimized by additional steps of wet chemical cleaning, and cleaning with hydrogen under ultra high vacuum, to avoid defects during MBE overgrowth. InAs quantum dots have positions on a given structure in a distance of several micrometers to each other [SHH⁺08]. It could be proved by processing gold pattern, that 30% of the quantum dots are placed within 50 nm precision and 60% within 100 nm [SHS⁺09]. In the following work quantum dots have been placed in DBR micro pillars and photonic crystals [SHH⁺09] [Sün10] [SSS⁺08b] [SHH⁺08]. Because quantum dots have a wide spectral range and because they can be integrated in micropillars, they are also of interest for applications within telecommunication systems. Therefore the spectral range around 1300 nm and 1550 nm has to be reached to link them to fiber cable. Former studies have shown results tight under 1300nm [WKU⁺05] [AZZ⁺05]. Nitrogen is an additional way to get InAs quantum emitting at 1300nm at 8 K. Until now research for InAs quantum dots containing nitrogen was focused on high density dots for laser application [MKS⁺07]. The Dot-In-A-Well design was transferred, in this work, to this problem by using nitrogen in a well above the quantum dots. With this development, single quantum dots, emitting above 1300nm at 8 K, have been grown for the first time.

The next step would be to integrated this InAs Quantum dots with the nitrogen well, within the micro pillar to achieve single photon sources at 1300nm.

Anhang A

Publikationsliste

A.1 Zeitschriftenveröffentlichungen

- *AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000*
Applied Physics Letters 90 - 251109 (2007)
S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauß, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp, A.
- *Selective etching of independent contacts in a double quantum-well structure: Quantum-gate transistor*
Applied Physics Letters 92, 062101(2008)
S. Lang, L. Worschech, M. Emmerling, M. Strauß, S. Höfling and A. Forchel
- *Lithographic alignment to site-controlled quantum dots for device integration*
Applied Physics Letters 92 183101 (2008)
C. Schneider, M. Strauß, T. Süner, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Reitzenstein, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel S. Lang, L. Worschech, M. Emmerling, M. Strauß, S. Höfling, A. Forchel
- *Scalable fabrication of optical resonators with embedded site-controlled quantum dots*

- Optics Letters 33 1761 (2008)
Thomas Sünner, Christian Schneider, Micha Strauß, Alexander Huggenberger,
Daniel Wiener, Sven Höfling, Martin Kamp, Alfred Forchel
- *InAs/GaInAs(N) quantum dots on GaAs substrate for single photon emitters above 1300 nm*
Nanotechnology 20, 505601 (2009)
M. Strauß, S. Höfling, A. Forchel
 - *Oscillatory variations in the Q factors of high quality micropillar cavities*
Applied Physics Letters 94 061108 (2009)
S. Reitzenstein, N. Gregersen, C. Kistner, M. Strauß, C. Schneider, L. Pan, T. R. Nielsen, S. Höfling, J. Mork, A. Forchel
 - *Single site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots: growth, properties and device integration*
Nanotechnology, 20, 434012 (2009)
C. Schneider, A. Huggenberger, T. Sünner, T. Heindel, M. Strauß, S. Gäpfert, P. Weinmann, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel
 - *Semiconductor Cavity Quantum Electrodynamics with Single Quantum Dots*
Acta Physica Polonica A 116, 445 (2009).
S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Münch, C. Kistner, M. Strauß, A. Huggenberger, P. Franek, P. Weinmann, M. Kamp, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel
 - *Numerical and Experimental Study of the Q Factor of High-Q Micropillar Cavities*
Journal of Quantum Electronics. 46, 1470 (2010)
N. Gregersen, S. Reitzenstein, C. Kistner, M. Strauss, C. Schneider, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel, T. R. Nielsen, J. Mork, und J.-M. Gerard
 - *Optimization and comparison of depth profiling in GaAs and GaSb with TOF-SIMS*
Surface and Interface Analysis (2011)
A. Herrmann, T. Lehnhardt, M. Strauss, M. Kamp, A. Forchel
 - *Up on the Jaynes-Cummings ladder of a quantum-dot/microcavity system*
Nature Materials, 9,304 (2010)

J. Kasprzak, S. Reitzenstein, E. A. Muljarov, C. Kistner, C. Schneider, M. Strauss, S. Höfling, A. Forchel, W. Langbein

A.2 Tagungsbeiträge

- *C. Hofmann, S. Reitzenstein, A. Löffler, M. Strauß, M. Kamp, A. Forchel, D. Press, S. Götzinger, and Y. Yamamoto*
International Quantum Electronics Conference 2007 München
C. Hofmann, A. Gorbunov, S. H. Kwon, A. Löffler, M. Strauß, S. Höfling, M. Kamp, S. Reitzenstein, A. Forchel
- *Vertically emitting AlAs/GaAs microcavities with quality factors exceeding 110.00*
International Quantum Electronics Conference 2007 München
M Strauß, M. A. Löffler, S. Reitzenstein, C. Hofmann, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel
- *Dot Based Light Matter Interaction Effects in Micropillar Cavities*
Eingeladener Beitrag: 32nd International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS), 15. - 18. Oktober 2007, Kyoto (Japan).
S. Reitzenstein, C. Hofmann, M. Strauß, S. Höfling, L. Worschech, K. Brunner, A. Forchel
- *Light matter interaction effects in micropillar cavities*
Eingeladener Beitrag: Japan-Germany Workshop on Nanophotonics, 5. - 7. März 2008, Aachen.
S. Reitzenstein, C. Hofmann, M. Strauß, S. Höfling, M. Kamp, L. Worschech, K. Brunner, A. Forchel.
- *Retrieving site-controlled semiconductor quantum dots*
5th International Conference on Semiconductor Quantum Dots, 11. - 16. Mai 2008, Gyeongju (Korea). S. Höfling, M. Strauß, C. Schneider, T. Süner, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Reitzenstein, M. Kamp, A. Forchel

- *Spatially resonant nanocavity-quantum dot arrays Nano-Optoelectronics Workshop, 2008. i-NOW 2008. International*
C. Schneider, T. Sünner, M. Strauß, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Reitzenstein, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel, C. Hofmann, S. Reitzenstein, A. Löffler, M. Strauß, M. Kampf, A. Forchel
- *Light-Matter Coupling in High Q Quantum Dot Micropillars - Progress and Challenges*
Eingeladener Beitrag: 8th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures, (PLMCN8), 7. - 11. April 2008, Tokyo (Japan).
S. Reitzenstein, C. Hofmann, M. Strauß, S. Höfling, M. Kamp, A. Forchel.
- *Coherent Dynamics of One- and Two-Photon States in a Strongly Coupled Single Quantum Dot-Cavity System*
CLEO 2009, Maryland Baltimore
J. Kasprzak, W. Langbein, S. Reitzenstein, C. Kistner, C. Schneider, M. Strauß, S. Höfling, A. Forchel
- *Up on the Jaynes-Cummings ladder of an exciton-cavity system, Eingeladener Beitrag: Electronic/optical coherence in low dimensional semiconductors and atomic gases*
20. - 29. September 2009, Marmaris (Türkei). J. Kasprzak, S. Reitzenstein, E. Muljarov, C. Kistner, C. Schneider, M. Strauß, S. Höfling, A. Forchel, W. Langbein.
- *Quantum Dot Microlasers*
Eingeladener Beitrag: Asia Communications and Photonics Conference and Exhibition (ACP), 2. - 6. November 2009, Shanghai (China)
S. Reitzenstein, C. Kistner, S. Münch, T. Heindel, C. Schneider, M. Strauß, A. Rahimi-Iman, S. Höfling, M. Kamp, A. Forchel
- *Up on the Jaynes-Cummings ladder of a quantum dot microcavity system*
One Day Quantum Dot Meeting, 11. Januar 2010, Cambridge (UK).
J. Kasprzak, S. Reitzenstein, E. A. Muljarov, C. Kistner, C. Schneider, M. Strauß, S. Höfling, A. Forchel, W. Langbein.
- *Site-controlled Quantum Dots: Advanced growth and device integration*
International Symposium on Physics of Quantum Technology, 6. - 9. April 2010, Tokyo (Japan)

C. Schneider, A. Huggenberger, M. Strauß, C. Drescher, T. Sünner, T. Heindel, P. Weinmann, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel

- *Up on the Jaynes-Cummings ladder of a quantum dot microcavity system*
6th International Conference on Quantum Dots, 26. - 30. April 2010, Nottingham (UK). J. Kasprzak, S. Reitzenstein, E. A. Muljarov, C. Kistner, C. Schneider, M. Strauß, S. Höfling, A. Forchel, W. Langbein.
- *Quantum Dot Micropillar Cavities: Building blocks for Quantum Information Processing*
Eingeladener Beitrag: Quantum Photonics Workshop, 21. September 2010, Bristol (UK).
S. Höfling, C. Schneider, T. Heindel, C. Kistner, D. L. Press, J. Kasprzak, S. Ates, E. A. Muljarov, A. Löffler, M. Strauß, M. Lerner, B. Friess, A. Rahimi-Iman, S. H. Kwon, K. De Greve, P. L. McMahon, T. D. Ladd, S. Reitzenstein, M. Kamp, L. Worschech, Y. Yamamoto, W. Langbein, P. Michler, A. Forchel
- *Up on the Jaynes-Cummings ladder of an exciton-cavity system*
Proc. SPIE 7600, 760015 (2010)
J. Kasprzak, S. Reitzenstein, E. A. Muljarov, C. Kistner, C. Schneider, M. Strauß, S. Höfling, A. Forchel, W. Langbein
- *QED in Quantum Dot Micropillar Cavities - Fundamental Research and Applications*
Eingeladener Beitrag: Polish-German Workshop on the Optical Properties of Nanostructures, 14. - 16. Februar 2011, Wroclaw (Polen).
S. Reitzenstein, C. Kistner, T. Heindel, C. Schneider, F. Albert, S. Münch, P. Gold, A. Rahimi-Iman, M. Strauß, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel

Literaturverzeichnis

- [Ada93] ADACHI, Sadao: *Properties of Aluminium Gallium Arsenide*. INSPEC the Institution of Electrical Engineers, 1993
- [AM01] ASHCROFT, Neil ; MERMIN, David: *Festkörperphysik*. Berlin München : Oldenburg Verlag, 2001
- [APG99] ANDREANI, Lucio C. ; PANZARINI, Giovanna ; GERARD, J M.: Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities-Theory. In: *Physical Review B* 60 (1999), Nr. 19, S. 13276–13279
- [ARS⁺05] ANDREAS ; REITHMAIER, Johann P. ; SEL, G ; HOFMANN, Carolin ; REITZENSTEIN, Stefan ; KAMP, Martin ; FORCHEL, Alfred: Semiconductor quantum dot microcavity pillars with high-quality factors and enlarged dot dimensions. In: *Applied Physics Letters* 8 (2005), S. 111105
- [AWB⁺06] ATKINSON, P ; WARD, M B. ; BREMNER, S P. ; ANDERSON, D ; FARROW, T ; JONES, G A C. ; SHIELDS, A J. ; RITCHIE, D A.: Site-control of InAs quantum dots using ex-situ electron-beam lithographic patterning of GaAs substrates. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 45 (2006)
- [AZZ⁺05] ALLOING, B ; ZINONI, C ; ZWILLER, V ; LI, L ; MONAT, C ; M GOBET, G B. ; FIORE, A ; PELUCCHI, E ; KAPON: Growth and characterization of single quantum dots emitting at 1300 nm. In: *Applied Physics Letters* 86 (2005), Nr. 101908
- [BBT⁺04] BEHAM, E ; BETZ, M ; TRUMM, S ; KROUTVAR, M ; DUCOMMUN, Y ; KRENNER, H J. ; BICHLER, M ; LEITENSTORFER, A ; FINLEY,

- J ; ZRENNER, A ; ABSTREITER, G: Physics and applications of self-assembled quantum dots. In: *phys stat sol c* 1 (2004), Nr. 8, S. 2131–2159
- [BHW⁺06] BEIRNE, G. ; HERMANNSTÄDTER, C ; WANG, L ; RASTELLI, A ; SCHMIDT, O. G. ; MICHLER, P: Quantum Light Emission of Two Lateral Tunnel-Coupled (In,Ga)As/GaAs Quantum Dots Controlled by a Tunable Static Electric Field. In: *Physical Review Letters* 96 (2006)
- [BRK⁺08] BÖCKLER, C ; REITZENSTEIN, S ; KISTNER, C ; DEBUSMANN, R ; LÖFFLER, A ; KIDA, T ; HÖFLING, S ; FORCHEL, A ; GRENOUILLET, L ; CLAUDON, J ; GERARD, J M.: Electrically driven high-Q quantum dot-micropillar cavities. In: *Applied Physics Letters* 92 (2008), Nr. 091107
- [BRV12] BUCKLEY, Sonia ; RIVOIRE, Kelley ; VUČKOVIC, Jelena: Engineered quantum dot single-photon sources. In: *Reports on Progress in Physics* 75 (2012), Nr. 12, S. 126503
- [CC95] COLDERN, L. A. ; CORINE, S. W.: *Diode Lasers and Photonic Integrated Circuits*. New York : John Wiley and Sons, 1995
- [CFH⁺93] CHOQUETTE, K ; FREUND, R ; HONG, M ; LUFTMAN, H ; CHU, S N G. ; MANNAERTS, J ; WETZEL, R: Hydrogen plasma processing of GaAs and AlGaAs. In: *Journal of Vacuum Science and Technologie* 11 (1993)
- [CH95] CHANG-HASNAIN, C.J.: *Semiconductor Laser: Past, Present and Future*. AIP Press, 1995
- [CP85] CHANG, Leroy L. ; PLOOG, Klaus: *Molecular Beam Epitaxy and Heterostructures*. Maritinus Nijhoff Publishers, 1985
- [Dem00] DEMTRÖDER, Wolfgang: *Experimentalphysik 3 - Atome, Moleküle und Festkörper*. Berlin Heidelberg : Springer-Verlag, 2000
- [DLS⁺08] DOUSSE, A ; LANCO, L ; SUFFCZYŃSKI, J ; SEMENOVA, E ; MIARD, A ; LEMAÎTRE, A ; SAGNES, I ; ROBLIN, C ; BLOCH, J ; SENELLART, P: Controlled Light-Matter Coupling for a Single Quantum Dot Embedded in a Pillar Microcavity Using Far-Field Optical Lithography. In: *Physical Review Letters* 101 (2008)

- [EBD⁺08] ELLIS, D J P. ; BENNETT, A ; DEWHURST, S ; NICOLL, C ; RITCHIE, D ; SHIELDS, A: Cavity-enhanced radiative emission rate in a single-photon-emitting diode operating at 0.5 GHz. In: *New Journal of Physics* 10 (2008)
- [FYF08] FLÄTH, J ; YOON, S ; FITZGERALD, E: The influence of substrate temperature on InAsN quantum dots grown by molecular beam epitaxy. In: *Nanotechnology* 19 (2008)
- [FYTF08] FLÄTH, J ; YOON, S ; TAN, K ; FITZGERALD, E: The effect of nitrogen pressure during molecular beam epitaxy growth of InAsN quantum dots. In: *Nanotechnology* 19 (2008)
- [FZA⁺07] FIORE, A ; ZINONI, C ; ALLOING, B ; MONAT, C ; BALET, L ; LI, L H. ; THOMAS, N L. ; HOUDRE, R ; LUNGI, L ; FRANCARDI, M ; GERARDINO, A ; PATRIARCHE, G: Telecom-wavelength single-photon sources for quantum communications. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* 19 (2007)
- [GBFR98] GUTBROD, T. ; BAYER, M. ; FORCHEL, A. ; REITHMAIER, J. P.: Weak and strong coupling of photons and excitons in photonic dots. In: *Physical Review B* 57 (1998), S. 9950–9956
- [GLNA08] GUIMARD, D ; LEE, H ; NISHIOKA, M ; ARAKAWA: Growth of high-uniformity InAs/GaAs quantum dots with ultralow density below $10 \times 7 \text{ cm}^{-2}$ and emission above $1.3 \mu\text{m}$. In: *Applied Physics Letters* 92 (2008)
- [Gmb04] GMBH, CreaTec Fischer & C.: *Atomic Hydrogen Source*. Erligheim, 2004
- [GSG⁺98] GERARD, J M. ; SERMAGE, B ; GAYRAL, B ; LEGRAND, B ; COSTARD, E ; THIERRY-MIEG, V: Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity. In: *Physical Review Letters* 81 (1998)
- [GSK⁺10] GREGERSEN, N ; SREITZENSTEIN ; KISTNER, C ; STRAUSS, M ; SCHNEIDER, C ; HÖFLING, S ; WORSCHER, L ; FORCHEL, A ; NIELSEN, T ; MORK, J ; GÉRARD, J: Numerical and Experimental Study of the Factor of High-Micropillar Cavities. In: *Quantum Electronics* 46 (2010), Nr. 1470 - 1483

- [HBW⁺07] HENNESSY, K ; BADOLATO, A ; WINGER, M ; GERACE, D ; ATATÜRE, M ; GULDE, S ; FÄLT, S ; HU, E L. ; IMAMOGLU, A: Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-scavity system. In: *Nature* 445 (2007)
- [Hei04] HEIDEMEYER, Henry: *Konzepte zur gezielten lateralen Positionierung selbstordnender InAs Quantenpunkte*, Max-Planck-Institut für Festkörperforschung Stuttgart, Diss., 2004
- [HS96] HERMAN, Marian A. ; SITTER, Helmut: *Molecular Beam Epitaxy*. 2. Berlin Heidelberg : Springer Verlag, 1996
- [HSD⁺10] HUGGENBERGER, A ; SCHNEIDER, C ; DRESCHER, C ; HECKELMANN, S ; HEINDEL, T ; REITZENSTEIN, S ; KAMP, M ; HÖFLING, S ; WORSCHSCH, L ; FORCHEL, A: Site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots for integration into optically and electrically operated devices. In: *Journal of Crystal Growth* 323 (2010), Nr. 194-197
- [HSL⁺10] HEINDEL, T ; SCHNEIDER, C ; LERMER, M ; KWON, S H. ; BRAUN, T ; REITZENSTEIN, S ; HÖFLING, S ; KAMP, M ; FORCHEL, A: Electrically driven quantum dot-micropillar single photon source with 34% overall efficiency. In: *Applied Physics Letters* 96 (2010), Nr. 011107
- [IL02] IBACH, Harald ; LÜTH, Hans: *Festkörperphysik - Einführung in die Grundlagen*. 6. Berlin Heidelberg : Springer-Verlag, 2002
- [IWK⁺07] INTALLURA, P M. ; WARD, M B. ; KARIMOV, O Z. ; YUAN, Z L. ; SEE, P ; SHIELDS, A ; ATKINSON, P ; RITCHIE, D: Quantum key distribution using a triggered quantum dot source emitting near 1.3 μm . In: *Applied Physics Letters* 91 (2007)
- [JHA98] JACAK, Lucjan ; HAWRYLAK, Pawel ; ARKADIUSZ, Wojs: *Quantum Dots*. Warschau : Springer-Verlag, 1998
- [KAR08] KOMSA, H-P ; AROLA, E ; RANTALA, T: Band offset of In-GaN.../GaAs interfaces from first principles. In: *Applied Physics Letters* 92 (2008)
- [KHS04] KIRAVITTAYA, Y ; HEIDEMEYER, H ; SCHMIDT, O G.: Growth of three-dimensional quantum dot crystals on patterned GaAs (001) substrates. In: *Physica E* 253 (2004)

- [KHS⁺08] KISTNER, C ; HEINDEL, T ; SCHNEIDER, C ; RAHIMI-IMAN, A ; REITZENSTEIN, S ; HÖFLING, S ; FORCHEL, A: Demonstration of strong coupling via electro-optical tuning in high-quality QD-micropillar systems. In: *Optics Express* 16 (2008), Nr. 15006
- [Kit96] KITTEL: *Einführung in die Festkörperphysik*. 11. München : Oldenbourg Verlag, 1996
- [KLR⁺09] KASPRZAK, J ; LANGBEIN, W ; REITZENSTEIN, S ; KISTNER, C ; SCHNEIDER, C ; STRAUSS, M ; HÖFLING, S ; FORCHEL, A: Coherent Dynamics of One- and Two-Photon States in a Strongly Coupled Single Quantum Dot-Cavity System. In: *Conference Paper CLEO* (2009)
- [KMR⁺10] KISTNER, C ; MORGNER, K ; REITZENSTEIN, S ; SCHNEIDER, C ; HÖFLING, S ; WORSCHER, L ; FORCHEL, A ; YAO, P ; ; HUGHES, S: Strong coupling in a quantum dot micropillar system under electrical current injection. In: *Applied Physics Letters* 96 (2010)
- [KMW⁺02] KAISER, S ; MENSING, T ; WORSCHER, L ; KLOPF, F ; REITHMAIER, J P. ; FORCHEL, A: Optical spectroscopy of single InAs/InGaAs quantum dots in a quantum well. In: *Applied Physics Letters* 81 (2002)
- [KMZW00] KURTSIEFER ; MAYER, S ; ZARDA, P ; WEINFURTER, H: Stable Solid-State Source of Single Photons. In: *Physical Review Letters* 85 (2000)
- [KRM⁺10] KASPRZAK, J ; REITZENSTEIN, S ; MULJAROV, E A. ; KISTNER, C ; SCHNEIDER, C ; STRAUSS, M ; HÖFLING, S ; FORCHEL, A ; LANGBEIN, W: Up on the Jaynes-Cummings ladder of a quantum-dot microcavity system. In: *Nature Materials* 9 (2010), Nr. 304-308
- [KRS05] KIRAVITTAYA, S ; RASTELLI, A ; SCHMIDT, O G.: Self-assembled InAs quantum dots on patterned GaAs(001) substrates: Formation and shape evolution. In: *Applied Physics Letters* 96 (2005)
- [Kud07] KUDRAWIEC, R.: Alloying of $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ with $\text{InN}_x\text{As}_{1-x}$: A simple formula for the band gap parametrization of $\text{Ga}_{1-y}\text{In}_y\text{N}_x\text{As}_{1-x}$ alloys. In: *Journal of Applied Physics* 101 (2007)
- [LI03] LI, Herbert ; IGA, Kenichi: *Springer Series in Photonics*. Bd. 6: *Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser Devices*. Berlin Heidelberg : Springer-Verlag, 2003

- [LM00] LOUNIS, B ; MOERNER, W: Single photons on demand from a single molecule at room temperature. In: *Nature* 407 (2000)
- [LRF⁺06] LÖFFLER, A ; REITHMAIER, J P. ; FORCHEL, A ; SAUERWALD, A ; BACHER, D. Peskesb T Kümmell G.: Influence of the strain on the formation of GaInAs/GaAs quantum structures. In: *Journal fo Crystal Growth* 286 (2006)
- [LSL⁺00] LIU, G T. ; STINTZ, A ; LI, H ; NEWELL, T C. ; GRAY, A L. ; VARRANGIS, P M. ; MALLOY, K J. ; LESTERT, L F.: The Influence of Quantum-Well Composition on the Performance of Quantum Dot Lasers Using InAs/InGaAs Dots-in-a-Well (DWELL) Structures. In: *IEEE J. Quantum Electron* 36 (2000)
- [Löf05] LÖFFLER, Andreas: *Molekularstrahlepitaxie von GaInAs QP*, Fakultät für Physik der Universität Würzburg, Diss., 2005
- [MHBL94] MOISON, J M. ; HOUZAY, F ; BARTHE, F ; LEPRINCE, L: Self-organized growth of regular nanometer-scale InAs dots on GaAs. In: *Applied Physics Letters* 64 (1994), S. 196–198
- [Mic03] MICHLER, Ed. P.: *Single Quantum Dots, Fundamentals, Applications and new Concepts*. 11. Berlin Heidelberg : Springer Verlag, 2003
- [MIM⁺00] MICHLER, P ; IMAMOGLU, A ; MASON, M ; CARSON, P ; STROUSE, G ; BURATTO, S: Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature. In: *Nature* 406 (2000)
- [MKB⁺00] MICHLER, P ; KIRAZ, P ; BECHER, C ; M PETROFF, W V S. ; ZHANGA, Lidong ; HU, E ; IMAMOGULU, A: A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device. In: *Science* 290 (2000)
- [MKS⁺07] MOTYKA, M ; KUDRAWIEC, R ; SEK, G ; MISIEWICZ, J ; BISPING, D ; MARQUARDT, B ; FORCHEL, A ; FISCHER, M: Photoluminescence from InAsN quantum dots embedded in GaInNAs/GaAs quantum wells. In: *Journal of Applied Physics* 101 (2007)
- [MOH⁺08] MIYAZAWA, T ; OKUMURA, S ; HIROSE, S ; TAKEMOTO, K ; TAKATSU, M ; USUKI, T ; YAKOYAMA, N ; ARAKAWA, Y: First demonstration of electrically driven 1.55 μm single-photon generator. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 46 (2008)

-
- [MRM97] MALIK, S ; ROBERTS, C. ; MURRAY: Tuning self-assembled InAs quantum dots by rapid thermal annealing. In: *Applied Physics Letters* 71 (1997)
- [MRM⁺02] MOREAU, E ; ROBERT, I ; MANIN, L ; THIERRY-MIEG, V ; GÉRARD, J ; ABRAM, I: Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities. In: *Physica E* E13 (2002)
- [Nod06] NODA, S: Seeking the Ultimate Nanolaser. In: *Science* 314 (2006)
- [NSJP⁺02] NAKAMURA, Y ; SCHMIDT, O.G ; JIN-PHILLIPP, N.Y ; KIRAVITTA-YA, S ; MÜLLER, C ; EBERL, K ; GRÄBELDINGER, H ; SCHWEIZER, H: Vertical alignment of laterally ordered InAs and InGaAs quantum dot arrays on patterned (001) GaAs substrates. In: *Journal of Crystal Growth* 242 (2002)
- [Par85] PARKER, Evan H. C.: *The Technology and Physics of Molecular Beam Epitaxy*. New York : Plenum Press, 1985
- [PSM⁺05] PETER, E ; SENELLART, P ; MARTROU, D ; LEMAITRE, A ; HOURS, J ; GERARD, J M. ; BLOCH, J: Exciton-Photon Strong-Coupling Regime for a Single Quantum Dot Embedded in a Microcavity. In: *Physical Review Letters* 95 (2005), S. 67401
- [PSV⁺02] PELTON, M ; SANTORI, C ; VUCKOVIC, J ; ZHANG, B ; SOLOMON, G S. ; PLANT, J ; 233602, Yamamoto Y 2002 Phys. Rev. Lett. 8.: Efficient Source of Single Photons: A Single Quantum Dot in a Micropost Microcavity. In: *Physical Review Letters* 89 (2002)
- [Pur46] PURCELL, E M.: Spontaneous emission probabilities at radio frequencies. In: *American Physical Society* (1946), S. 681
- [RDG⁺99] RIVERA, T ; DEBRAY, J P. ; GÉRARD, J. M. ; LEGRAND, B. ; MANIN-FERLAZZO, L. ; OUDAR, J. L.: Optical losses in plasma-etched AlGaAs microresonators using reflection spectroscopy. In: *Applied Physics Letters* 74 (1999), Nr. 911
- [RGK⁺09] REITZENSTEIN, S ; GREGERSEN, N ; KISTNER, C ; STRAUSS, M ; SCHNEIDER, C ; PAN, L ; NIELSEN, T R. ; HÖFLING, S ; MORK, J ; FORCHEL, A: Oscillatory variations in the Q factors of high quality

- micropillar cavities. In: *Applied Physics Letters* 94 (2009), Nr. 061108 - 061108
- [RHG⁺07] REITZENSTEIN, S ; HOFMANN, C ; GORBUNOV, A ; STRAUSS, M ; KWON, S ; SCHNEIDER, C ; LÖFFLER, A ; HÖFLING, S ; KAMP, M ; ; FORCHEL, A: AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000. In: *Applied Physics Letters* 90 (2007), Nr. 251109
- [RHS⁺03] RODT, S ; HEITZ, R ; SCHLIWA, A ; SELLIN, R L. ; GUFFARTH, F ; BIMBERG, D: Repulsive exciton-exciton interaction in quantum dots. In: *Physical Review B* 68 (2003), S. 035331
- [Rid88] RIDLEY, B. K.: *Quantum Processes in Semiconductors*. Clarendon, Oxford, 1988
- [RKM⁺09] REITZENSTEIN, S ; KISTNER, C ; MUNCH, S ; HEINDEL, T ; SCHNEIDER, C ; STRAUSS, M ; RAHIMI-IMAN, A ; MORGNER, K ; HÖFLING, S ; KAMP, M ; FORCHEL, A: Quantum dot micropillar lasers. In: *Communications and Photonics Conference and Exhibition (ACP)* (2009), Nr. 01-10
- [RRZ⁺97] REITHMAIER, J. P. ; RÖHNER, M. ; ZULL, H. ; SCHÄFER, F. ; FORCHEL, A.: Size Dependence of Confined Optical Modes in Photonic Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* 78 (1997), Nr. 378
- [RSL⁺04] REITHMAIER, Johann P. ; SEK, G ; LÖFFLER, Andreas ; HOFMANN, Carolin ; KUHN, Silke ; REITZENSTEIN, Stefan ; FORCHEL, Alfred: Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system. In: *Nature* 2969 (2004), S. 122411
- [RSM⁺09] REITZENSTEIN, S ; SCHNEIDER, C ; MÜNCH, S ; KISTNER, C ; STRAUSS, M ; HUGGENBERGER, A ; FRANECK, P ; WEINMANN, P ; KAMP, M ; HÖFLING, S ; WORSCHER, L ; FORCHEL, A: Semiconductor Cavity Quantum Electrodynamics with Single Quantum Dots. In: *ACTA PHYSICA POLONICA A* 116 (2009)
- [Sal95] SALE, T: *Vertical Cavity surface Emitting Lasers*. Research Studies Press LTD - John Wiley and Sons Inc, 1995
- [Sch07] SCHMIDTL, O G.: *Lateral alignment of epitaxial quantum dots*. Berlin : Springer, 2007

- [SFV⁺02] SANTORI, C ; FATTAL, D ; VUCKOVIC, J ; SOLOMON, G ; DALE, Y ; YAMAMOTO, Y: Indistinguishable photons from a single-photon device. In: *Nature* 419 (2002)
- [SGR⁺04] SCHUMANN, O ; GEELHAAR, L ; RIECHERT, H ; CERVA, H ; ABSTREITER, G: Morphology and optical properties of InAs(N) quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 96 (2004)
- [SHF09] STRAUSS, M ; HÖFFLING, S ; FORCHEL, A: InAs/GaInAs(N) quantum dots on GaAs substrate for single photon emitter above 1300 nm. In: *Nanotechnology* 83 (2009), Nr. 20
- [SHG⁺12] SCHNEIDER, Christian ; HUGGENBERGER, Alexander ; GSCHREY, Manuel ; GOLD, Peter ; RODT, Sven ; FORCHEL, Alfred ; REITZENSTEIN, Stephan ; HÖFLING, Sven ; KAMP, Martin: In(Ga)As/GaAs site-controlled quantum dots with tailored morphology and high optical quality. In: *physica status solidi (a)* 209 (2012), Nr. 12, S. 2379–2386
- [SHH⁺08] SCHNEIDER, C ; HEINDEL, T ; HUGGENBERGER, A ; WEINMANN, P ; KISTNER, C ; KAMP, M ; REITZENSTEIN, S ; HÖFLING, S ; FORCHEL, A: Single photon emission from a site-controlled quantum dot-micropillar cavity system. In: *Applied Physics Letters* 94 (2008)
- [SHH⁺09] SCHNEIDER, C ; HEINDEL, T ; HUGGENBERGER, A ; WEINMANN, P ; KISTNER, C ; KAMP, M ; REITZENSTEIN, S ; HÖFLING, S ; FORCHEL, A: Single photon emission from a site-controlled quantum dot-micropillar cavity system. In: *Applied Physics Letters* 94 (2009)
- [Shi07] SHIELDS, A: Semiconductor quantum light sources. In: *Nature Photonics* 1 (2007)
- [SHS⁺09] SCHNEIDER, C ; HUGGENBERGER, A ; SÜNNER, T ; HEINDEL, T ; STRAUSS, M ; GÖPFERT, S ; WEINMANN, P ; REITZENSTEIN, S ; WORSCH, L ; KAMP, M ; HÖFLING, S ; FORCHEL, A: Single site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots: growth, properties and device integration. In: *Nanotechnology* 20 (2009)
- [SK91] SUGAYA, T ; KAWABE, M: Low-Temperature cleaning of GaAs substrate by atomic hydrogen Irradiation. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 30 (1991)

- [SKN95] SATO, M ; KAWAGUCHI, T ; NISHI, S.: Precise thickness measurement within a few monolayers by X-ray diffraction from InGaAs/GaAs strained-layer superlattices. In: *jcg* 150 (1995), S. 508–512
- [SPS⁺01] SANTORI, C ; PELTON, M ; SOLOMON, G ; DALE, Y ; YAMAMOTO, Y: Triggered Single Photons from a Quantum Dot. In: *PRL* 86 (2001)
- [SS03] SONGMUANG, R ; SCHMIDT, S Kiravittaya O G.: Shape evolution of InAs quantum dots during overgrowth. In: *Journal of Crystal Growth* 249 (2003)
- [SSR⁺07] STRAUF, S ; STOLTZ, N G. ; RAKHER, M ; COLDREN, L ; PETROFF, P ; BOUMEESTER, D: High-frequency single-photon source with polarization control. In: *Nature Photonics* 12 (2007)
- [SSS⁺08a] SCHNEIDER, C ; STRAUSS, M ; SÜNNER, T ; HUGGENBERGER, A ; WIENER, D ; REITZENSTEIN, S ; KAMP, M ; HÖFLING, S ; FORCHEL, A: Lithographic alignment to site-controlled quantum dots for device integration. In: *Applied Physics Letters* 92 (2008)
- [SSS⁺08b] SÜNNER, T ; SCHNEIDER, C ; STRAUSS, M ; HUGGENBERGER, A ; WIENER, D ; REITZENSTEIN, S ; KAMP, M ; HÖFLING, S ; FORCHEL, A: Scalable fabrication of optical resonators with embedded site-controlled quantum dots. In: *Optics Letters* 33 (2008)
- [Str06] STRAUSS, Micha: *Molekularstrahlepitaxie von Halbleiter-Mikroresonatoren mit hoher Güte*. Würzburg, Universität Würzburg, Diplomarbeit, 2006
- [SUH⁺05] SONG, H Z. ; USUKI, T ; HIROSE, S ; TAKEMOTO, K ; NAKATA, Y ; YOKOYAMA, N ; SAKUMA, Y: Site-controlled photoluminescence at telecommunication wavelength from InAs/InP quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 86 (2005)
- [SYY⁺00] SUN, Z Z. ; YOON, S F. ; YEW, K C. ; BO, B X. ; YAN, Du A. ; CHIH-HANG, Tung: Room-temperature continuous-wave operation of GaInNAs/GaAs quantum dot laser with GaAsN barrier grown by solid source molecular beam epitaxy. In: *Applied Physics Letters* 85 (2000)
- [Sze81] SZE, S. M.: *Physics of Semiconductor Devices*. 2. New York : John Wiley and Sons, 1981

- [Sün10] SÜNNER, Thomas: *Photonische Kristallresonatoren hoher Güte*, Fakultät für Physik der Universität Würzburg, Diss., 2010
- [Tom07] TOMIC, S: Optical properties of dilute nitrogen GaInNAs quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 90 (2007)
- [TSH⁺04] TAKEMOTO, K ; SAKUMA, Y ; HIROSE, S ; USUKI, T ; YOKOYAMA, N ; MIYAZAWA, T ; TAKATSU, M ; ARAKAWA, Y: Non-classical photon emission from a single InAs/InP quantum dot in the 1.3 μm optical fiber. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 43 (2004)
- [UMZ⁺99] USTINOV, V M. ; MALEEV, N A. ; ZHUKOV, A E. ; KOVSH, A R. ; EGOROV, A Y. ; LUNEV, A V. ; VOLOVIK, B V. ; KRESTNIKOV, I L. ; MUSIKHIN, Yu G. ; BERT, N A. ; KOPEV, P S. ; ; ALFEROV, Zh I. ; LEDENTSOV, N N. ; BIMBERG, D: InAs/InGaAs quantum dot structures on GaAs substrates emitting at 1.3 μm . In: *Applied Physics Letters* 74 (1999)
- [Vah04] VAHALA, Kerry: *Advanced Series in Applied Physics*. Bd. 5: *Optical Microcavities*. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2004
- [WIS⁺02] WAKS, E ; INOUE, K ; SANTORI, C ; FATTAL, D ; VUCKOVIC, J ; SOLOMON, GS ; YAMAMOTO, Y: Quantum cryptography with a photon turnstile. In: *Nature* 420 (2002)
- [WKU⁺05] WARD, M ; KARIMOV, O ; UNITT, D ; YUAN, Z ; SEE, P ; GEVAUX, D ; SHIELDS, A ; ATKINSON, P ; RITCHIE, D: On-demand single-photon source for 1.3 μm telecom fiber. In: *Applied Physics Letters* 86 (2005), Nr. 201111
- [WRK⁺08] WANG, L ; RASTELLI, A ; KIRAVITTAYA, S ; ATKINSON, P ; DING, F ; BUFON, C C B. ; HERMANNSTÄDTER, C ; WITZANY, M ; BEIRNE, G J. ; MICHLER, P ; SCHMIDT, O G.: Towards deterministically controlled InGaAs/GaAs lateral quantum dot molecules. In: *Journal of new Physics* 10 (2008)
- [WSK⁺99] WEIGAND, G B. ; SEUFERT, J ; KULAKOVSKII, V D. ; GIPPIUS, N A. ; FORCHEL, A ; LEONARDI, K ; HOMMEL, D: Biexciton versus Exciton Lifetime in a Single Semiconductor Quantum Dot. In: *Physical Review Letters* 83 (1999), Nr. 21

- [WTC99] WILMSEN, Carl ; TEMKIN, Henryk ; COLDREN, Larry: *Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers*. Cambridge University Press, 1999
- [XWC⁺98] XU, S J. ; WANG, X C. ; CHUA, S J. ; WANG, C H. ; FAN, W J. ; JIANG, J ; XIE, X G.: Effects of rapid thermal annealing on structure and luminescence of self-assembled InAs/GaAs quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 75 (1998)
- [Yar89] YARIV, Amnon: *Quantum Electronics*. New York : Wiley, 1989
- [YKS⁺02] YUAN, Z ; KARDYNAL, B ; STEVENSON, R ; SHIELDS, A ; LOBO, C ; COOPER, K ; BEATTIE, N ; RITCHIE, D ; PEPPE, M: Electrically Driven Single-Photon Source. In: *Science* 295 (2002)
- [YTC00] YAMAMOTO, Yoshihisa ; TASSONE, Francesco ; CAO, Hui: *Semiconductor Cavity Quantum Electrodynamics*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2000
- [YTK⁺08] YAMAGUCHI, T ; TAWARA, T ; KAMADA, H ; GOTOH, H ; OKAMOTO2, H ; NAKANO, H ; MIKAMI, O: Single-photon emission from single quantum dots in a hybrid pillar microcavity. In: *Applied Physics Letters* 92 (2008)
- [YY503] YEW, K C. ; YOON, S F. ; SUN, Z Z.: Thickness effects on properties of GaInNAs quantum dots grown by molecular-beam epitaxy with nitrogen plasma source. In: *Journal of Vacuum Science and Technology B* 21 (2003)
- [YY504] YEW, K C. ; YOON, S F. ; SUN, Z Z.: Growth temperature dependence and study of multilayer self-assembled GaInNAs/GaAsN quantum dots grown by solid source molecular beam epitaxy. In: *Journal of Crystal Growth* 271 (2004)
- [ZSP⁺05] ZHANG, B ; SALOMON, G ; PELTON, M ; PLANT, J ; SANTORI, C ; YAMAMOTO, Y: Fabrication of InAs quantum dots in AlAs/GaAs DBR pillar microcavities for single photon sources. In: *Journal of Applied Physics* 97 (2005)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denen bedanken, die zum Erfolg dieser Arbeit beigetragen haben:

Dr. Andreas Löffler für seine Betreuung, die Ausbildung an der MBE und die außergewöhnlich gute Zusammenarbeit

Prof. Dr. Alfred Forchel für die Aufnahme am Lehrstuhl für technische Physik

Prof. Dr. Sven Höfling für die gute Betreuung

Dr. Christian Schneider für die Unterstützung und uneingeschränkte Hilfsbereitschaft

Dr. Thomas Sünner für die erfolgreiche Zusammenarbeit zwischen MBE und Lithographie

bei allen Mitarbeitern der technischen Physik für die tolle Teamarbeit

Würzburg, den 14.04.2015

Micha Strauß