

AlGaInP-Quantenpunkte für optoelektronische Anwendungen im sichtbaren Spektralbereich

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



vorgelegt von
Sven Gerhard
aus Würzburg

Würzburg 2011

Eingereicht am: 30. August 2011
bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. Dr. h.c. A. Forchel
2. Gutachter: Prof. Dr. J. Geurts
der Dissertation

1. Prüfer: Prof. Dr. Dr. h.c. A. Forchel
2. Prüfer: Prof. Dr. J. Geurts
3. Prüfer: Prof. Dr. W. Kinzel
im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 10. Januar 2013

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	3
Summary	7
1 Einleitung	11
2 Theoretische Grundlagen	15
2.1 Das AlGaInP-Materialsystem	15
2.1.1 Binäre Verbindungen	15
2.1.2 Ternäre und quaternäre Verbindungen	16
2.1.3 Einfluss von Verspannung	18
2.2 Niedrigdimensionale Systeme	22
2.2.1 Heterostrukturen	22
2.2.2 Physik niedrigdimensionaler Systeme	23
2.3 Halbleiterlaser	26
2.3.1 Grundprinzip eines Halbleiterlasers	26
2.3.2 Schwellenbedingung	28
2.3.3 Schwellstrom und Kennlinie	30
2.3.4 Einfluss der Temperatur auf die Lasereigenschaften	32
2.3.5 Besonderheiten von Quantenpunktlasern	33
2.4 Epitaxie und Charakterisierungsmethoden	34
2.4.1 Grundlagen der Molekularstrahlepitaxie	34
2.4.2 Charakterisierungsmethoden	38
2.5 Computersimulation und Parameter	42
3 (Al)InP-Quantenpunkte auf gitterangepasstem AlGaInP	43
3.1 Probenherstellung	43
3.2 Einfluss der Barriere auf InP-Quantenpunkte	44
3.3 Morphologie und Lumineszenz von AlInP-Quantenpunkten	48
3.4 (Al)InP-Quantenpunkt laser	52
3.4.1 Probenherstellung	52
3.4.2 Grundcharakterisierung	57

3.4.3	Dauerstrichbetrieb	62
3.4.4	Die kurzweilige Grenze von AlGaInP-Lasern	64
4	(Al,Ga)InP-Quantenpunkte auf GaP	67
4.1	Strahlende Übergänge in Galliumphosphid	67
4.2	GaInP-Quantenpunkte in GaP	69
4.2.1	Probenherstellung	69
4.2.2	Morphologische Eigenschaften	71
4.2.3	Photolumineszenz	75
4.3	AlGaInP-Quantenpunkte in GaP	79
4.3.1	Probenherstellung	79
4.3.2	Morphologische Eigenschaften	80
4.3.3	Photolumineszenz	83
4.4	Temperaturabhängigkeit der Lumineszenz	85
4.5	Berechnung der Bandstruktur	88
4.5.1	Bandverlauf in (Al,Ga)InP-Quantenpunkten in GaP	88
4.5.2	Vergleich mit experimentellen Daten	94
4.5.3	Ansätze zur Optimierung der Lumineszenzeffizienz	104
4.6	Gestapelte Quantenpunkte in einer AlGaP-Matrix	108
4.6.1	Probenherstellung	108
4.6.2	Morphologische Eigenschaften	108
4.6.3	Photolumineszenz	109
4.7	Elektrisch gepumpte Quantenpunkte auf Galliumphosphid	112
4.7.1	Optimierung der Kontaktwiderstände	112
4.7.2	GaInP/GaP Laserstrukturen	114
5	Literaturverzeichnis	117
	Abkürzungen und Symbole	124
	Veröffentlichungen des Autors	127
	Danksagung	131
	Lebenslauf	133
	Versicherung an Eides statt	135

Zusammenfassung

Halbleiterlaser haben längst Einzug in das tägliche Leben gehalten und spielen eine große Rolle in Wissenschaft, Technik und Gesellschaft. Dabei ging die Miniaturisierung dieser Bauteile und die fantastische Verbesserung der Eigenschaften wie Effizienz, Ausgangsleistung und Betriebsstrom einher mit der immer kleineren Dimensionierung der aktiven Zone. Die Ausführung dieser aktiven Zone als extrem dünne Schicht, einem Quantenfilm, ermöglichte erstmals die direkte Ausnutzung quantenmechanischer Effekte zur Verbesserung der Lasereigenschaften. Beinahe alle wirtschaftlich bedeutenden Halbleiterlaser greifen heutzutage auf diese Technologie zurück. Konsequenterweise besteht der nächste Schritt in der weiteren Verringerung der Dimensionalität der aktiven Zone in quasi nulldimensionalen Strukturen, den Quantenpunkten (QPen). Diese besitzen einzigartige Eigenschaften und können die Leistungsfähigkeit von Halbleiterlasern weiter steigern. Dabei sei nur als Beispiel die weitere Verringerung der Schwellstromdichten, die geringe Abhängigkeit der Emissionswellenlänge und Effizienz von der Betriebstemperatur sowie die hohe differentielle Verstärkung genannt.

Aber nicht nur in Lasern stellen Quantenpunkte ein spannendes und vielversprechendes Forschungsgebiet dar. Da Quantenpunkte quasi künstlich hergestellte Atome mit gezielt manipulierbaren Eigenschaften sind, spielen sie eine wichtige Rolle in der Erweiterung des grundlegenden physikalischen Verständnisses der Licht-Materie-Wechselwirkungen und der Vorgänge in niedrigdimensionalen Festkörpern. Als Anwendungen dieser Forschungen birgt vor allem die Realisierung inhärent abhörsicherer Kommunikationswege und die Integration von optischen Datenverarbeitungsbereichen auf konventionellen elektronischen Computerchips ein enormes Potential.

Auf GaAs-Substrat existieren im sichtbaren Spektralbereich Quantenpunktlaser auf Basis von AlGaInAs-Quantenpunkten und auf Basis von InP-Quantenpunkten. Allerdings hat das AlGaInAs-Materialsystem seine Wellenlängenlimitierung auf der kurzwelligen Seite bei etwa 760 nm bei Raumtemperatur, InP-Quantenpunktlaser existieren ebenfalls bei Raumtemperatur bis hinab zu 638 nm Emissionswellenlänge.

Diese Arbeit knüpft in Kapitel 3 an die Ergebnisse von InP-Quantenpunkten an, die auf AlGaInP-Unterlagen hergestellt wurden. Die Zusammensetzung von AlGaInP wurde dabei in dem Bereich gewählt, in dem die Gitterkonstante dieses Materials identisch mit der von GaAs ist. Dies ermöglicht es, diese Nanostrukturen auf GaAs-Substraten

herzustellen.

Vor dieser Arbeit wurden praktisch ausschließlich InP-Quantenpunkte mittels MBE und MOCVD erzeugt, welche in AlGaInP-Barrieren unterschiedlicher Zusammensetzung eingebettet waren. Die Emissionswellenlänge dieser Quantenpunkte und der darauf basierenden Laser lag dabei im optisch roten Spektralbereich und wurde durch die abgeschiedene Materialmenge und über Interdiffusionsprozesse von Atomen aus der Barriere in die Quantenpunkte gesteuert. Eine Variation der Materialmenge führte dabei zu unterschiedlich großen Quantenpunkten und damit, über den Einschlusseffekt der Ladungsträger, zu einer Verschiebung der Emission. Interdiffusionsprozesse finden beim MOCVD-Wachstum durch die vergleichsweise hohen Temperaturen beim Überwachsen der Quantenpunkte statt und führen zu einem Materialaustausch zwischen den aluminiumhaltigen Barrieren und den Quantenpunkten, was über die Variation der Bandlücke des Quantenpunktmaterials für eine Verschiebung der Emission sorgt. In der vorliegenden Arbeit wurden mittels Gasquellen-Molekularstrahlepitaxie (GS-MBE) (Al)InP-Quantenpunkte erzeugt, bei denen die Zusammensetzung, also der Anteil von Aluminium, direkt während der Herstellung der Quantenpunkte gezielt eingestellt wurde. Dies führte zu einer direkten Kontrolle der Emissionswellenlänge der so hergestellten Quantenstrukturen über die Materialzusammensetzung. So konnte Tieftemperaturemission im Wellenlängenbereich zwischen ca. 560 nm und 630 nm erzielt werden. Zeigten die Quantenpunkte aus reinem InP noch eine sehr hohe Oberflächendichte von etwa $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, so nahm diese jedoch mit steigendem Aluminiumgehalt und damit kleineren Emissionswellenlängen drastisch ab. Da eine hohe Oberflächendichte eine wichtige Grundvoraussetzung für gute Lasereigenschaften von Quantenpunktlasern darstellt, wurden Wege gesucht, um diese bei hohen Aluminiumanteilen zu steigern. Durch die Erhöhung der abgeschiedenen Materialmenge in Kombination mit einem bestimmten Abscheidezyklus war es möglich, die Oberflächendichte wiederum auf $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ zu vergrößern. Die geringere Emissionsenergie der nun ebenfalls größeren Quantenpunkte wurde durch eine Erhöhung des Aluminiumanteils ausgeglichen. Dies verdeutlicht, dass der Ansatz der direkten Kontrolle der Zusammensetzung von AlInP-Quantenpunkten einen weiteren Freiheitsgrad zur Verfügung stellt, mit dem man Emissionswellenlänge und Morphologie dieser Quantenpunkte gezielt beeinflussen kann, ohne auf Aluminiumdiffusion aus den Barrieren angewiesen zu sein.

Auf Basis dieser Quantenpunkte wurden Halbleiterlaser hergestellt, welche bei Raumtemperatur zwischen 660 nm und 730 nm emittierten. Breitstreifenlaser, welche aus diesen Strukturen gefertigt wurden, zeigten je nach Ausführung der Quantenpunkte als Bestwert Transparenzstromdichten von unter 700 A/cm^2 und einen modalen Verstärkungskoeffizient von 111 cm^{-1} . Der Vergleich eines Lasers basierend auf 3,6 Monolagen (ML) $\text{Al}_{0,05}\text{In}_{0,95}\text{P}$ -Quantenpunkten mit einem Laser basierend auf 5,0 ML $\text{Al}_{0,10}\text{In}_{0,90}\text{P}$ -Quantenpunkten legte nahe, dass man mithilfe eines höheren Aluminiumanteils in größeren Quantenpunkten bei vergleichbarer Wellenlänge Laser mit besseren Eigenschaften realisieren kann. So konnte in diesem Vergleich beispielsweise die

Transparenzstromdichte um über 450 A/cm^2 auf 688 A/cm^2 verringert und die interne Quanteneffizienz um einen Faktor 2 auf 18% gesteigert werden.

Für den Dauerstrichbetrieb bei Raumtemperatur wurden Laser mit Stegwellenleiter auf Basis dieser Quantenpunkte hergestellt, wobei sich Schwellströme von unter 40 mA bei maximalen Ausgangsleistungen von etwa 7 mW pro Facette realisieren ließen.

Ab Kapitel 4 beschäftigt sich diese Arbeit mit dem Wachstum und der Analyse von Quantenpunkten auf GaP-Substrat, welche in AlGaP eingebettet wurden. AlGaP hat dabei einige sehr interessante Eigenschaften: Mit ihm lässt sich die größte Bandlücke aller III-V-Halbleiter mit Ausnahme der Nitride realisieren, was es zu einem vielversprechenden Material bei der Herstellung von optoelektronischen Bauteilen im sichtbaren gelb-grünen Spektralbereich macht. In diesem Spektralbereich existieren nur vergleichsweise ineffiziente Lichtemitter, obwohl hier einige Anwendungen liegen. Als prominente Beispiele seien rot-grün-blau-Projektoren (RGB) und medizinische Anwendungen wie die photodynamische Therapie (PDT) genannt. Als weiteren Aspekt besitzt GaP eine zu Silizium sehr ähnliche Gitterkonstante, was ein pseudomorphes Wachstum von GaP-Schichten auf Si ermöglicht. Dies eröffnet die Möglichkeit auf GaP basierender optoelektronischer Bauteile, welche in die weit verbreitete Siliziumtechnologie integriert werden können.

Vor dieser Arbeit existierten eine Reihe von Veröffentlichungen zu InP- und GaInP-Quantenpunkten in GaP, verglichen mit anderen Materialsystemen, allen voran GaInAs-Quantenpunkten in GaAs, ist GaInP/GaP jedoch noch wenig untersucht. Vor allem auf der Basis von Arbeiten, welche InP-Quantenpunktwachstum in GaP mittels GS-MBE beschreiben, wurden GaInP-Quantenpunkte mit unterschiedlichen Galliumkonzentrationen hergestellt. Dabei konnte die für spätere Anwendungen in Leuchtdioden (LEDs) und Lasern wichtige Oberflächendichte der Quantenpunkte auf einen Rekordwert von $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ gesteigert werden. Die Tieftemperatur-Lumineszenzeigenschaften dieser Quantenpunkte wurden ebenfalls untersucht und ein Zusammenhang zwischen der Morphologie und der Emissionseffizienz hergestellt. So emittieren die Quantenpunkte um 610 nm und zeigen eine starke Abhängigkeit der Lumineszenzintensität von den Abmessungen. In einem weiteren Schritt wurde Aluminium zu den Quantenpunkten hinzugefügt und dadurch die Emissionwellenlänge bei Tieftemperatur um über 35 nm auf 575 nm verringert.

Da diese Quantenpunkte in Barrieren eingebettet sind, welche eine indirekte Bandlücke besitzen, ergibt sich ein nicht-trivialer Bandverlauf innerhalb dieser Strukturen. Gerade die Lage der energetischen Niveaus von Elektronen und Löchern sowie deren Rekombinationsmechanismen werden in der Literatur diskutiert. Dabei gibt es theoretische und experimentelle Untersuchungen, welche von indirekten Typ-II-Übergängen ausgehen, andere Untersuchungen legen direkte Typ-I-Übergänge oder Übergänge zwischen unterschiedlichen Kristallphasen von GaInP nahe. In dieser Arbeit wurden numerische 3D-Simulationen verwendet, um den Bandverlauf zu berechnen, wobei Verspannung

und interne Felder berücksichtigt wurden und auch die Grundzustandswellenfunktionen ermittelt wurden. Ein eingehender Vergleich mit dem Experiment setzt die gemessenen Emissionswellenlängen und -intensitäten mit berechneten Übergangsenergien und Überlappintegralen in Verbindung. Dabei legen die ermittelten Daten nahe, dass man einen im Orts- und Impulsraum indirekten Typ-II-Übergang beobachtet. Dieses Ergebnis wird mit weiteren Versuchen untermauert, bei denen der Einfluss von AlGaP Barrieren auf die Lumineszenzeigenschaften untersucht wurde.

Um diese Quantenpunkte für Anwendungen zu optimieren, wurde zunächst theoretisch ein Ansatz aufgezeigt, der es ermöglicht die Intensität und Temperaturstabilität der Emission zu verbessern, indem mehrere Quantenpunktschichten in kurzen Abständen übereinander gestapelt werden. Bei der anschließenden experimentellen Realisierung konnte die maximale Temperatur der Photolumineszenz auf 180 K gesteigert und die Intensität der Emission um einen Faktor von über 90 erhöht werden. Bezieht man diese Steigerung auf die Anzahl der Quantenpunktschichten, so entspricht dies einer Erhöhung der Intensität pro Quantenpunktschicht von einem Faktor 4,3.

Auch die elektrischen Eigenschaften von dotierten GaP-Schichten wurden untersucht und deren Kontaktwiderstand konnte durch das Optimieren von Oberflächenschichten um einen Faktor 100 verringert werden.

Schließlich wurden alle gewonnenen Erkenntnisse in einer Laserstruktur kombiniert und diese bei Tieftemperatur charakterisiert. Zwar konnte in dieser Laserstruktur die Laserschwelle nicht erreicht werden, jedoch wurde Elektrolumineszenz bei einer Wellenlänge von 620 nm nachgewiesen, was gut mit den Photolumineszenzmessungen übereinstimmt.

Summary

Semiconductor lasers have made their way into everyday life and play a major role in science, technology and society. The miniaturization of these devices and the fantastic improvement of their performance regarding efficiency, output power and operating current was mainly achieved through the application of low-dimensional active regions. The realization of these active regions as extremely thin layers, so called quantum wells, offered the possibility of exploiting quantum-mechanical effects to improve laser properties for the first time. Almost all of the economically significant semiconductor lasers today are based on this principle. Consequently, the next step is the further reduction of the active region's dimensions employing quasi-zero-dimensional structures, so called quantum dots. These exhibit unique properties and are able to further improve the performance of semiconductor lasers. As only a few examples one could mention the reduction of threshold current density, small dependencies of the efficiency and emission wavelength on device temperature and high differential gain.

However, quantum dots represent an interesting and promising field of research not only for application in lasers. Since quantum dots are like artificial atoms with properties that can be specifically tailored, they play an important role in enhancing the understanding of physical processes involved in light-matter-interaction and carrier dynamics in low dimensional crystals. The realization of intrinsically secure transmission in telecommunications and the integration of optical data processors on classical electronics as applications of this research exhibit great potential.

Quantum dot lasers, emitting in the visible spectral region, based on GaAs substrate, have been realized before, using AlGaInAs quantum dots or InP quantum dots. However, the AlGaInAs material system has its short wavelength limit around 760 nm, while InP quantum dot lasers operate down to 638 nm at room temperature.

In chapter 3, this work takes up the results of InP quantum dots, that have been grown inside AlGaInP barriers. The composition of AlGaInP was chosen in a range, where the lattice constant of this material is identical to that of GaAs. This offers the possibility to develop these nanostructures directly on GaAs substrates.

Prior to this work, almost exclusively InP quantum dots embedded in AlGaInP barriers have been realized. These were grown using molecular beam epitaxy (MBE) and metalorganic chemical vapour deposition (MOCVD). The emission wavelength of these quantum dots and the lasers based on them lay in the red spectral range and was

controlled by the amount of material deposited and interdiffusion of atoms between the quantum dots and the barriers. A variation of the amount of material deposited lead to a change of the quantum confinement in these structures and thus to a change of the emission energy. Interdiffusion processes take place during the overgrowth of quantum dots with MOCVD, as a consequence of the relatively high growth temperatures. This leads to an exchange of atoms between the aluminium containing barriers and the quantum dots and thus to a shift of emission energy through the variation of the bandgap of the quantum dots.

In this work, (Al)InP quantum dots were grown using gas-source MBE. The composition of the quantum dots, in this case the aluminium content, was tailored directly during deposition. This lead to direct control of the emission wavelength through the composition. Using this approach, low temperature emission between 560 nm and 630 nm could be achieved. While pure InP quantum dots showed a very high areal density of $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, the density decreased rapidly with increasing aluminium content. Since a high quantum dot areal density is an important parameter for high performance lasers, approaches were developed to increase the areal densities at higher aluminium contents. Using a special deposition cycle and a higher amount of material deposited, the density could again be increased to $8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. The smaller transition energy of these larger quantum dots was compensated by a further increase of the aluminium concentration. This shows, that a direct control of the composition offers an additional degree of freedom for directly manipulating the morphology and emission energy of AlInP quantum dots without depending on interdiffusion processes.

Based on such quantum dots, semiconductor lasers have been realized, emitting between 660 nm and 730 nm at room temperature. Broad-area lasers processed on these structures exhibit transparency current densities below 700 A/cm^2 and modal gain coefficients of 111 cm^{-1} . A comparison between a laser based on quantum dots formed by 3.6 monolayers of $\text{Al}_{0.05}\text{In}_{0.95}\text{P}$ with a laser based on quantum dots formed by 5.0 monolayers of $\text{Al}_{0.10}\text{In}_{0.90}\text{P}$ suggests that active layers of larger quantum dots with higher aluminium contents lead to lasers with better performance at similar emission wavelength. In this comparison, the transparency current density could be reduced by over 450 A/cm^2 to 688 A/cm^2 and the internal quantum efficiency could be increased by a factor of 2 to 18%.

For continuous-wave operation at room temperature, ridge waveguide lasers based on these quantum dots have been fabricated exhibiting threshold currents below 40 mA and maximum output powers of about 7 mW per facet.

In chapter 4 quantum dots in AlGaP barriers grown on GaP substrate are presented. AlGaP has the widest bandgap of all nitrogen-free III-V semiconductors, which makes it a promising material for the realization of optoelectronic devices in the visible yellow-green spectral range. In this range several important applications exist, such as projectors using the red-green-blue colour scheme and photodynamic therapy. Howe-

ver, up to now only emitters with relatively low efficiency exist at these wavelengths. As another aspect, GaP has a very similar lattice constant as Si, thus it is possible to grow GaP on Si wafers pseudomorphically. This offers the possibility of GaP based optoelectronic devices that can be integrated in the widely used silicon technology.

Prior to this work there had been a number of publications on InP and GaInP quantum dots on GaP. However, compared to other material systems, mainly GaInAs/GaAs, the GaInP/GaP material system is still not very deeply understood. In this work GaInP quantum dots with various Ga contents have been realized, mostly based on works on InP quantum dots grown on GaP with gas-source MBE. Here, the quantum dot areal density, which is important in applications like light emitting diodes and lasers, could be increased to a record value of $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Also, the low temperature luminescence properties of these quantum dots were investigated and the luminescence efficiency was associated with quantum dot morphology. The quantum dots emit around 610 nm and show a strong dependency of the luminescence on the dimensions. In the next step aluminium was incorporated into the quantum dots and the emission wavelength was shifted by over 35 nm down to 575 nm.

Since the quantum dots are embedded in barriers, which have an indirect bandgap, a non-trivial band alignment within these structures is expected. Especially the energetic levels of electrons and holes and the recombination mechanism is widely discussed in literature. Theoretical and experimental work has been published, that assumes an indirect type-II transition. Other publications suggest direct type-I transitions or transitions between different crystal-phases of GaInP. In this work, numerical 3D-simulations are employed to calculate the band alignment including strain and internal fields. Also, ground state wavefunctions of charge carriers have been determined. A thorough comparison between theory and experiment connects the measured emission wavelength and luminescence intensities with calculated transition energies and wavefunction overlaps. The presented data suggest that the emission observed originates from a transition that is indirect in real-space and in k -space. This result is verified by further experiments that investigate the influence of AlGaP barriers on quantum dot emission.

Based on these results, an approach is introduced theoretically, that optimizes the quantum dots regarding the intensity and temperature stability of the emission by closely stacking a number of quantum dot layers. Subsequently, this approach is experimentally realized, showing an increase of the maximum temperature of photoluminescence to 180 K and a rise of intensity by a factor of over 90. Regarding the number of stacked layers, this corresponds to an increase of luminescence intensity of a factor 4.3 per quantum dot layer.

Furthermore, the electrical properties of doped GaP are investigated. With optimized contact layers, the resistance of the contacts could be lowered by about a factor of 100. Finally, all results obtained were combined in a laser structure based on GaP. Threshold could not be reached in this laser structure, but electroluminescence could be measured showing a good agreement with the results obtained by photoluminescence.

1 Einleitung

Trifft ein Lichtteilchen auf das menschliche Auge, so passiert es zunächst verschiedene lichtdurchlässige Schichten, wird von der Linse abgelenkt und schließlich in Sinneszellen auf der Netzhaut absorbiert, wo es über chemische Prozesse einen elektrischen Impuls erzeugt. Dieser wird zum Gehirn weitergeleitet und sorgt für einen Sinneseindruck, das Sehen. Dabei ist ein grundlegendes Merkmal des wahrgenommenen Lichts die Farbe. Umso faszinierender ist die Tatsache, dass sich die Lichtteilchen unterschiedlicher Farben letztendlich nur in einem physikalischen Merkmal unterscheiden: Der Oszillationsfrequenz des elektrischen Feldes oder, im Ortsraum betrachtet, der Wellenlänge des Lichts [Mes04]. Dabei ist die Wellenlänge und deren Verteilung eine grundlegende Eigenschaft aller Lichtquellen und bei weitem nicht nur für den sichtbaren Spektralbereich relevant, welcher sich in Einheiten der Wellenlänge ausgedrückt von etwa 390 nm (violett) bis 790 nm (rot) erstreckt.

Eine besondere Lichtquelle, die immer mehr Wellenlängenbereiche für sich erschließt, ist dabei der Laser. Dieser emittiert Licht, welches durch stimulierte Emission verstärkt wird und dabei ganz einzigartige Eigenschaften, wie eine extrem hohe Farbreinheit, große Parallelität sowie eine sehr hohe Kohärenzlänge aufweist [Hak10]. Nach der Realisierung des ersten funktionsfähigen Lasers durch T.H. Maiman 1960 [Mai60], welcher im optisch roten Bereich bei 694 nm emittierte, und mittlerweile 50 Jahren andauernder Innovation und Entwicklung, haben Laser enorme Bedeutung in Wissenschaft, Technik und der Gesellschaft erreicht. Treibende Elemente der Weiterentwicklung waren dabei vor allem die Erfindung und stetige Verbesserung von Halbleiterlaserdioden, welche einen überwältigenden Grad an Miniaturisierung und Effizienzsteigerung zuließen [Hal62, Nat62]. So war nach der ersten Herstellung eines Halbleiterlasers aus Volumenmaterial 1962 die Erfindung der Doppel-Heterostruktur ein großer Meilenstein, da diese zum ersten Mal den Dauerstrichbetrieb ermöglichte [Alf63, Kro01]. 2001 erhielten Alferov und Kroemer, welche die Doppel-Heterostruktur 1963 unabhängig voneinander vorgeschlagen hatten, für ihre Entdeckung den Nobelpreis für Physik [Alf01].

Die weitere Entwicklung der Halbleiterlaser geht Hand-in-Hand mit der stetigen Verbesserung der Epitaxiemethoden wie der Molekularstrahleptaxie (MBE) und der Metallorganischen Gasphasenepitaxie (MOCVD), welche immer dünnere Schichten mit immer besseren Kristallqualitäten zuließen [Her89, Str99]. Nur durch diese Fertigungstechnologien gelang 1975 die Herstellung des ersten Quantenfilmlasers, der es durch die geschickte Anordnung extrem dünner GaAs- und AlGaAs-Schichten ermöglichte

quantenmechanische Effekte, die beim Einsperren eines Teilchens in ein laterales Potential auftreten, gezielt auszunutzen [Zie75]. Die so geänderten Zustandsdichten und Energieniveaus im Halbleiter ermöglichten Laser mit bisher nicht erreichbaren Betriebsstromdichten.

Anfang der 1980er Jahre sagten Arakawa und Sakaki durch theoretische Betrachtungen voraus, dass eine weitere Miniaturisierung der aktiven Zone von Halbleiterlasern deren Eigenschaften weiter verbessern würde. Dies sollte durch die Verwendung von sehr kleinen Strukturen, die Ladungsträger in allen drei Raumrichtungen in ein Potential einschließen, ermöglicht werden. So wären durch diese, wenig später als Quantenpunkte bezeichnete Strukturen, abermals niedrigere Betriebsstromdichten, sehr hohe Effizienzen und vor allem eine von der Betriebstemperatur praktisch unabhängige Schwelle möglich [Ara82, Asa86].

Die technische Realisierung solcher Bauteile ging ebenfalls wieder einher mit der andauernden Weiterentwicklung der Herstellungsmethoden dieser „künstlichen Atome“ [Bim99b]. Anfangs wurden noch Strukturierung und Ätzen von Volumenmaterial zum Erzeugen von Quantenpunkten verwendet, was zu vielen Defekten und praktisch nicht brauchbaren Quantenpunkten führte [Bim99b]. Laser, welche auf so hergestellten Quantenpunkten basierten, zeigten sehr hohe Schwellstromdichten [Hir94]. Später nutzte man einen selbstorganisierten Prozess aus, der über lange Zeit schon bekannt, jedoch in der Kristallzucht eher als störend empfunden wurde: Wächst man Materialien mit unterschiedlichen Gitterkonstanten epitaktisch aufeinander, so baut sich die anfänglich vorhandene Verspannung durch die Bildung von kleinen Inseln ab. Bei geeigneten Herstellungsbedingungen sind diese frei von Gitterfehlern und kohärent verspannt [Bim99b]. Die so hergestellten Quantenpunkte eignen sich nicht nur für grundlegende physikalische Untersuchungen, die dem besseren Verständnis der Quanteneffekte in Festkörpern dienen, sondern auch zur Herstellung von optoelektronischen Bauteilen wie beispielsweise Quantenpunktlasern. Seit der technischen Realisierung des ersten Lasers basierend auf selbstorganisierten Quantenpunkten im Jahre 1994 durch Kirstaedter *et al.* [Kir94] nähern sich deren Eigenschaften immer mehr den theoretisch vorhergesagten an [Led00].

Auf Diodenlasern, welche auf Quantenpunkten und vor allem Quantenfilmen beruhen, basiert ein großer Teil der heute selbstverständlichen Technologie, die wir täglich nutzen. Dabei ist auch hier die Erschließung und vor allem die genaue Kontrolle der Emissionswellenlänge von entscheidender Bedeutung.

So wären Datenspeicher mit heutiger Kapazität und den heutigen geringen Kosten ohne Lasertechnologie nicht denkbar: In Bluray[®]-Playern werden Laserdioden mit einer Emission im blauen Spektralbereich bei 405 nm verwendet. DVDs und CDs werden im roten Spektralbereich jeweils bei 635 nm und 780 nm gelesen [Rot07]. Auch die optische Faserkommunikation, die das Rückgrad des Internets bildet, basiert auf La-

serlicht: Infrarotlaser mit Wellenlängen von $1,3\ \mu\text{m}$ und $1,55\ \mu\text{m}$ sorgen hier für enorme Datenraten [Kei00]. Anwendungen in der optischen Kommunikation profitieren dabei von den einzigartigen Eigenschaften der Quantenpunktlaser wie hoher differentieller Verstärkung und kleinem Henry-Faktor. Doch auch in der Materialbearbeitung spielen Halbleiterlaser im infraroten Bereich zwischen $800\ \text{nm}$ und $1000\ \text{nm}$ mit Ausgangsleistungen von mehreren $10\ \text{Watt}$ pro Laser (und zu Barren zusammengefasst) eine enorme Rolle für industrielles Schweißen und Schneiden [Niz99]. Noch größere Wellenlängen von $2\ \mu\text{m}$ bis über $10\ \mu\text{m}$ werden für optische Gasdetectoren für Prozesskontrolle und Sicherheitsanwendungen benötigt. Gerade hier ist eine extrem genaue Kontrolle der Emissionswellenlänge unverzichtbar [Leh08, Fuc10].

Betrachtet man diese Reihe von Anwendungen, die sich noch lange fortsetzen ließe, so ist es erstaunlich, dass gerade mitten im optisch Sichtbaren ein spektraler Bereich existiert, der noch nicht von zufriedenstellend effizienten und direkt emittierenden Halbleiterlasern abgedeckt wird: Im grünen bis in den grün-gelben Bereich zwischen $530\ \text{nm}$ und $590\ \text{nm}$ werden bis jetzt vor allem Emitter verwendet, die zwar durch Halbleiterlaser gepumpt werden, jedoch ihre erwünschte Emissionswellenlänge nur durch die Konversion des Lichts in speziellen Festkörperkristallen erreichen [Sch11]. Laser in diesem Spektralbereich sind jedoch sehr erstrebenswert, da man echte grüne Emitter für die Realisierung von Laserprojektoren nach dem rot-grün-blau-Schema (RGB) benötigt und zudem im gelben Spektralbereich einige medizinische Anwendungen existieren [Gre10]. Zwar wurden mit dem InGaN/GaN-Materialsystem in letzter Zeit enorme Fortschritte zur Realisierung von direkt grün und gelb emittierenden Lasern erzielt, jedoch sind diese ihren Pendanten mit roter und blauer Emission im Bezug auf Betriebsströme und Effizienzen weiterhin unterlegen [Avr10, Gre10].

Diese Arbeit befasst sich mit der Herstellung und Charakterisierung von Quantenpunktstrukturen, die alle auf den Atomsorten Al, Ga, In und P basieren. Je nach der Kombination dieser Atome zu binärem AlP, GaP, InP, ternären AlGaP, AlInP, GaInP oder sogar quaternären AlGaInP lassen sich Materialien mit unterschiedlicher Gitterkonstante, Bandstruktur und Emissionswellenlänge vom grünen bis in den infraroten Spektralbereich realisieren. Die Herstellung dieser Strukturen erfolgte stets mittels MBE und der Fokus lag dabei auf der grundlegenden Untersuchung aber auch auf der anwendungsrelevanten Optimierung dieser Quantenpunkte. Dabei ist die Arbeit wie folgt aufgebaut:

In Kapitel 2 werden zunächst die theoretischen Grundlagen behandelt, die für das Verständnis der Fabrikations- und Charakterisierungsmethoden nötig sind. Dabei wird das verwendete Materialsystem vorgestellt und auf die Eigenschaften von Quantenpunkten und Halbleiterlasern eingegangen. Schließlich werden die Grundlagen der Herstellung von Quantenpunkten mittels MBE und die zahlreichen Charakterisierungsmethoden skizziert. Kapitel 3 befasst sich mit der Optimierung von AlInP-Quantenpunkten und deren Anwendung in Quantenpunktlasern, welche auf GaAs-Substrat hergestellt wur-

den. Dabei wird auf die Vorteile von ternären AlInP-Quantenpunkten eingegangen und eine Methode zur Beeinflussung der Emissionswellenlänge und Lasereigenschaften durch direkte Kontrolle der Zusammensetzung der Quantenpunkte diskutiert. Basierend auf Photolumineszenzproben werden Morphologie und Emissionseigenschaften dieser Quantenpunkte analysiert. Auf diesen Strukturen basierend werden Laserdioden vorgestellt, welche im roten Spektralbereich zwischen 660 nm und 750 nm emittieren. Derartige Laser finden beispielsweise Anwendung in der Medizin, wo mittels Photodynamischer Therapie mit roten Lasern exakt definierter Wellenlänge Tumore behandelt werden können, ohne umliegendes Gewebe zu schädigen [Roy03].

In Kapitel 4 werden (AlGa)InP-Quantenpunkte beschrieben, welche auf GaP-Substrat hergestellt wurden. GaP ist ein indirekter Halbleiter, der eine sehr ähnliche Gitterkonstante wie Si besitzt. Dies macht GaP zu einem vielversprechenden Material für die Integration von optoelektronischen Bauelementen auf konventionellen Elektronikchips [DL10]. Zudem besitzt GaP bzw. der ternäre Verbindungshalbleiter AlGaP die größte Bandlücke aller III-V-Halbleiter mit Ausnahme der Nitride, was dieses Materialsystem zu einem möglichen Kandidaten für die Realisierung von Quantenpunktlasern im gelbgrünen Spektralbereich macht. Durch die indirekte Bandstruktur von AlGaP und die Einbettung von direkten Quantenpunkten darin, ist ein nicht-trivialer Bandverlauf zu erwarten. So wird in der Literatur vor allem die Lage der Energieniveaus von Elektronen in der Struktur diskutiert und die daraus resultierenden Übergänge. Dabei gibt es theoretische und experimentelle Veröffentlichungen, die von einem indirekten Typ-II-Übergang ausgehen [Wil98, Ing03]. Andere Untersuchungen führen die Lumineszenz auf direkte Typ-I-Übergänge [Dew09, Goñ03] in den Quantenpunkten oder auf Übergänge in unterschiedlichen Kristallphasen von GaInP zurück [Lee97]. Zusammen mit der Tatsache, dass dieses Materialsystem verglichen mit z.B. GaAs immernoch relativ wenig erforscht ist, beschäftigt sich dieses Kapitel zu einem großen Teil mit der Modellierung und dem Verständnis der Lumineszenzeigenschaften dieser Quantenpunkte. Dabei wird jedoch eine spätere Anwendung in der Optoelektronik nicht außer Acht gelassen. Im Zuge dessen wird auch auf Ansätze für die Optimierung der Lumineszenzeffizienz sowie die Untersuchung von dotierten und elektrisch betriebenen Strukturen bis hin zu Laserstrukturen eingegangen und schließlich werden diese Ansätze auch experimentell untersucht.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Das AlGaInP-Materialsystem

Alle in dieser Arbeit epitaktisch hergestellten und untersuchten Halbleiterstrukturen basieren auf AlP, GaP und InP bzw. Mischungen aus diesen binären Halbleitern nach der Summenformel $\text{Al}_y\text{Ga}_x\text{In}_{1-x-y}\text{P}$. Hier sollen deshalb kurz die Eigenschaften dieser Halbleiter vorgestellt werden. Außerdem wird auf die Besonderheiten und speziellen Eigenschaften der entsprechenden Verbindungen eingegangen und deren Bedeutung für den später folgenden Experimentaltail dieser Arbeit erläutert.

2.1.1 Binäre Verbindungen

Die direkten Bandlücken der binären Verbindungshalbleiter AlP, GaP und InP reichen bei Tieftemperatur von 1,42 eV (InP) bis 3,63 eV (AlP), wodurch diese theoretisch den Spektralbereich von blau bis ins Infrarote abdecken können [Vur01]. AlP und GaP sind jedoch indirekte Halbleiter, was bedeutet, dass sich das Maximum des Valenzbandes innerhalb der ersten Brillouinzone an einer anderen Position befindet als das Minimum des Leitungsbandes [Iba08]. Lediglich InP besitzt eine direkte Bandlücke, das Maximum des Valenzbandes und das Minimum des Leitungsbandes liegen beide in der Mitte der ersten Brillouinzone, welche mit Γ bezeichnet wird. Veranschaulicht wird dies in Abbildung 2.1, in der die Bandstrukturen von AlP, GaP und InP dargestellt sind. Das Maximum des Valenzbandes von AlP bzw. GaP liegt ebenfalls in der Mitte der Brillouinzone, am Γ -Punkt, während das Minimum des jeweiligen Leitungsbandes jedoch nahe am X-Punkt liegt. Dieser markiert genau den Rand der ersten Brillouinzone entlang der $\langle 100 \rangle$ -Achsen und liegt bei $|\vec{k}| = 2\pi/a$, wobei a die Gitterkonstante des jeweiligen Materials bezeichnet [Kit05]. Eine unterschiedliche Position im reziproken Raum bedeutet dabei über die Beziehung $\vec{p} = \hbar\vec{k}$ auch einen unterschiedlichen Quasiimpuls der Ladungsträger. Da Photonen im hier relevanten Spektralbereich nur einen vergleichsweise geringen Impulsübertrag leisten können, sind optische Dipolübergänge im Halbleitervolumenmaterial nur zwischen Elektronen und Löchern mit nahezu gleichem Impuls möglich [Kit05]. Erst wenn ein Phonon als drittes Teilchen am Übergang beteiligt ist, kann dies den nötigen Impuls liefern, um auch Übergänge von Elektronen und Löchern an unterschiedlichen Positionen im reziproken Raum zu ermöglichen. Die Bandstrukturen in Abbildung 2.1 sind alle so normiert, dass der Energienullpunkt am Maximum des Valenzbandes liegt. Diese Betrachtungsweise reicht aus, wenn man

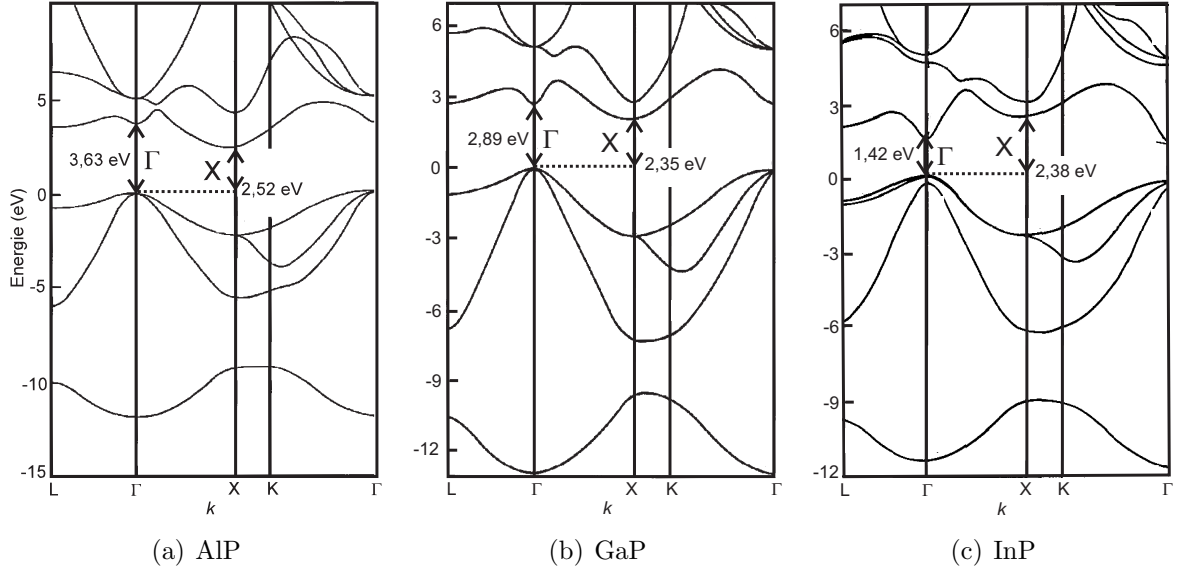


Abbildung 2.1: Bandstrukturen von (a) AlP, (b) GaP und (c) InP bei 0 K. Die Energieskala ist auf das Maximum des Valenzbandes normiert (aus [LB88]).

energetische Abstände in einem einzigen Volumenhalbleiter bestimmen möchte. Fügt man jedoch mehrere Halbleiter zu einer Heterostruktur zusammen, so ist auch die relative Lage der elektronischen Bänder der einzelnen Halbleiter zueinander von Bedeutung [Sze07]. Die Größe, die in Näherung die Lage der Valenzbänder auf der Energieskala zueinander vorgibt, wird als Valenzbanddiskontinuität oder Valenzbandoffset (VBO) bezeichnet. Dabei wird definitionsgemäß der VBO vom Verbindungshalbleiter mit der niedrigsten Bandlücke, Indiumantimonid (InSb), gleich Null gesetzt und die VBOs aller übrigen Halbleiter relativ dazu gemessen. Hiernach beträgt der VBO von AlP -1,74 eV, der von GaP -1,27 eV und der von InP -0,94 eV [Vur01].

2.1.2 Ternäre und quaternäre Verbindungen

Mischt man jeweils zwei der Verbindungshalbleiter AlP, GaP und InP, so entstehen ternäre Verbindungen der Form $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$, $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ oder $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$. Dabei weisen diese ternären Verbindungen Eigenschaften auf, welche zwischen den Eigenschaften der einzelnen binären Halbleiter liegen. Eine bestimmte Eigenschaft F einer Verbindung der allgemeinen Form $(\text{AD})_x(\text{BD})_{1-x}$ kann dabei nach der quadratischen Formel

$$F_{ABD}(x, C_F) = xF_{AD} + (1-x)F_{BD} - x(1-x)C_F \quad (2.1)$$

bestimmt werden [Vur01]. Dabei ist F_{AD} und F_{BD} der Wert dieser Eigenschaft für die binären Halbleiter AD und BD, F_{ABD} die Eigenschaft des ternären Halbleiters und C_F der sogenannte Bowing-Parameter, der den quadratischen Anteil am Zusammenhang der Eigenschaften der einzelnen Halbleiter beschreibt. Diese Formel stellt eine Erweiterung des Gesetzes von Vegard dar, welches den linearen Zusammenhang der Gitterkonstanten eines binären Verbindungshalbleiters von der Zusammensetzung beschreibt

[Veg21]. Durch die Einführung des quadratischen Terms wird dieses Gesetz auf allgemeine Eigenschaften von Verbindungshalbleitern erweitert [VV70]. Eine grundsätzliche Schwierigkeit bei diesem Vorgehen ist allerdings, dass Bowing-Parameter bei weitem nicht für alle Eigenschaften der Halbleitermaterialien bekannt sind [Vur01].

Während $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$ für alle Werte von x ein indirekter Halbleiter ist, ergibt sich für $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ und $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ die Besonderheit, dass diese erst ab bestimmten Werten von x indirekt werden. Dies folgt aus der Tatsache, dass InP ein direkter Halbleiter ist, während AlP und GaP indirekte Bandlücken besitzen. Der genaue Wert von x , bei dem der Übergang direkt – indirekt auftritt, hängt zudem mit dem Bowing-Parameter für die Abhängigkeit der direkten und indirekten Bandlücken der einzelnen Halbleiter zusammen. Auch kann die Verspannung einen direkten Einfluss darauf haben, ob die Legierung direkt oder indirekt ist [Wil98]. Im Fall eines unverspannten Volumenhalbleiters findet der Übergang für $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ bei etwa $x = 0,4$ statt, für $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ bei $x = 0,7$ (siehe Abbildung 2.2) [Vur01].

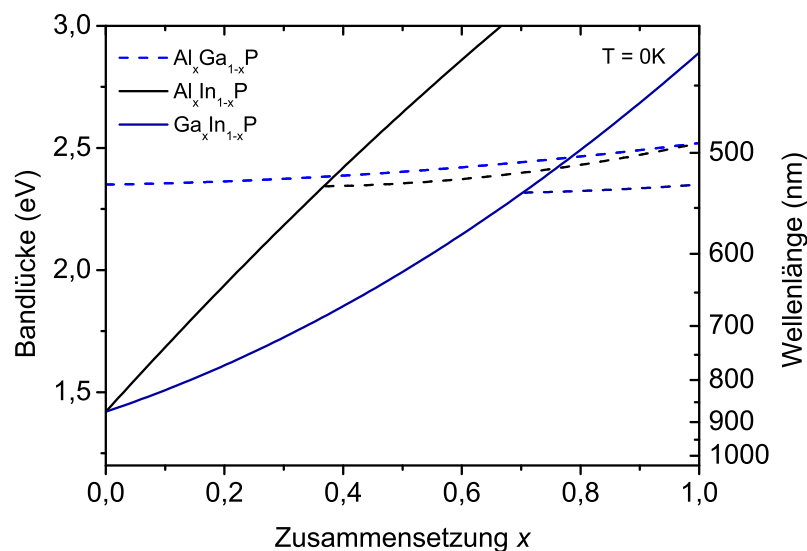


Abbildung 2.2: Bandlücken ternärer Halbleiterlegierungen im Phosphor-System. Durchgezogene Linien bezeichnen direkte Bandlücken, gestrichelte indirekte.

Eine weitere Besonderheit dieses Materialsystems liegt darin, dass die Gitterkonstante für bestimmte Kompositionen von $(\text{Al,Ga})\text{InP}$ identisch mit der von Galliumarsenid (GaAs) ist. Dies ermöglicht es, $(\text{Al,Ga})\text{InP}$ pseudomorph auf GaAs abzuscheiden und so deutlich höhere Bandlücken und Einschlusspotentiale zu erreichen, als es im (direkten) AlGaAs -System möglich wäre [Sco79, Sco80]. Im Falle von $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ erhält man für $x = 0,51$ die gleiche Gitterkonstante wie GaAs , im Falle von $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ muss $x = 0,52$ betragen [Vur01]. Wie man an den sehr ähnlichen Werten von x bereits erkennt, haben AlP und GaP sehr ähnliche Gitterkonstanten, was das pseudomorphe Wachstum von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$ auf GaP-Substrat für alle Werte von x in nahezu beliebiger

Schichtdicke ermöglicht. Zudem ist aber auch der Austausch von Ga-Atomen durch Al-Atome in GaInP praktisch ohne Beeinflussung der Verspannung im System möglich. Damit kann die Bandlücke und die Verspannung von (Al,Ga)InP in einem weiten Bereich unabhängig voneinander eingestellt werden; es ergibt sich das quaternäre Material $\text{Al}_y\text{Ga}_x\text{In}_{1-x-y}\text{P}$.

In dieser Arbeit wird das quaternäre Material $\text{Al}_y\text{Ga}_x\text{In}_{1-x-y}\text{P}$ sowohl für das Quantenpunktwachstum auf GaP als auch als Barrierenmaterial für das pseudomorphe Wachstum auf GaAs in der Zusammensetzung $(\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x)_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ verwendet. Bei quaternären Materialien kann man Gleichung (2.1) nicht mehr ohne Weiteres einsetzen. Es besteht jedoch die Möglichkeit, diese Gleichung für quaternäre Materialien zu erweitern und in Form einer Matrixgleichung darzustellen [Don03]. Die Eigenschaft $F(x, y)$ für eine Halbleiterlegierung ist dann gegeben durch:

$$F(x, y) = \begin{pmatrix} y & y(1-y) & 1-y \end{pmatrix} \begin{pmatrix} F_1 & C_{12} & F_2 \\ C_{14} & D & C_{23} \\ F_4 & C_{34} & F_3 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 1-x \\ x(1-x) \\ x \end{pmatrix}. \quad (2.2)$$

Dabei bezeichnet F_i jeweils die Eigenschaft der binären Halbleiter, C_{ij} die Bowing-Parameter für die ternären Mischkristalle und D den quaternären Bowing-Parameter [Don03].

Die Übergangskonzentrationen für einen Übergang direkt – indirekt zu finden ist nun komplizierter, vor allem da viele der benötigten Bowing-Parameter, vor allem der quaternäre, experimentell nicht oder nur sehr ungenau bestimmt sind. Es existieren jedoch *ab initio*-Rechnungen, die diese Konzentrationen für das (Al,Ga)InP-Materialsystem numerisch bestimmen [Jun09].

2.1.3 Einfluss von Verspannung

Stellt man Halbleiterheterostrukturen her, so geschieht dies in den meisten Fällen mit Materialien, welche eine sehr ähnliche Gitterkonstante haben (so z.B. bei GaAs/AlGaAs oder GaAs/ $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$). Gerade zur Herstellung von Quantenfilmen und vor allem von QPen für optische Anwendungen verwendet man im Allgemeinen jedoch Materialien mit unterschiedlichen Gitterkonstanten (in dieser Arbeit z.B. InP/GaP). Welchen Einfluss dies auf die Morphologie und Bandstruktur der kombinierten Halbleiter hat, soll im Folgenden diskutiert werden, wobei diese Betrachtungen nur für kubische Einheitszellen gelten.

Wächst man ein Material mit größerer Gitterkonstante als der des Substrats auf dieses auf, so passt sich die Gitterkonstante der aufgewachsenen Schicht in der Ebene des Substrates zunächst an die Gitterkonstante des Substrats an, man spricht von pseudomorphem Wachstum (siehe Abbildung 2.3) [Sun09]. Überschreitet man eine Schichtdicke, die als kritische Schichtdicke bezeichnet wird, so kommt es bei geeigneter Wahl der

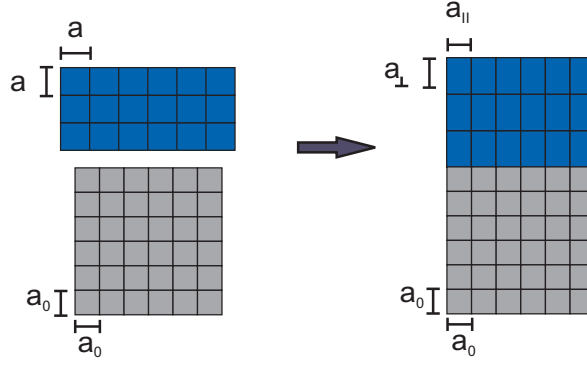


Abbildung 2.3: Pseudomorphes Wachstum einer dünnen Schicht auf ein Substrat mit unterschiedlicher Gitterkonstante.

Materialien und Wachstumsparameter zur Ausbildung von QPen, worauf später noch genauer eingegangen werden soll. Bleibt man jedoch unterhalb der kritischen Schichtdicke, so passt sich die Gitterkonstante der aufgewachsenen Schicht an die des Substrates an und wächst ohne Versetzungen auf, es gilt:

$$a_{\parallel} = a_0, \quad (2.3)$$

wobei a_{\parallel} die Gitterkonstante der Schicht in der Ebene ist und a_0 die Gitterkonstante des Substrats [Har05]. Die Schicht ist nun in der Ebene des Substrats druckverspannt, während die Gitterkonstante senkrecht dazu (also in Wachstumsrichtung) gedehnt wird. Dies führt dazu, dass sich die Gitterkonstante a_{\perp} senkrecht zum Substrat vergrößert [Wal89],

$$a_{\perp} = a \left[1 + \nu \left(\frac{a_0 - a}{a} \right) \right]. \quad (2.4)$$

Dabei ist a die ursprüngliche Gitterkonstante der Schicht und ν das sog. Poissonverhältnis

$$\nu = -2 \frac{C_{12}}{C_{11}} \quad (2.5)$$

mit den Elastizitätskonstanten C_{11} und C_{12} [Har05]. Die Verspannung ϵ_{\parallel} parallel zum Substrat und ϵ_{\perp} senkrecht dazu sind dann gegeben durch [Wal89]:

$$\epsilon_{\parallel} = \frac{a_0 - a}{a} \quad (2.6)$$

$$\epsilon_{\perp} = \nu \frac{a_0 - a}{a}. \quad (2.7)$$

Das ursprüngliche Volumen der Einheitszelle der Schicht ist im Allgemeinen nicht erhalten, die relative Volumenänderung $\Delta V/V$ ergibt sich zu [Wal89]

$$\frac{\Delta V}{V} = 2\epsilon_{\parallel} + \epsilon_{\perp}. \quad (2.8)$$

Da die elektronische Struktur eines jeden Festkörpers eine direkte Konsequenz der räumlichen Anordnung der Atome und deren Orbitale ist, welche den Festkörper aufbauen, ist es leicht einzusehen, dass die Volumenänderung der Einheitszelle und damit

die Änderung der Positionen der Atome im Halbleiter auch direkt einen Einfluss auf die Bandstruktur haben [Iba08]. Die Konsequenz ist ein Verschieben der Bänder auf der Energieskala, welche in der sog. „model-solid“-Theorie beschrieben werden kann [Wal89]. Die Änderung der Energie des entsprechenden Bandes ist dabei

$$\Delta E_V^{hyd} = a_v \frac{\Delta V}{V} \quad \text{bzw.} \quad (2.9)$$

$$\Delta E_C^{hyd} = a_c \frac{\Delta V}{V}, \quad (2.10)$$

wobei ΔE_V^{hyd} die Energieänderung im Valenzband (und zwar aller Valenzbänder, also Leichtloch-, Schwerloch-, und Split-Off-Band) und ΔE_C^{hyd} die Energieänderung des Leitungsbandes (und zwar an allen symmetrischen Punkten der Brillouinzone, Γ , L und X) darstellt. a_v und a_c bezeichnen das (hydrostatische) Deformationspotential für das Valenz- und Leitungsband.

Das hochgestellte „*hyd*“ in Gleichung (2.9) steht dabei für hydrostatisch, da die bisherigen Betrachtungen nur die hydrostatische Komponente der Verspannung berücksichtigten. Dieser Teil der gesamten Verspannung resultiert aus der oben angegebenen Volumenänderung der Einheitszelle und bezeichnet die Komponente, bei der die internen „Federn“, also die atomaren Bindungen im Halbleiterkristall, in die Richtung der Verspannungskraft drücken [Wal89]. Da das kubische Zinkblende-Gitter, das hier betrachtet wird, aber aus Tetraedern aufgebaut ist, entstehen auch immer Scherkräfte, die die Einheitszelle verwinden und so die Symmetrie des Kristalls brechen. Diese Scherkräfte führen zu einem Aufspalten der im unverspannten Fall entarteten Bänder und damit zu einer weiteren Änderung der energetischen Lage derselben. Für das Valenzband ergibt sich dabei am Γ -Punkt die Energieänderung des Schwerlochbandes (HH), des Leichtlochbandes (LH) und des Split-Off-Bandes (SO) zu [Wal89]

$$\Delta E_{HH}^{scher} = \frac{1}{3}\Delta_{SO} - \frac{1}{2}\delta E_\Gamma \quad (2.11)$$

$$\Delta E_{LH}^{scher} = -\frac{1}{6}\Delta_{SO} + \frac{1}{4}\delta E_\Gamma + \frac{1}{2}\sqrt{\Delta_{SO}^2 + \Delta_{SO}\delta E_\Gamma + \frac{9}{4}\delta E_\Gamma^2} \quad (2.12)$$

$$\Delta E_{SO}^{scher} = -\frac{1}{6}\Delta_{SO} + \frac{1}{4}\delta E_\Gamma - \frac{1}{2}\sqrt{\Delta_{SO}^2 + \Delta_{SO}\delta E_\Gamma + \frac{9}{4}\delta E_\Gamma^2}. \quad (2.13)$$

Dabei ist Δ_{SO} die Spin-Bahn-Aufspaltung und δE_Γ gegeben durch:

$$\delta E_\Gamma = 2b_\Gamma(\epsilon_\perp - \epsilon_\parallel)$$

mit b_Γ als Scherdeformationspotential am Γ -Punkt.

Bei direkten Halbleitern könnte man den Einfluss der Scherverspannung auf das Leitungsband vernachlässigen, da sich deren Leitungsbandminimum am Γ -Punkt befindet und dieser Punkt nur ein nicht entartetes Band besitzt. Bei indirekten Halbleitern wie GaP und AlP, die in dieser Arbeit von Bedeutung sind, befindet sich das Leitungsbandminimum jedoch nicht im Zentrum der Brillouinzone, sondern am Rand in der Nähe

des X-Punktes (siehe Abbildung 2.1). Dort gibt es sechs äquivalente Punkte, die im unverspannten Fall alle entartet sind. Hat die Verspannung jedoch eine Scherkomponente, so muss man das Leitungsband am X-Punkt ganz ähnlich wie die Valenzbänder am Γ -Punkt behandeln. Es ergibt sich [Wal89]:

$$\Delta E_X^{001} = \frac{2}{3}\Phi_X(\epsilon_{\perp} - \epsilon_{\parallel}) \quad \text{bzw.} \quad (2.14)$$

$$\Delta E_X^{100,010} = -\frac{1}{3}\Phi_X(\epsilon_{\perp} - \epsilon_{\parallel}). \quad (2.15)$$

Dabei zeigt sich, dass die zwei Komponenten in die $[001]$ - und $[00\bar{1}]$ -Richtung, E_X^{001} , energetisch genau umgekehrt aufspalten wie die Richtungen senkrecht dazu $E_X^{100,010}$. Φ_X ist das Deformationspotential des entsprechenden Halbleiters für das Leitungsband am X-Punkt. Sein Vorzeichen bestimmt, welche der Energieverschiebungen positiv und welche negativ ist.

Bisher wurde die Gitterkonstante des Substrats aufgrund der im Vergleich zur Schicht großen Dicke des Substrats als unverändert angenommen. Tatsächlich löst eine Kraft, die auf die verspannte Schicht wirkt, auch immer eine Gegenkraft aus, welche im Übergangsbereich auch das Gitter des Substrats beeinflusst. Die Folge ist, dass auch hier das Deformationspotential für eine Verschiebung und Aufspaltung der Bänder führt. Gerade dieser Übergangsbereich zwischen QPen und Matrix ist von entscheidender Bedeutung bei den in dieser Arbeit untersuchten AlGaInP/AlGaP-QP-Proben, man kann ihn jedoch nicht analytisch im Rahmen der model-solid-Theorie bestimmen [Wil98]. Daher wird in Abschnitt 4.5 die Energieverschiebung aufgrund der Verspannung für in AlGaP eingebettete AlGaInP-QPe numerisch berechnet. Man wird sehen, dass aufgrund des Deformationspotentials in AlGaP die Bänder in die Richtungen $E_X^{100,010}$ aus Gleichung (2.14) energetisch herabgesetzt werden, was zur Ausbildung von dreieckigen Quantentöpfen in der unmittelbaren Umgebung der QPe führt.

2.2 Niedrigdimensionale Systeme

2.2.1 Heterostrukturen

In Abschnitt 2.1 wurde kurz erläutert, dass es möglich ist, Materialien mit unterschiedlichen Bandlücken aber ähnlichen Gitterkonstanten aufeinander abzuscheiden und damit direkt nebeneinander anzuordnen. Eine solche Anordnung wird als *Heterostruktur* bezeichnet und ist in Abbildung 2.4 als Auftragung der Energie über den Ort z dargestellt.

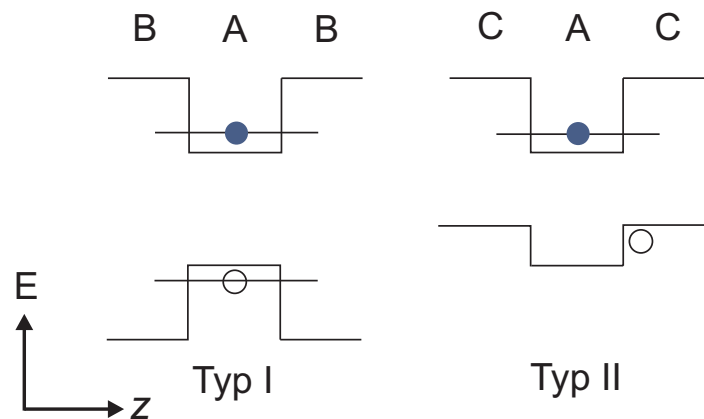


Abbildung 2.4: Anordnung von einem Material A zwischen den Materialien B bzw. C. Je nach Bandstruktur entsteht ein Typ-I- oder Typ-II-Bandverlauf (nach [Har05]).

Dabei sind in Abbildung 2.4 die in dieser Arbeit wichtigen Bandverläufe *Typ-I* und *Typ-II* dargestellt [Har05]. Beim Typ-I-Bandverlauf entsteht sowohl im Leitungsband als auch im Valenzband eine Potentialmulde für Ladungsträger (im Leitungsband für Elektronen, im Valenzband für Löcher), welche dann in der gleichen Halbleiterschicht eingeschlossen sind. Beim Typ-II-Bandverlauf ist nur eine Ladungsträgersorte wirklich eingeschlossen und beide sind örtlich getrennt. Es ist einleuchtend, dass für optoelektronische Bauelemente ein Typ-I-Bandverlauf wünschenswert ist, da hier die Wahrscheinlichkeit einer strahlenden Rekombination von Elektronen und Löchern sehr viel größer ist [Har05]. Dies hängt mit dem Überlappintegral zusammen, welches von der örtlichen Separation und der Ausdehnung der Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern abhängt.

Ist die Ausdehnung des Materials A in einer oder mehreren Raumrichtungen sehr gering, kommen Quanteneffekte zum Tragen. Man spricht dann von einem Quantenfilm (Schicht A ist in einer Dimension sehr dünn), bzw. Quantendraht (in zwei Dimensionen dünn) oder Quantenpunkt (in drei Dimensionen dünn). Dies ist nicht nur für das grundsätzliche Verständnis der physikalischen Vorgänge interessant, man kann diese Effekte auch nutzen, um die Eigenschaften von optoelektronischen Bauteilen gezielt zu verbessern. Zudem ist es durch den Welle-Teilchen-Dualismus der Ladungsträger

bei dünnen Schichten auch möglich, durch geschickte Anordnung von mehreren solcher Schichten effiziente Übergänge in Typ-II-Heterostrukturen zu generieren [Ola98].

2.2.2 Physik niedrigdimensionaler Systeme

Erzeugt man eine Halbleiterheterostruktur als dünne Schicht, so dass Ladungsträger parallel zu dieser Schicht weiterhin frei beweglich sind, jedoch in Wachstumsrichtung z auf einen Bereich in der Größenordnung der de-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger eingeschlossen sind, so kann man die Schrödingergleichung für ein solches Teilchen im 2-dimensionalen Quantenfilm schreiben als [Hak10]:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_x^*} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{\hbar^2}{2m_y^*} \frac{\partial^2}{\partial y^2} - \frac{\hbar^2}{2m_z^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} - eV(z) \right] \Psi(\vec{r}) = E\Psi(\vec{r}). \quad (2.16)$$

Dabei ist $\hbar = h/2\pi$, e die Elementarladung, $V(z)$ das Potential, in dem sich das Teilchen befindet und E der Energieeigenwert des Zustands $\Psi(\vec{r})$. Die de-Broglie-Wellenlänge berechnet sich nach

$$\lambda_{deBroglie} = \frac{h}{\sqrt{2m^*k_B T}}, \quad (2.17)$$

mit h als dem Planck'schen Wirkungsquantum, $m_{x,y,z}^*$ der effektiven Masse entlang der Richtungen x , y , z im Festkörper, k_B der Boltzmannkonstante und T der Temperatur. Die effektive Masse ist im Allgemeinen abhängig von der Richtung im Festkörper, weshalb hier eine Unterscheidung in die einzelnen Raumrichtungen vorgenommen wurde. Das Potential V wurde hier schon als $V(z)$ geschrieben, da bei einem 2D-Quantenfilm das Teilchen nur in z -Richtung eingeschlossen ist. Parallel zu dieser Schicht (in x - und y -Richtung), kann sich das Teilchen weiter frei bewegen, was einen Ansatz für $\Psi(\vec{r})$ in der Form

$$\Psi(\vec{r}) = \phi_n(z)e^{ik_x x + ik_y y} \quad (2.18)$$

nahe legt, wobei $k_{x,y}$ der Impulsvektor der Welle ist. Dieser Ansatz stellt ein Produkt aus einer noch unbekanntenen Wellenfunktion $\phi(z)$ und ebenen Wellen parallel zum Quantenfilm dar und separiert die Schrödingergleichung (2.16) in zwei Anteile:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_z^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} - eV(z) \right] \phi_n(z) = \epsilon_n \phi_n(z) \quad \text{und} \quad (2.19)$$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_x^*} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{\hbar^2}{2m_y^*} \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right] e^{ik_x x + ik_y y} = E_{xy} e^{ik_x x + ik_y y}. \quad (2.20)$$

Dabei liefert der erste Teil die Eigenfunktionen $\psi_n(z)$ und die Eigenwerte ϵ_n für die z -Richtung und der zweite Teil beschreibt die freie Bewegung von Teilchen parallel zum Quantenfilm mit der typischen quadratischen Dispersion

$$E_{xy} = \frac{\hbar^2}{2m_x^*} k_x^2 + \frac{\hbar^2}{2m_y^*} k_y^2. \quad (2.21)$$

Gleichung (2.19) stellt das bekannte quantenmechanische Problem eines Teilchens im Potentialtopf dar und liefert für unendlich hohe Wände Lösungen für die Energieeigenwerte nach [Hak10]

$$\epsilon_n = \frac{\hbar^2 \pi^2 n^2}{2m_z^* d_z^2}, \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (2.22)$$

Das niedrigste Energieniveau, $n = 1$, liegt also nicht direkt an der Bandkante, sondern ist um die Nullpunktsenergie zu höheren Energien hin verschoben. Außerdem hängen die Energieniveaus reziprok-quadratisch von der Ausdehnung der Quantenfilmschicht ab. Für jedes einzelne Energieniveau können sich die Teilchen jedoch frei parallel zur Schicht bewegen, was zur Folge hat, dass die gesamte $E(\vec{k})$ -Dispersion in der Effektivmassen-Näherung eine Schar von Parabeln darstellt, welche durch eine Summe aus den Gleichungen (2.21) und (2.22) beschrieben wird.

Der Formalismus, der hier für einen Einschluss in einer Dimension hergeleitet wurde, kann auch auf den Einschluss in zwei Dimensionen erweitert werden. Sog. Quantendrähte stellen eindimensionale Strukturen dar, welche die Ladungsträger in zwei Raumrichtungen einschließen. Die niedrigste Dimensionalität haben schließlich QPe, welche quasi-nulldimensionale Strukturen bilden, bei denen keine freie Beweglichkeit in eine Raumrichtung mehr möglich ist, die Energieeigenwerte sind in allen Raumrichtungen diskret und man erhält:

$$E_{0D} = E_{l,x} + E_{m,y} + E_{n,z}. \quad (2.23)$$

Hierbei stellen die einzelnen Energieterme die diskreten Werte nach Gleichung (2.22) mit den Quantenzahlen l , m , und n in den jeweiligen Richtungen des Einschlusses dar.

Neben dem Energiespektrum von Ladungsträgern hat die Dimensionalität der Struktur auch einen Einfluss auf die Zustandsdichte. Die Zustandsdichte gibt an, wie viele Zustände pro Energieintervall in einem Festkörper besetzt werden können. Sie ist eine grundlegende Eigenschaft von Halbleiterstrukturen, und hat einen großen Einfluss auf Halbleiterbauelemente. Die Abhängigkeit von der Energie ist gegeben durch

$$3D : \quad D_{3D}(E) \propto \sqrt{E} \quad (2.24)$$

$$2D : \quad D_{2D}(E) \propto \Theta(E) \quad (2.25)$$

$$1D : \quad D_{1D}(E) \propto E^{-1/2} \quad (2.26)$$

$$0D : \quad D_{0D}(E) \propto \delta(E). \quad (2.27)$$

Abbildung 2.5 zeigt schematisch den Verlauf der Zustandsdichte für unterschiedliche Dimensionalität nach obiger Gleichung. Im 3D-Fall ergibt sich ein wurzelförmiger Verlauf. Der Einfluss der Diskretisierung der Energie wird jedoch schon im 2D-Fall deutlich, wo $D(E)$ eine Stufenfunktion ist, deren Stufen bei den diskreten Energieniveaus liegen. Beim 1D-Fall ergibt sich für jedes Energieniveau eine inverser wurzelförmiger Verlauf, während für den 0D-Fall, wie er im QP vorliegt, schließlich δ -förmige Werte zu erwarten sind.

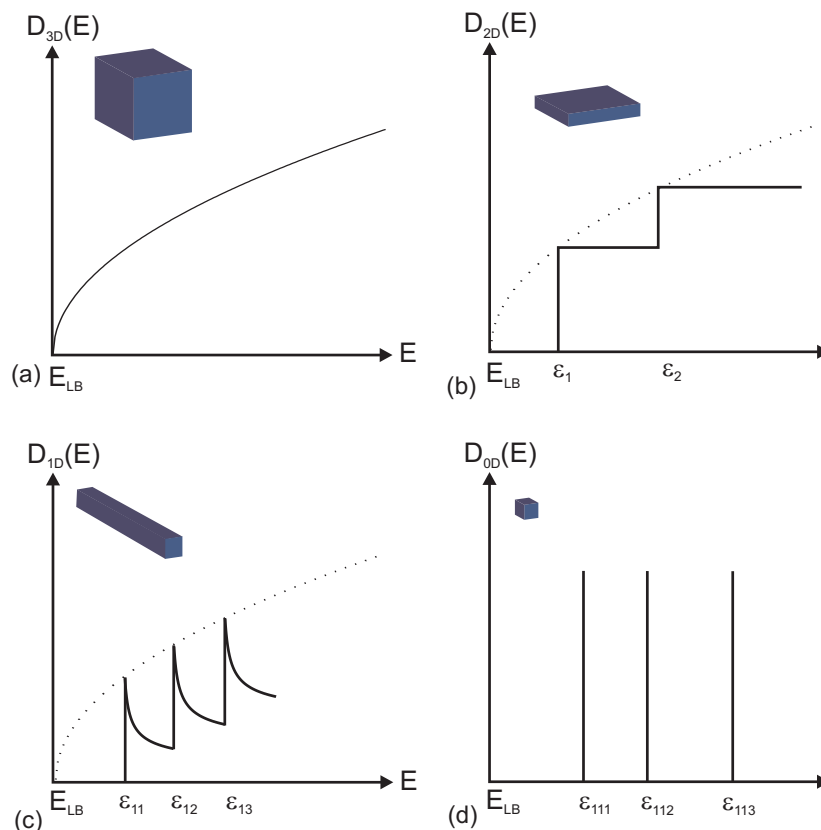


Abbildung 2.5: Elektronische Zustandsdichte im Leitungsband für einen Volumenhalbleiter (3D), einen Quantenfilm (2D), einen Quantendraht (1D) und einen Quantenpunkt (0D).

Reale Quantenpunkte

Da in dieser Arbeit QPe mittels MBE hergestellt und in Lasern zur Anwendung gebracht werden, lohnt sich ein kurzer Blick auf Einschränkungen und Änderungen, welche sich im Hinblick auf die elektronischen und optischen Eigenschaften von realen QPen ergeben.

Eine ungültige Annahme ist die Voraussetzung von unendlichen hohen Potentialwänden als Begrenzung zum Quantentopf, welcher vom QP gebildet wird, wie sie im vorherigen Abschnitt gemacht wurde. Tatsächlich ist das Einschlusspotential für Ladungsträger im QP nur so groß wie die Leitungsbanddiskontinuität zwischen QP- und Barrierematerial, wobei auch noch die Verspannung berücksichtigt werden muss, denn QP sind in der Regel kohärent verspannt. Zusätzlich sind die Ladungsträger durch den elektronischen Einschluss in ihrer Nullpunktenergie erhöht, was den effektiven energetischen Abstand zwischen unterstem Niveau und der Kante der Barriere zusätzlich verringert. Für einen Quantentopf mit endlich hohen Wänden lässt sich kein analytischer Ausdruck für die Energieniveaus mehr finden, man erhält eine implizite Gleichung, die sich entweder numerisch oder grafisch lösen lässt. Definiert man aber eine effektive Quantentopfbreite d_{eff} , in die die Höhe des Quantentopfes mit eingeht, so erhält man für

das Grundzustandsniveau im endlich hohen Potentialtopf die Energie [Chu95]

$$E = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{\pi}{d_{eff}} \right)^2. \quad (2.28)$$

Die endlich hohen Barrieren führen zu einer Ladungsträgerdynamik zwischen QPen und Barriere und auch dazu, dass Ladungsträger bei höheren Temperaturen thermisch aktiviert vom QP in die Barriere angeregt werden können. Die charakteristische Energie dafür ist die sog. Aktivierungsenergie E_A , welche nach [Chu95] experimentell zugänglich gemacht werden kann:

$$I_{lum}(T) = \frac{I_{lum,0}}{1 + e^{-\frac{E_A}{k_B T}}}. \quad (2.29)$$

Dabei ist $I_{lum}(T)$ die temperaturabhängige integrierte Lumineszenzintensität vom QP-Material und $I_{lum,0}$ die integrierte Intensität bei 0 K.

Reale QPe sind allerdings keine perfekten Würfel oder Kugeln im umgebenden Matrixmaterial, sondern meist linsenförmig oder pyramidal. Durch die dadurch unmögliche analytische Behandlung muss man auf numerische Methoden zur Berechnung der elektronischen Struktur zurückgreifen. Zudem befindet sich bei den meisten QPen an der Seite zum Substrat eine verspannte Benetzungsschicht, welche eine 2D-Struktur darstellt und die QP-Eigenschaften vom idealen 0D-Fall ebenfalls abweichen lässt. Das Hauptmerkmal von selbstorganisierten QPen, wie sie in dieser Arbeit verwendet wurden, ist aber die statistische Verteilung ihrer Größen, welche in guter Näherung die Form einer Gauß'schen Glockenkurve hat. Nach Gleichung (2.28) wirkt sich die Größe direkt auf die Energieniveaus im Quantentopf und damit auf die Übergangsenergie in den QPen und auf die Zustandsdichte aus [Ust03]. Schematisch ist dies in Abbildung 2.6 dargestellt.

Bei hinreichend kleinen Größen der QPe handelt es sich zwar immer noch um einzelne 0D-Strukturen, jedoch hat man es bei makroskopischen Untersuchungen und beim Einsatz in Lasern immer mit dem gesamten Ensemble von QPen zu tun, welches eine inhomogene Verbreiterung zeigt.

2.3 Halbleiterlaser

2.3.1 Grundprinzip eines Halbleiterlasers

Wie das Akronym LASER (*engl.* Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation) schon darlegt, basiert dessen Funktionsweise auf der Verstärkung von Licht durch stimulierte Emission von Photonen in einem aktiven Lasermedium. Grundsätzlich sind in einem optischen Medium jedoch verschiedene Möglichkeiten der Wechselwirkung von Elektronen und Löchern untereinander und mit Licht möglich, von denen

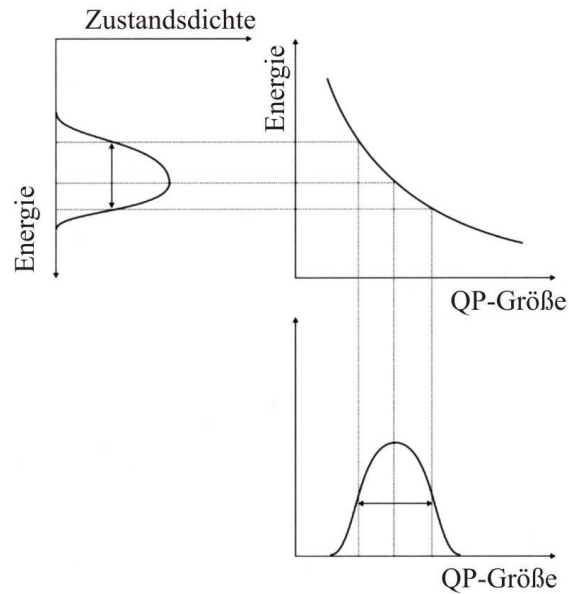


Abbildung 2.6: Die gaußförmige Größenverteilung selbstorganisierter QPe wirkt sich direkt auf die Energie und die Zustandsdichte des QP-Ensembles aus (nach [Ust03]).

die stimulierte Emission nur unter bestimmten Bedingungen die dominante ist. Mögliche Übergänge sind in Abbildung 2.7 dargestellt: Bei der spontanen Rekombination (c) geht ein vorher ins Leitungsband angeregtes Elektron unter Aussendung eines Photons spontan ins Valenzband über. Das ausgesendete Photon besitzt dabei eine zufällige Richtung und Phase und hat die Energie

$$h\nu = E_2 - E_1 = \Delta E,$$

mit der Frequenz ν des Lichtquants und h dem Planck'schen Wirkungsquantum. Bei der Absorption (a) regt ein in das Medium eingestrahktes Photon ein Elektron vom Valenz- ins Leitungsband an, es entsteht ein Elektron-Loch-Paar. Da dieser Übergang von einem Photon induziert ist, spricht man auch von einer stimulierten Absorption.

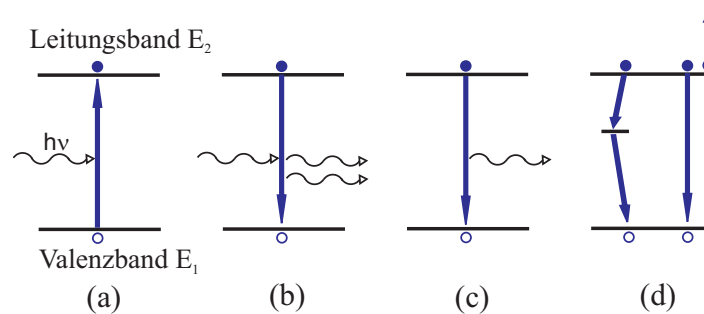


Abbildung 2.7: Mögliche Übergänge im Lasermedium: (a) (stimulierte) Absorption, (b) stimulierte Emission, (c) spontane Emission, (d) nichtstrahlende Rekombination (nach [Col95]).

Das beteiligte Photon muss ebenfalls die notwendige Bedingung $h\nu \geq \Delta E$ erfüllen. Bei der stimulierten Emission (b) handelt es sich für den im Laser erwünschten Prozess: Hier „stört“ ein eingestrahktes Lichtquant das System eines Elektron-Loch-Paares und es kommt zu einer Kopplung ans Lichtfeld. Bei der Rekombination wird ein Photon ausgesendet, welches die gleiche Energie, Phase und Richtung wie das zuvor eingestrahkte Photon besitzt. (d) stellt schließlich schematisch noch nichtstrahlende Rekombinationsprozesse dar, wie Rekombination an Störstellen oder Augerrekombination, welche als Verlustmechanismen in Halbleiterlasern präsent sind [Col95]. Betrachtet man die drei Rekombinationsmechanismen, bei denen Photonen beteiligt sind (Abbildung 2.7a–c), so erkennt man, dass die Absorption und die stimulierte Emission konkurrierende Prozesse sind. Zu positiver Verstärkung kann es also nur dann kommen, wenn die stimulierte Emissionsrate die Absorptionsrate überwiegt [Col95]. Daraus lässt sich leicht eine notwendige Bedingung für den Laserbetrieb ableiten: Soll die stimulierte Emission der dominante Prozess sein, so muss die Wahrscheinlichkeit, ein Elektron im Leitungsband anzutreffen größer sein als die, ein Elektron im Valenzband anzutreffen. Da dies der Besetzung der Energieniveaus im thermischen Gleichgewicht entgegengesetzt ist, spricht man von Besetzungsinversion. Man kann zeigen, dass dazu ein Drei- oder Vierniveau-System nötig ist, welches dann z.B. optisch gepumpt wird [Col95]. Diodenlaser bieten bei geeigneter Dotierung die einfache Möglichkeit, dieses Pumpen und die Besetzungsinversion durch einen Stromfluss durch die Diode zu erreichen. Dabei erhält man als Bedingung für die Besetzungsinversion [Col95]:

$$\Delta E_F = E_{F,L} - E_{F,V} > (E_2 - E_1) = h\nu \geq E_{gap}, \quad (2.30)$$

mit ΔE_F der Differenz der Quasi-Fermienergien im Leitungsband $E_{F,L}$ und Valenzband $E_{F,V}$ und E_{gap} der Bandlücke des Halbleiters. Um positive Verstärkung in einem Halbleitermedium zu erreichen, ist es also nötig das Material über einen Stromfluss so stark zu pumpen, dass die Aufspaltung der Fermi-Niveaus auf der p- und der n-Seite der Diode größer ist als die Bandlückenenergie des Halbleiters.

2.3.2 Schwellenbedingung

Neben der Besetzungsinversion als notwendige Laserbedingung bezüglich der Ladungsträgerstatistik benötigt man auch eine genügend hohe Rückkopplung der emittierten Photonen an den Laserübergang, um positive Verstärkung zu erzielen. Dies erreicht man in der Praxis durch einen sogenannten Resonator, welcher schematisch in Abbildung 2.8 dargestellt ist. Hier sorgen zwei Spiegel für eine Rückreflexion des ausgesendeten Lichts zurück in den Resonator, wodurch die Wechselwirkungsdauer mit dem aktiven Medium effektiv vergrößert wird. Die Spiegelverluste α_m berechnen sich dabei nach

$$\alpha_m = \frac{1}{L} \ln \frac{1}{R} \quad (2.31)$$

mit der Intensitätsreflektivität $R = r_1 r_2$, wobei $r_{1,2}$ die Amplitudenreflektivität der jeweiligen Facette darstellt. Für Halbleiterlaser können meist einfache Spaltfacetten verwendet werden, welche durch den Übergang Halbleiter–Luft bereits eine genügend hohe Reflektivität im Bereich von $R = 32\%$ bieten. Das aktive Medium (in Abbildung 2.8 in der Mitte des Resonators dargestellt) nimmt beim Halbleiterlaser nicht das gesamte Volumen des Resonators ein. Tatsächlich überlappt in realen Laserstrukturen das Lichtfeld nur etwa zu 0,01 - 0,1% mit der aktiven Zone [Col95]. Den Rest des Volumens nehmen im Wesentlichen Strukturen für die Wellenleitung ein. Durch die kleinen Dimensionen des aktiven Mediums in Halbleiterlasern muss das Lichtfeld nämlich auf diesen Bereich durch geeignete Modulation des Brechungsindex eingeschlossen werden, da ansonsten die optische Beugung die Mode extrem aufweiten würde.

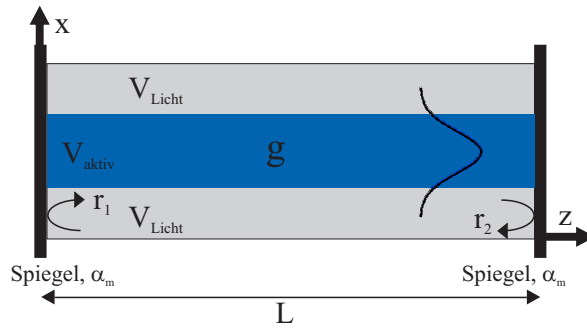


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung eines Laserresonators der Länge L mit Spiegelverlusten α_m .

Um die Schwellenbedingung zu erhalten betrachtet man nun einen gesamten Umlauf des Lichtfeldes im Resonator. Gleichen sich Verstärkung und Verluste gerade aus, so muss sich das elektrische Feld nach einem Umlauf genau reproduzieren. Betrachtet man die im Laserresonator propagierende optische Leistung, so erhält man:

$$R \cdot e^{(\Gamma g_{th} - \alpha_i)L} = 1. \quad (2.32)$$

Dabei stellt Γg_{th} die modale Verstärkung an der Schwelle dar, also diejenige Verstärkung, welche die Lichtmode aufgrund des Überlapps mit dem aktiven Medium ($\Gamma = V_{aktiv}/V_{Licht}$) und des Verstärkungskoeffizienten g tatsächlich erfährt. Diese Verstärkung ist in Gleichung (2.32) noch um die internen Verluste α_i verringert, welche die im Laserresonator vorherrschenden längenabhängigen Verlustmechanismen für Photonen zusammenfasst. Durch Umformung erhält man die Verstärkung an der Schwelle

$$\Gamma g_{th} = \alpha_i + \frac{1}{L} \ln \frac{1}{R} = \alpha_i + \alpha_m \quad (2.33)$$

mit den Spiegelverlusten α_m aus Gleichung (2.31). Um die Laserschwelle zu erreichen, muss die modale Verstärkung also gerade alle Verluste ausgleichen. Man kann zeigen, dass über der Laserschwelle im stationären Zustand die modale Verstärkung auf den

Wert von Γg_{th} festgesetzt ist, unabhängig vom Betriebsstrom der Laserdiode [Col95]. Dies ist auch anschaulich klar, da eine Verstärkung größer als die Verluste nach Gleichung (2.32) zu einem exponentiellen Anstieg der Lichtintensität im Resonator führen würde, was physikalisch nicht sinnvoll ist.

2.3.3 Schwellstrom und Kennlinie

Ratengleichungen

Um Aussagen über die Kennlinie und den nötigen Strom für Laseremission treffen zu können, ist es nötig die fundamentalen Ratengleichungen aufzustellen, die einen Halbleiterlaser beschreiben. Diese werden im Folgenden für Photonen und Ladungsträger gesondert erläutert. Dabei wird im Halbleiter von Ladungsneutralität ausgegangen, d.h. die Betrachtungen gelten für Elektronen wie für Löcher ($N = P$).

Betrachtet man zunächst die zeitliche Änderung dN/dt der Ladungsträgerdichte N , so kann man diese darstellen als [Col95]:

$$\frac{dN}{dt} = R_{gen} - R_{rek} = \frac{\eta_i I}{e V_{aktiv}} - R_{spon} - R_{ns} - R_{stim}. \quad (2.34)$$

Eine „Vernichtung“ von Ladungsträgern (R_{rek}) findet durch die Rekombinationsmechanismen R_{spon} (spontan), R_{ns} (nichtstrahlend) und R_{stim} (stimuliert) statt, wobei die stimulierte Rekombination die erwünschte darstellt. Generiert (R_{gen}) werden Ladungsträger durch den Strom I , der durch die Diode fließt. Dabei gibt die interne Quanteneffizienz η_i den Anteil der injizierten Ladungsträger an, die die aktive Zone erreichen, V_{aktiv} ist das Volumen der aktiven Zone und e die Elementarladung. Eine entsprechende Gleichung kann man auch für die Photonen in der Lasermode aufstellen [Col95]:

$$\frac{dN_P}{dt} = \Gamma R_{stim} + \Gamma \beta R_{spon} - \frac{N_P}{\tau_P}. \quad (2.35)$$

Für die Photonen in der Lasermode gibt es zwei Generationsmechanismen, ΓR_{stim} , der die stimulierte Emission beschreibt und $\Gamma \beta R_{spon}$, der den Bruchteil der Photonen angibt, die durch spontane Rekombination statistisch in die Lasermode eingestrahlt werden. Dieser Bruchteil wird durch den spontanen Rekombinationsfaktor β beschrieben, welcher in Halbleiterlasern typischerweise in der Größenordnung 10^{-5} – 10^{-4} liegt [Pet79]. Der Photonenverlust aus der Mode wird hier über eine Photonenzerfallsrate $1/\tau_P$ beschrieben, welche man nach $1/\tau_P = 1/\tau_i + 1/\tau_m = v_g(\alpha_i + \alpha_m)$ mit der Gruppengeschwindigkeit der Lichtwellen v_g in die Verlustkoeffizienten für die internen Verluste und die Spiegelverluste umschreiben kann. Drückt man nun noch die Rate der stimulierten Emission R_{stim} durch die Gruppengeschwindigkeit, den Verstärkungskoeffizienten und die Photonendichte aus ($R_{stim} = v_g g N_P$), so erhält man zwei gekoppelte Differentialgleichungen, aus denen sich alle stationären und dynamischen Eigenschaften

ableiten lassen [Col95]:

$$\frac{dN}{dt} = \frac{\eta_i I}{eV_{aktiv}} - (R_{spont}(N) + R_{ns}(N)) - v_g g N_P, \quad (2.36)$$

$$\frac{dN_P}{dt} = \Gamma v_g g N_P + \Gamma \beta R_{spont} - \frac{N_P}{\tau_P}. \quad (2.37)$$

Kenngrößen im stationären Fall

Im stationären Fall kann man aus den Ratengleichungen (2.37) die Strom–Leistungs–Kennlinie und einen Ausdruck für die Schwellstromdichte gewinnen. Durch eine Analyse dieser Gleichungen lassen sich aus einer geschickten Auftragung von experimentell gut zugänglichen Größen einige wichtige Kenngrößen für Halbleiterlaserdioden extrahieren.

Ein schematischer Verlauf der Ladungsträgerdichte N , der Verstärkung g und der Ausgangsleistung P einer Laserdiode in Abhängigkeit des Betriebsstroms I ober- und unterhalb des Schwellstroms I_{th} ist in Abbildung 2.9 gezeigt. Wie in Abschnitt 2.3.2 schon kurz dargelegt, sind die Verstärkung und die Ladungsträgerdichte über der Schwelle auf den Wert an der Schwelle g_{th} und N_{th} festgelegt. Die Ausgangsleistung hat in beiden Betriebsbereichen einen linearen Zusammenhang mit dem Betriebsstrom. Im für Halbleiterlaser relevanten Bereich über der Schwelle ergibt sich die Ausgangsleistungskennlinie zu

$$P(I) = \eta_i \left(\frac{\alpha_m}{\alpha_i + \alpha_m} \right) \frac{h\nu}{e} (I - I_{th}) = \eta_d \frac{h\nu}{e} (I - I_{th}), \quad (I > I_{th}), \quad (2.38)$$

wobei als neue Größe die externe Quanteneffizienz η_d eingeführt wird. Die Steigung der Ausgangskennlinie ist direkt mit der externen Quanteneffizienz verknüpft:

$$\frac{dP}{dI} = \frac{h\nu}{e} \eta_d. \quad (2.39)$$

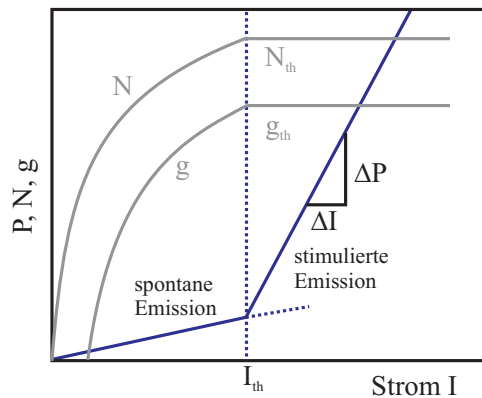


Abbildung 2.9: Schematischer Verlauf der Ladungsträgerdichte N , Verstärkung g und Ausgangsleistung P über dem Betriebsstrom I (nach [Col95]).

Die Steigung der Ausgangskennlinie lässt sich leicht experimentell bestimmen. Da auch alle anderen Größen in Gleichung (2.39) sowie die Spiegelverluste α_m im Allgemeinen bekannt sind, kann man durch eine Auftragung von $1/\eta_d$ für unterschiedliche Kavitätslängen L und unter Berücksichtigung der Definition von η_d (Gleichung (2.38)) nach

$$\frac{1}{\eta_d} = \frac{1}{\eta_i} + \frac{\alpha_i}{\eta_i \ln 1/R} \cdot L \quad (2.40)$$

die internen Parameter α_i und η_i bestimmen.

Einen analytischen Ausdruck für die Schwellstromdichte J_{th} erhält man, wenn man nichtstrahlende Rekombinationsmechanismen vernachlässigt und den empirischen Ausdruck für die Abhängigkeit der Verstärkung von der Ladungsträgerdichte

$$g = g_0 \ln \left[\frac{N}{N_{tr}} \right] \quad (2.41)$$

verwendet. Dabei ist g_0 der empirische Verstärkungskoeffizient und N_{tr} die Ladungsträgerdichte, bei der das Medium für Licht der Laserwellenlänge transparent ist. Vernachlässigt man nichtstrahlende Prozesse, so erhält man:

$$J_{th} \cong J_{tr} \exp \left(\frac{1}{L} \frac{\ln \left[\frac{1}{R} \right]}{\Gamma g_0} \right). \quad (2.42)$$

Trägt man die nach Abbildung 2.9 leicht messbare Schwellstromdichte wiederum über verschiedene reziproke Kavitätslängen L auf und passt eine Exponentialfunktion an, so sind nach Gleichung (2.42) die Transparenzstromdichte J_{tr} und der modale Verstärkungskoeffizient Γg_0 experimentell zugänglich. Die Transparenzstromdichte stellt nach obiger Definition die Schwellstromdichte für einen Laser mit der Resonatorlänge $L \rightarrow \infty$ dar.

2.3.4 Einfluss der Temperatur auf die Lasereigenschaften

Viele charakteristische Größen von Halbleiterlasern wie die Schwellstromdichte, die Emissionswellenlänge und die Effizienz, hängen von der Temperatur ab. Die Abhängigkeit der Schwellstromdichte folgt dabei dem empirischen Zusammenhang

$$J_{th} = J_0 e^{T/T_0}. \quad (2.43)$$

Sie nimmt also exponentiell mit der Temperatur zu, wobei T_0 die sog. charakteristische Temperatur ist und J_0 die Schwellstromdichte bei $T = 0$ K [Col95]. Ein Grund dafür ist das mit der Temperatur zunehmende „Aufweichen“ der Fermiverteilung, wodurch nicht mehr so viele Ladungsträger direkt am Laserübergang zur Verfügung stehen. Ebenso können Ladungsträger bei höheren Temperaturen thermisch aus der aktiven Zone heraus emittiert werden. Auch dieser Ladungsträgerverlust muss mit einer höheren Stromdichte ausgeglichen werden. Schließlich sind auch die Verlustmechanismen,

welche in die Schwellstromdichte über α_i eingehen von der Temperatur abhängig, so z.B. die Auger-Rekombination [Dut81].

Die Emissionswellenlänge eines Halbleiterlasers wird ebenfalls von der Temperatur der aktiven Zone beeinflusst. Dabei existieren zwei entgegenwirkende Mechanismen: Zum einen nimmt die Bandlücke mit steigender Temperatur nach der Varshni-Formel ab, was zu einer Rotverschiebung führt [Vur01]. Zum anderen steigen die Verluste mit der Temperatur an, was einen größeren Betriebsstrom zum Erreichen der Laserschwelle nötig macht. Dies führt wiederum zu einer stärkeren Beteiligung höherer Zustände an der Laseremission, was zu einer Blauverschiebung führt. In der Praxis ergibt sich als Netto-Effekt meist eine Rotverschiebung [Klo02, Deb08].

Beim Betrieb mit Konstantstrom resultiert daraus eine Verschiebung der Emission hin zu größeren Wellenlängen, da der Stromfluss durch die Laserdiode diese aufheizt. Die Temperaturerhöhung ΔT ist dabei gegeben durch [Col95]

$$\Delta T = R_{th} P_{diss} = R_{th} (P_{elek} - P_{opt}), \quad (2.44)$$

mit dem thermischen Widerstand des Lasermaterials R_{th} und der in der Laserdiode dissipierten Leistung P_{diss} . Diese kann als Differenz aus der elektrischen Leistung P_{elek} und der optischen Ausgangsleistung P_{opt} betrachtet werden. Die elektrische Leistung kann man durch den Strom durch die Diode I_D und der am Laser abfallenden Spannung U_D nach $P_{elek} = I_D U_D$ berechnen. Bei den in dieser Arbeit betrachteten Lasern mit Stegwellenleiter, kann der thermische Widerstand auch mit einer Näherungsformel abgeschätzt werden. Diese ergibt sich aus geometrischen Betrachtungen zu [Col95]

$$R_{th} = \frac{\ln [4h/w]}{\pi \xi L}, \quad (2.45)$$

wobei h , w und L , die Dicke der Laserprobe, die Breite des Stegwellenleiters und die Kavitätslänge darstellen. ξ bezeichnet die thermische Leitfähigkeit des Lasermaterials.

2.3.5 Besonderheiten von Quantenpunktlasern

Die Schwelle eines Halbleiterlasers ist genau dann erreicht, wenn die modale Verstärkung die Verluste ausgleicht:

$$\Gamma g_{th} = \alpha_i + \alpha_m. \quad (2.46)$$

Zum Erreichen der Schwelle ist also eine minimale Verstärkung am Laserübergang notwendig. Wie in Abschnitt 2.2.2 beschrieben, besitzen (ideale) QPe δ -förmige Energiewerte und Zustandsdichten. Dadurch liegen alle injizierten Ladungsträger bei Besetzungsinversion in einem sehr schmalen Energieband an der Laserschwelle vor und die Schwellverstärkung kann leichter erreicht werden [Asa86]. Auch ist eine sehr viel höhere Verstärkung am Laserübergang möglich, wie in Abbildung 2.10 schematisch dargestellt. Außerdem erwartet man durch die Beteiligung von nur einem Energieniveau eine Insensitivität der Schwellstromdichte von der Temperatur, d.h. $T_0 \rightarrow \infty$ [Ara82].

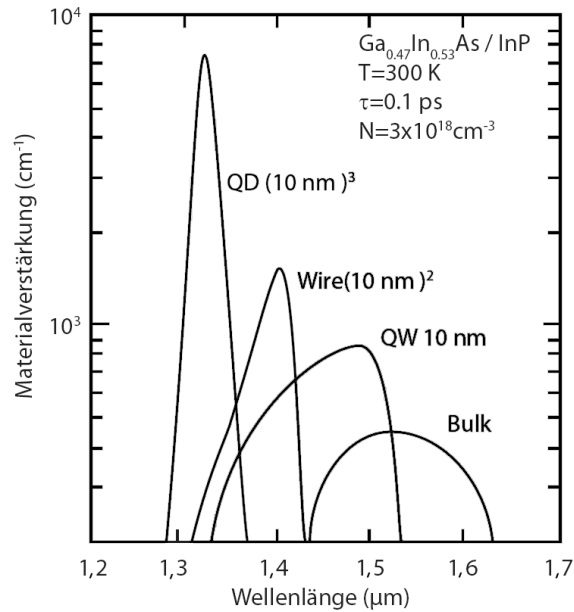


Abbildung 2.10: Maximale Materialverstärkung für Lasermaterialien unterschiedlicher Dimensionalität (nach [Asa86]).

Reale QPe (siehe Abschnitt 2.2.2) besitzen jedoch eine inhomogene Verbreiterung aufgrund der Größenverteilung [Ust03]. Dies führt dazu, dass nicht mehr alle Ladungsträger direkt am Laserübergang vorliegen, sondern man auch hier eine Verteilung auf breitere Energiebereiche findet [Ozg09]. Auch ist das Einschlusspotential bei realen QPen nicht beliebig hoch, was zur thermischen Emission von Ladungsträgern aus den QP-Schichten in die Benetzungsschicht und die Barrierschichten führt. Auch die Verluste von QP-Lasern sind temperaturabhängig. Allerdings führt der 3D-Einschluss bei QPen auch im Ensemble dazu, dass sich die Lasereigenschaften in die Nähe der Erwartungen für ideale QP-Systeme verschieben lassen. So wurden in bestimmten Temperaturbereichen bereits Werte von $T_0 \rightarrow \infty$ gezeigt [Muk00] und auch sehr geringe Schwellstromdichten lassen sich realisieren [Dem09]. Der Einfluss der Temperatur auf die Emissionswellenlänge ist bei QP-Lasern ebenfalls geringer als bei Quantenfilm-Lasern, was sich auf bestimmte Eigenschaften des Verstärkungsprofils zurückführen lässt [Klo02, Deb08].

2.4 Epitaxie und Charakterisierungsmethoden

2.4.1 Grundlagen der Molekularstrahlepitaxie

Alle in dieser Arbeit verwendeten Proben wurden mittels Molekularstrahlepitaxie (engl. *Molecular Beam Epitaxy*, MBE) hergestellt. Dazu wurde ein angepasstes MBE-System der Firma *EIKO* verwendet, welches mit insgesamt sieben Materialquellen ausgestattet ist. Zur Verfügung standen als Gruppe-III-Elemente:

- Aluminium (Al)
- Gallium (Ga)
- Indium (In)

und als Quellen für Gruppe-V-Elemente:

- Phosphin (PH_3)
- Arsin (AsH_3).

Als Dotierstoffe waren Beryllium (Be, zur p-Dotierung) und Silizium (Si, zur n-Dotierung) vorhanden. Während die Gruppe-III-Elemente und Dotierstoffe elementar in pyrolytischen Bornitrid-Tiegeln der sog. Feststoff-Effusionszellen vorlagen, wurden die zum Wachstum benötigten Gruppe-V-Elemente P und As direkt vor dem Abscheiden aus ihren gasförmigen Wasserstoffverbindungen PH_3 und AsH_3 gewonnen. Aus diesem Grund nennt man diese besondere Form der MBE auch Gasquellen-MBE (engl. *Gas Source*, GS-MBE). Das Zerlegen der Gasmoleküle geschieht in sog. Gas-Cracker-Zellen (engl. *cracking*, aufbrechen) durch thermische Dissoziation bei 1100°C bzw. 1000°C . Auf diese Weise entstehen P- und As-Tetramere oder Dimere (As_4 , P_4 bzw. As_2 , P_2), wobei bei den gewählten cracking-Temperaturen vor allem Dimere entstehen sollten. Um eine stoßfreie Bewegung der Atome von den Effusionszellen zum Substrat zu gewährleisten und den Einbau von Fremdatomen zu verhindern, wird die MBE-Kammer durch zwei Turbomolekularpumpen im (Ultra)hochvakuum gehalten. Zusätzlich zu diesen wird die äußere Wand sowie der Boden und Deckel der Kammer mit flüssigem Stickstoff durchströmt. Diese kalten Flächen wirken als Kryopumpe, welche an die Wände stoßende Teilchen bindet und zur Aufrechterhaltung des Wachstumsdruckes dient sowie die Abwärme der heißen Effusionszellen abführt [Her89].

Treffen auf diese Weise erzeugte Atome oder Moleküle während des Wachstums auf die Substratoberfläche, so werden diese zunächst in Form einer Physisorption leicht an die Oberfläche gebunden. Findet sich kein entsprechender Bindungspartner der jeweils anderen Hauptgruppe für eine chemische Bindung und den Einbau ins Kristallgitter, so können die Atome auf der Oberfläche zwischen Gitterplätzen diffundieren oder wieder desorbieren. Treffen sie auf einen geeigneten Bindungspartner, so findet ein Einbau ins Kristallgitter statt, was vermehrt an Stufen der Oberfläche geschieht, da hier mehr Bindungspartner zum Substrat vorliegen. Auf diese Weise findet eine Glättung bzw. ein Schicht-für-Schicht-Wachstum statt [Her89].

Das Substrat wurde durch eine Strahlungsheizung direkt an der Rückseite der Halbleiterscheibe auf die gewünschten Temperaturen während des Wachstums aufgeheizt. Die Kontrolle der Temperatur fand bei den auf GaAs-Substrat basierenden Strukturen durch ein optisches Pyrometer statt, welches eine berührungslose Messung über

die Wärmestrahlung des Substrats ermöglicht. Bei den auf GaP-Substrat basierenden Strukturen wurde die Temperatur durch ein Thermoelement an der Rückseite des Substrats gemessen. Der Grund dafür ist die große Bandlücke des GaP-Substrats, welche eine Messung mittels eines konventionellen Pyrometers unmöglich macht. Hierauf wird in Abschnitt 4.2.1, wo die Probenherstellung im Einzelnen erklärt wird, noch genauer eingegangen. Die Substrattemperatur hat einen entscheidenden Einfluss auf das epitaktische Wachstum von Schichten und insbesondere von QPen. Erhöht man die Substrattemperatur, führt man den auf der Oberfläche adsorbierten Atomen und Molekülen mehr thermische Energie zu, was zu einer vermehrten Migration auf der Substratoberfläche führt. Dies unterstützt den Effekt der Glättung des Substrats, da die Adatome auf weiteren Längenskalen zu Stufen an der Oberfläche diffundieren können. Eine zu hohe Temperatur führt jedoch zu einer vermehrten Desorption der Gruppe-III-Atome, was zu einer effektiven Verringerung der Wachstumsrate führt. Zum anderen können bestehende Bindungen wieder aufgebrochen werden, was die Qualität der Schicht erheblich herabsetzen kann [Her89]. Bei QPen führt eine höhere Substrattemperatur im Allgemeinen dazu, dass größere QPe mit geringerer Oberflächendichte entstehen, da es meist energetisch günstiger ist, wenn sich Atome an bereits gebildete QPe anlagern. Auch können vorhandene kleinere QPe wieder verschwinden und sich das ursprüngliche Material an größere QPe anlagern, welche ein energetisch günstigeres Verhältnis von Volumen zu Oberfläche besitzen [Car95, Poo01].

Das Wachstum der Strukturen fand stets im Gruppe-III-determinierten Modus statt. Dies bedeutet, dass ein Überangebot an Gruppe-V-Elementen eingestellt wird, was an der Stelle des Substrates einem etwa 20 bis 100-fachen Fluss von Gruppe-V-Material gegenüber Gruppe-III-Material entspricht. Durch den sehr geringen Haftkoeffizienten von P und As an der Substratoberfläche bei typischen Substrattemperaturen erfolgt eine sehr schnelle Desorption von der Substratoberfläche. Im Gegensatz dazu haften Atome der Gruppe III wesentlich länger auf der Substratoberfläche und migrieren zwischen Gitterplätzen, bis sie einen entsprechenden Bindungspartner der Gruppe V gefunden haben und sich schließlich ins Kristallgitter einbauen. Auf diese Weise lässt sich die Abscheiderate, z.B. des binären Halbleiters GaAs, allein durch den Fluss der Gruppe-III-Zellen, z.B. Ga, einstellen. Eine genaue Kontrolle des III/V-Verhältnisses ist für die Kristallqualität der gewachsenen Schichten von entscheidender Bedeutung, da ein zu kleines Verhältnis die Migrationslänge an der Substratoberfläche herabsetzt und damit den Glättungseffekt unterbindet: Gruppe-III-Atome finden nun sofort einen Bindungspartner und bauen sich ins Gitter ein, ohne zu einer Stufe zu migrieren, das Substrat raut auf. Bei zu geringem Angebot von Gruppe-V-Atomen können sich elementare Tröpfchen der Gruppe-III-Atome auf der Oberfläche bilden, weil nicht genügend Bindungspartner zur Verfügung stehen.

Die Flüsse aus den Gruppe-III-Zellen wurden dabei über die Temperatur der Bor-nitrid-Tiegel gesteuert, welche über eine Strahlungsheizung beheizt wurden. Nach der allgemeinen Dampfdruckkurve hat dabei der Fluss F einen exponentiellen Zusammenhang mit der Temperatur T nach $F \propto e^{-1/T}$ [Her89]. Die Flüsse von PH_3 und AsH_3 wurden durch elektronisch gesteuerte Präzisionsventile, sog. Massenflussregler, zwischen 0 und 20 sccm (standard Kubikzentimeter, 1 cm^3 bei Standardbedingungen) eingestellt. Zusätzlich waren alle Zellen mit pneumatisch betriebenen Schließblenden, sog. Shuttern (engl. *shutter*, Blende) ausgerüstet. Diese lassen sich mit einer minimalen Zeit von 0,4 s öffnen oder schließen. Bei einer typischen Wachstumsrate von 500 nm/h ergibt sich dann eine minimale Schichtdicke von ca. 0,06 nm. Man kann also mittels dieser Technik abrupte Schichtfolgen herstellen, deren Übergangsbereich in der Größenordnung einer Monolage liegt. Auch dies macht die MBE für die Herstellung von Halbleiterheterostrukturen mit genau definierten Eigenschaften sehr interessant.

Das genaue Herstellungsverfahren der in dieser Arbeit verwendeten Strukturen mit den entsprechenden Wachstumsparametern wird in den jeweiligen Abschnitten im Detail beschrieben.

Selbstorganisiertes Wachstum von Quantenpunkten

Man unterscheidet beim epitaktischen Wachstum grundsätzlich drei Wachstumsmodi. Das Frank-van-der-Merwe-Wachstum bezeichnet ein rein pseudomorphes Schichtwachstum, beim Vollmer-Weber-Modus entstehen einzelne Inseln auf dem Substrat. Die QPe in dieser Arbeit sind alle durch das Stranski-Krastanov-Verfahren hergestellt worden, welches eine Mischform aus beiden Modi darstellt und im Folgenden genauer erklärt werden soll [Her89].

Scheidet man Materialien unterschiedlicher Gitterkonstante aufeinander ab, so passen sich die Gitterkonstanten in der Ebene aneinander an und es entsteht eine verspannte Schicht, wie in Abschnitt 2.1.3 genauer beschrieben. Dies ist allerdings nur in gewissen Grenzen möglich. Ab einer bestimmten Dicke, der sog. kritischen Schichtdicke, wird die Verspannungsenergie des Systems größer als die zum Erzeugen neuer Oberfläche nötige Energie [Peo85]: Der Wachstumsmodus ändert sich und es entstehen kleine Inseln, welche im idealen Fall defektfrei und kohärent verspannt sind [Mic03]. Eine ursprünglich vorhandene verspannte Schicht bleibt dabei als Benetzungsschicht stehen. Dieses weit verbreitete Wachstumsprinzip für die Herstellung selbstorganisierter QPe ist in Abbildung 2.11 schematisch dargestellt. Die kritische Schichtdicke d_{krit} ist dabei von der Gitterfehlanpassung der beiden Ausgangsmaterialien abhängig. Je größer der Unterschied in den Gitterkonstanten, desto geringer die kritische Schichtdicke. Bei $(\text{Al,Ga})\text{InP}$ auf GaP, wie hier in dieser Arbeit in Kapitel 4 verwendet, beträgt die Gitterfehlanpassung 7% für reines InP und 4% für $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$. Die kritische Schichtdicke für reines InP auf GaP liegt im Bereich von 1,8 Monolagen (ML), wobei eine Monolage 0,3424 nm ent-

spricht [Mas01]. Ein QP-Wachstum ist auch bei einem geringeren In-Gehalt von 60% problemlos möglich. Anders sieht dies in dem ebenfalls hier verwendeten auf GaAs gitterangepasstem GaInP aus. Da hier bereits in der Unterlage 49% In vorhanden sind, kann man die In-Konzentration nur noch in vergleichsweise kleinem Maß variieren. Will man hier beispielsweise $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QPe erzeugen, ist es bereits bei Werten von $x = 0,2$ sehr schwierig QPe mit geeigneter Morphologie zu erhalten. Vielmehr bilden sich bei diesen geringen Gitterfehlanspassungen Versetzungen in ebenen Schichten aus, welche genügen, um die Verspannungsenergie abzubauen. Allerdings kann man durch geeignete Wachstumsbedingungen die kritische Schichtdicke in Grenzen auch beeinflussen [Pri91, FC88, Wan92].

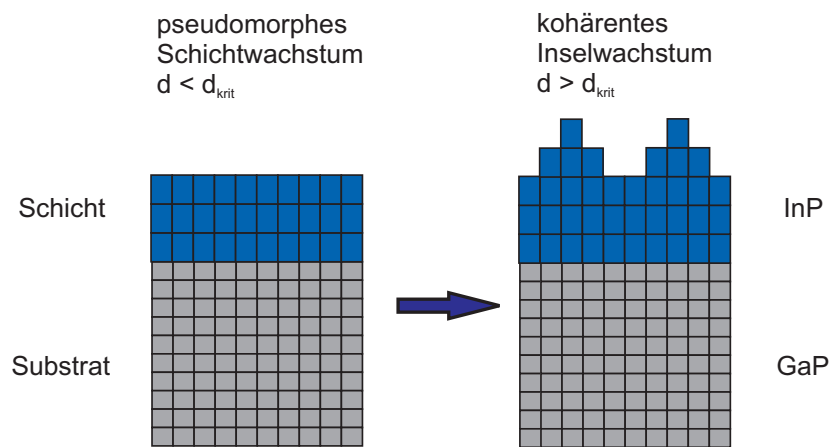


Abbildung 2.11: Vereinfachte Darstellung des selbstorganisierten Wachstums von QPen nach dem Stranski-Krastanov-Verfahren am Beispiel InP/GaP.

2.4.2 Charakterisierungsmethoden

Photolumineszenz

Eine gute Methode um optisch aktive Materialien ohne größere Prozessschritte charakterisieren zu können, stellt die Photolumineszenz (PL) dar. Dabei werden mit einem Laser, dessen Emissionslicht eine größere Energie besitzt als die Bandlücke des zu charakterisierenden Materials, Elektron-Loch-Paare im Material erzeugt. Diese relaxieren schnell auf die jeweiligen energetisch tiefsten Niveaus, falls diese nicht vollständig besetzt sind. Im defektfreien Halbleiter ist dies im einfachsten Fall das Minimum des Leitungsbandes für Elektronen und das Maximum des Valenzbandes für Löcher. Liegen Defekte vor, so können diese die tiefsten Energieniveaus darstellen, von denen aus die Elektron-Loch-Paare wieder rekombinieren. Einige der möglichen Prozesse, die dabei auftreten können, sind in Abbildung 2.12 vereinfacht dargestellt. Zunächst wird durch Absorption eines Photons des anregenden Laserlichts ein Elektron-Loch-Paar erzeugt (a). Dieses rekombiniert dann im einfachsten Fall durch einen direkten Übergang

vom Leitungs- ins Valenzband (b). Sind im Halbleiter Gitterfehler oder Verunreinigungen, z.B. in Form einer Dotierung, vorhanden, so kann auch ein Donatoratom (c, Donatorniveau E_D) oder Akzeptoratom (d, Akzeptorniveau, E_{Acc}) beteiligt sein. Findet der Übergang direkt von Donator- nach Akzeptorniveau statt (e), so spricht man von Donator-Akzeptor-Paarübergängen (DA-Paarübergang). Exzitonen können auch an tiefen Störstellen gebunden sein, die energetisch im Bereich der Mitte der Bandlücke sitzen (f). Über die Analyse des von der angeregten Probe ausgesendeten Lichts lassen sich wichtige Aussagen über die elektronische Struktur, Größenverteilung und Lumineszenzeffizienz der eingebetteten Quantenstrukturen treffen.

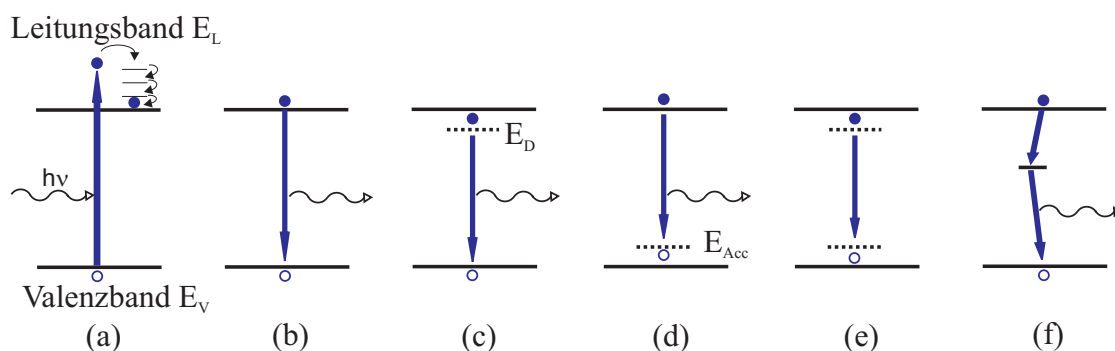


Abbildung 2.12: Vereinfachte Darstellung der möglichen Prozesse zur Erzeugung und Rekombination von Ladungsträgern bei PL-Messungen.

In dieser Arbeit wurden die Proben an einem Photolumineszenzmessplatz untersucht, an dem man mittels eines Helium-Kryostaten und eines Heizelements die Temperatur der Probe zwischen 9 K und 300 K einstellen kann. Die Proben wurden mit einem Laser angeregt, der im Dauerstrichbetrieb arbeitet und Licht einer Wellenlänge von 405 nm aussendet. Die Anregungsleistung kann durch einen variablen Abschwächer zwischen wenigen μW und 2 mW eingestellt werden. Das Laserlicht gelangt über einen Strahlteiler und eine Objektivlinse auf die Probe, das von der Probe emittierte Licht passiert den Strahlteiler und wird durch eine weitere Linse in den Monochromator abgebildet. Dieser enthält ein bewegliches Beugungsgitter mit 600 Linien/mm, dessen Position mit Hilfe eines Computers eingestellt werden kann. Das gebeugte Licht wird mittels einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten CCD-Kamera aufgenommen und ebenfalls per Computer verarbeitet.

Zusätzlich zu den PL-Messungen bietet der verwendete Kryostat die Möglichkeit des Anschlusses von Stromquellen, so dass auch elektrisch angeregte Proben am selben Messplatz untersucht werden konnten.

Abbildende Verfahren

Für die Untersuchung von unüberwachsenen QPEn, aber auch von QPEn in entsprechender Matrix wurden im Zuge dieser Arbeit verschiedene bildgebende Verfahren verwen-

det, um Abmessungen zu ermitteln und einen Eindruck von der Form und Oberflächendichte der Strukturen zu bekommen. Jedes dieser Verfahren basiert auf interessanten physikalischen Effekten und würde bei eingehender Behandlung ein eigenes Kapitel in einer Dissertation füllen. Deswegen soll hier nur grob die Funktionsweise und die Parameter der hier in dieser Arbeit verwendeten Geräte und Modi eingegangen werden, die zum Verständnis der Auswertungen in den Experimentalkapiteln von Nöten sind.

Für die Vermessung von unüberwachsenen Oberflächen-QPen, aber auch zum Bestimmen von Schichtdicken, wurde in dieser Arbeit ein **Rasterelektronenmikroskop (REM)** der Firma Hitachi im Sekundärelektronenmodus verwendet. Dabei rastert ein Primärelektronenstrahl die Oberfläche der sich im Vakuum befindlichen Probe ab. Beim Auftreffen auf die Probenoberfläche entstehen durch Wechselwirkung der obersten Nanometer der Probe Sekundärelektronen, welche von einem Detektor aufgefangen werden. Zusammen mit der Information der Ablenkung des Primärstrahls entsteht ein Bild, welches den Eindruck einer Draufsicht auf die Probe vermittelt, die aus der Richtung des Detektors beleuchtet wird. Diese Bilder eignen sich gut für die Bestimmung der Oberflächendichte und lateralen Abmessungen der QPe, die Auflösung beträgt wenige Nanometer. Da verschiedene Materialien unterschiedlich effizient Sekundärelektronen erzeugen, entsteht auch ein Materialkontrast, mit dem man bei Betrachtung der Spaltkante die verschiedenen Schichten betrachten und vermessen kann.

Ebenfalls zur Untersuchung von Oberflächen-QPen eignet sich das **Rasterkraftmikroskop** (engl. *Atomic Force Microscope*, **AFM**). Hier wird eine extrem scharfe Spitze an einem sehr kleinen Haltearm in Schwingung versetzt. Die Auslenkung des Arms, und damit auch die Frequenz und Amplitude der Schwingung, wird über einen Laserstrahl, der vom Haltearm reflektiert wird, detektiert. Über Piezo-Steller wird die Position der Spitze über der Probe auf unter 1 nm genau eingestellt. Nähert sich die Spitze der Probenoberfläche an, so entstehen zwischen der Probenoberfläche und der Spitze elektrostatische Kräfte, welche die Amplitude und Phase der Schwingung beeinflussen. Über weitere Piezo-Steller wird die Spitze über die Probe gerastert. Die Information über Höhe, Position und Schwingungsverhalten der Spitze wird in einer Software zu einem Bild der Probenoberfläche umgerechnet, welches auch sehr genaue Höheninformationen enthält. Diese Bilder eignen sich sehr gut zur Bestimmung der Höhe von QPen. Mit einer geeigneten Software können auch 3D-Bilder der Probenoberfläche erstellt werden. In dieser Arbeit wurde ein AFM der Firma Anatec im dynamischen Nicht-Kontakt-Modus verwendet. Als Spitze diente eine Siliziumcarbid-Spitze mit einem Durchmesser unter 10 nm. Zur Auswertung wurde das Programm WSxM von Horcas *et al.* verwendet [Hor07].

Zur Untersuchung von überwachsenen QPen wurde ein **Transmissionselektronenmikroskop (TEM)** im Rastermodus (S-TEM, *scanning*-TEM) verwendet. Dabei wer-

den sehr hochenergetische Elektronen auf den vorher bis auf wenige zehn Nanometer abgedünnten Querschnitt der Probe fokussiert und anschließend die durch die Probe transmittierten Elektronen analysiert. Dies ermöglicht eine extrem hohe Auflösung im atomaren Bereich. In dieser Arbeit wurde die erste Beugungsordnung der transmittierten Elektronen detektiert, was zur Folge hat, dass schwerere Atome, die den Elektronenstrahl stärker ablenken, in der Aufnahme hell erscheinen, leichtere Atome erscheinen dunkel. Verwendet wurde dabei das TITAN 80-300 TEM der Firma FEI mit einer maximalen Elektronenenergie von 300 keV.

Röntgenbeugung

Die hochauflösende **Röntgenbeugung** (engl. *X-ray Diffraction*, **XRD**), eignet sich hervorragend, um Aussagen über die Schichtdicke, Verspannung und Kristallqualität von epitaktischen Schichten zu treffen. Bei kurzperiodischen Übergittern ist es auch möglich die Gitterperiode zu bestimmen. Bei den hier verwendeten Verfahren wird die Probe mit monochromatischer Röntgenstrahlung (Kupfer K_{α} -Linie) beleuchtet und der Winkel der Probe und des Detektors zur Röntgenquelle kontinuierlich verändert ($\omega - 2\theta$ -Messung). Immer dann, wenn die Bragg-Bedingung erfüllt ist, ist ein Reflex am Detektor messbar, woraus sich die Gitterkonstante der Schicht und damit z.B. der Grad der Verspannung berechnen lässt. In dieser Arbeit wurden XRD-Messungen vor allem zur Bestimmung der Zusammensetzung von auf GaAs gitterangepasstem AlGaInP verwendet. Mit dem zur Verfügung stehenden X'Pert XRD der Firma Philips mit einer Auflösung von $0,0004^{\circ}$ lassen sich Verspannungen von wenigen ppm bestimmen und damit die Zusammensetzung von AlGaInP im Bereich von wenigen 0,1% errechnen.

Elektrische Charakterisierung

Zur Charakterisierung der fertigen Halbleiterlaser standen elektrische Messplätze zur Verfügung, die einen Betrieb im Dauerstrich- (engl. *continuous wave*, CW) sowie im gepulsten Modus ermöglichten. Im CW-Modus wird der Laser-Chip mittels einer Wolframcarbid-Spitze kontaktiert und mit einer computergesteuerten Konstantstromquelle betrieben. Diese liefert auch die angelegte Spannung an den Computer, wodurch eine U-I-Kennlinie aufgenommen werden kann. Die Ausgangskennlinie wird mit Hilfe einer Si-Photodiode bestimmt, auf die das Laserlicht fokussiert wird. Während der Messung befindet sich die Probe auf einer durch ein Peltier-Element temperaturstabilisierten Wärmesenke, dessen Temperatur zwischen 5°C und 140°C variiert werden kann. Die gepulsten Messungen finden mit einem sehr ähnlichen Messaufbau statt. Der Betriebsstrom wird jedoch über einen Pulser erzeugt, der Ströme bis zu einer Stärke von 3,5 A liefern kann. Die typischen Pulslängen sind dabei 300 ns bei einer Wiederholungsrate von 1 kHz. Der an einem Vorwiderstand gemessene Spannungsabfall wird über eine Elektronik integriert und in einen Betriebsstrom des Lasers umgerechnet. Auch die durch die Si-Photodiode gemessenen Lichtpulse werden integriert und zusammen

mit den Daten aus der Strommessung mittels Computer ausgewertet.

2.5 Computersimulation und Parameter

In dieser Arbeit wurden QP-Strukturen hergestellt, bei denen $\text{Al}_y\text{Ga}_x\text{In}_{1-x-y}\text{P-QPe}$ in GaP und AlGaP eingebettet wurden. Zwar wurden die Zusammensetzungen der QPe dabei stets so gewählt, dass direkte Bandlücken zu erwarten sind [Jun09], allerdings kann es durch die Bandlage dieser QPe relativ zur indirekten AlGaP-Matrix zu komplexen Bandverläufen kommen, die die Lumineszenzeigenschaften dieser QPe stark beeinflussen. Der Bandverlauf der in dieser Arbeit hergestellten Strukturen und die Bedeutung für das Emissionsverhalten soll im Zuge dieser Arbeit durch numerische Berechnungen der Bandstruktur geklärt werden.

Hierzu wurde die Simulationssoftware *nextnano++* verwendet [Bir07], welche ein numerisches Verfahren zur Minimierung der Verspannungsenergie des Systems anwendet, um die tatsächliche, von der Verspannung beeinflusste Bandstruktur zu ermitteln. Anschließend wird in einem zweiten Schritt die Schrödingergleichung und die Poisson-Gleichung für Elektronen und Löcher im Leitungs- und Valenzband jeweils an den wichtigen Punkten der Brillouin-Zone (in diesem Fall Γ und X) ebenfalls numerisch gelöst und die energetische Lage der Ladungsträger sowie die Wellenfunktionen und daraus die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Ladungsträger berechnet. Dabei werden auch in der Struktur vorherrschende piezoelektrische Felder berücksichtigt. Daraus lässt sich wiederum die theoretische Übergangsenergie für einen strahlenden Übergang und ggf. auch das Überlappintegral der Elektronen- und Lochwellenfunktion bestimmen.

Als Ausgangspunkt der Simulationen benötigt das Programm die Materialparameter der verwendeten Materialien AlP, GaP und InP. Diese sind im Lieferumfang der Software vorhanden und wurden aus einschlägigen Veröffentlichungen, allen voran [Vur01] und [LB88] entnommen. Allerdings ist zu beachten, dass gerade für AlP und GaP viele für die Berechnungen wichtige Parameter nicht so genau bestimmt sind, wie für technologisch bedeutsamere Verbindungen wie GaAs oder InP. Deshalb sind die Ergebnisse der Berechnungen immer mit einem gewissen Fehler behaftet, welcher auf die Unzulänglichkeiten des theoretischen Modells und die Ungenauigkeit der verwendeten Parameter zurückgeht.

Die Ergebnisse der Berechnungen werden im Abschnitt 4.5 diskutiert. Dabei wird vor allem auf den Bandverlauf der quaternären $\text{Al}_y\text{Ga}_x\text{In}_{1-x-y}\text{P-QPe}$ eingegangen und es werden auch die Ergebnisse der PL-Messungen mit den Ergebnissen der Berechnungen verglichen.

3 (Al)InP-Quantenpunkte auf gitterangepasstem AlGaInP

3.1 Probenherstellung

Im Zuge dieser Arbeit sollten (Al)InP-QPe in auf GaAs gitterangepassten (Al,Ga)InP-Barrieren für Laseranwendungen hergestellt werden und die Emissionsenergie mit Hilfe der Beimischung von Al konsequent zu kleineren Wellenlängen hin verschoben werden. Die Blauverschiebung der Emissionswellenlängen durch Al wurde schon früher von Arbeitsgruppen für InP-QPe gezeigt, welche in Barrieren mit unterschiedlichen Al-Konzentrationen mittels MOCVD gewachsen wurden. Hier führte die vergleichsweise hohe Temperatur beim Überwachsen der Strukturen mittels MOCVD zu einer Diffusion des Aluminiums aus der Barriere in die QPe und damit zu einer Blauverschiebung der Emission. In dieser Arbeit sollte der Al-Gehalt in den QPen durch den Abscheidungszyklus des QP-Materials mittels MBE direkt kontrolliert und gezielt eingestellt werden. Dies verspricht eine bessere Kontrolle der Emissionsenergie und Morphologie der hergestellten Strukturen und ermöglicht in Laserstrukturen die unabhängige Optimierung der Zusammensetzung des Wellenleiters und der QPe.

Um den Al-Gehalt in den QPen direkt kontrollieren zu können, wurde die Al-Zelle während des InP-Wachstums zur Bildung der QPe eine genau definierte Zeit lang geöffnet. Dabei zeigte sich, dass sowohl Zeitpunkt der Öffnung der Al-Zelle als auch Wachstumpausen und Abscheidungszyklen einen großen Einfluss auf Morphologie und Lumineszenz der so hergestellten QPe haben. Dies ist auch anschaulich verständlich, wenn man bedenkt, dass jeweils nur eine In- und eine Al-Zelle für das Wachstum zur Verfügung stand und diese auf das Wachstum von auf GaAs gitterangepasstem AlInP eingestellt waren: Sind zu Beginn des QP-Wachstums beide Zellen geöffnet, scheidet man also AlInP ab, so wächst dieses gitterangepasst auf das Substrat auf. Man hat keinerlei Verspannung im System und es würden sich keine QPe bilden. Erst nach dem Schließen der Al-Zelle, also beim Wachsen von reinem InP, würde sich eine Verspannung aufbauen und QPe bilden. Diese hätten dann aber nicht den gewünschten Al-Gehalt. Wächst man aber zu Beginn reines InP, so bilden sich zwar bei genügend großer Abscheidung QPe, nach dem Öffnen der Al-Zelle besteht aber die Gefahr, dass sich das Al nicht wie gewünscht in die bereits vorhandenen QPe einbaut und man InP-QPe mit AlInP-Schale bekommt. Aus diesem Grund wurden die jeweiligen Schichten möglichst dünn gehalten und mehrere Abscheidungszyklen verwendet, wie in Abbildung 3.1 dargestellt. Nach jedem Zyklus

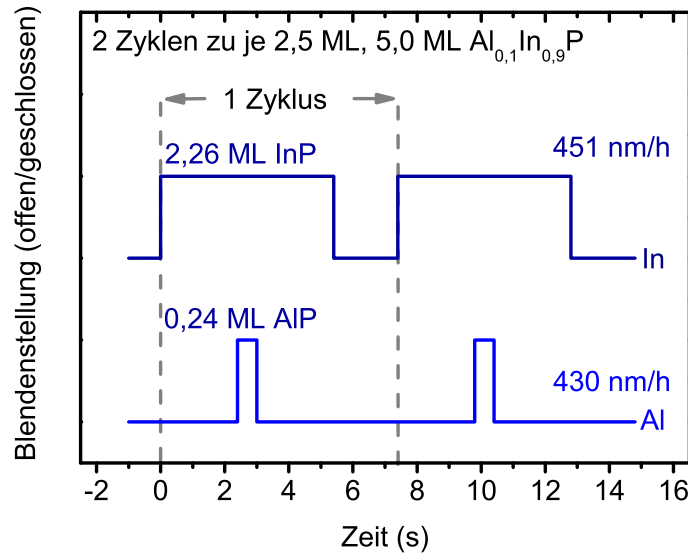


Abbildung 3.1: Abscheidezyklus zur Abscheidung von 5,0 ML $\text{Al}_{0,1}\text{In}_{0,9}\text{P}$.

wurde eine Pause von 2 s unter P-Fluss eingelegt, nach dem Gesamtzyklus eine Pause von 20 s. Diese dienen dazu, den auf der Oberfläche abgeschiedenen Atomen genügend Zeit für die Oberflächendiffusion, Durchmischung und Einbau in die QPe zu geben. Auf diese Weise erhält man morphologisch gut ausgeprägte QPe mit reproduzierbarer Durchmischung der Atomsorten. Bei den hergestellten Proben mit reinen InP-QPen ist ein solcher Zyklus nicht notwendig. Hier wurde die gewünschte Menge InP ohne Unterbrechung und mit nur 1 s Wachstumspause nach der Abscheidung aufgewachsen. Die so hergestellten QPe wurden in auf GaAs gitterangepasste GaInP- bzw. AlInP-Barrieren eingebettet. Die Dicke dieser Barrieren betrug dabei 150 nm auf jeder Seite, die Substrattemperatur während des Wachstums der Barrieren und der QPe 480°C. Das Wachstum erfolgte auf Si-dotiertem GaAs-Substrat der Kristallebene (100), auf dem zunächst eine 100 nm dicke, undotierte GaAs-Pufferschicht bei 580°C abgeschieden wurde. Für morphologische Untersuchungen wurden nach dem Überwachsen der QPe mit der jeweiligen Barriere nochmals nominell identische QPe auf die Oberfläche abgeschieden, welche nicht mehr überwachsen wurden.

3.2 Einfluss der Barriere auf InP-Quantenpunkte

Wie in Abschnitt 3.4.1 beschrieben, sollten für die (Al)InP/AlGaInP-Laserstrukturen als Wellenleiter kurzperiodische Übergitter aus GaInP und AlInP verwendet werden. Es stellte sich also die Frage, wie man die Phase eines solchen Gitters wählt, also ob die QPe in der aktiven Zone auf GaInP oder auf AlInP abgeschieden werden sollen. Um dies besser beurteilen zu können, wurden zunächst InP-QPe in GaInP- und AlInP-Barrieren eingebettet und hinsichtlich der Morphologie und Photolumineszenz untersucht.

Abbildung 3.2 zeigt eine statistische Auswertung der Höhenverteilung von InP-QPen gebildet aus 3,2 ML InP. Die QPe wurde auf GaInP (Abbildung 3.2a) bzw. AlInP (Abbildung 3.2b) aufgewachsen. Ebenso sind AFM-Aufnahmen der jeweiligen QPe zu sehen. Beide Höhenverteilungen sind um eine mittlere Höhe von ca. 2,5 nm zentriert. Auf der AlInP-Unterlage wachsen die QPe jedoch mit einer größeren statistischen Fluktuation in der Höhe auf, so dass man deren Verteilung am besten mit drei Gauß-Kurven mit den Zentren 1,5 nm, 2,5 nm und 3,5 nm beschreiben kann. Auf der GaInP-Unterlage bildet sich eine leicht bimodale Verteilung um 1,0 nm und 2,5 nm. Was in den AFM-Bildern auffällt ist, dass die QPe auf GaInP deutlich in einer Richtung elongiert sind. Diese Richtung entspricht der Kristallrichtung [011] des Substrates, in der sie eine mittlere Breite von 68 nm aufweisen, während sie senkrecht dazu, also in der $[0\bar{1}1]$ Richtung, weniger als die Hälfte (30 nm) in der Breite aufweisen. Dies ist ein typisches Verhalten für dieses Materialsystem, welches zuvor schon beobachtet wurde [Den94, Geo95]. Grund dafür ist die Oberflächenrekonstruktion der GaInP-Oberfläche während des epitaktischen Wachstums: Die nicht abgesättigten Bindungen der GaP- bzw. InP-Tetraeder an der Oberfläche minimieren ihre Energie, indem sie schwache Bindungen untereinander eingehen und den Bindungswinkel im Tetraeder ändern. Dies führt zu einer Vorzugsrichtung für die Anlagerung adsorbierter Atome in die Richtung dieser Bindungen und damit zu einer Elongation der darauf gebildeten QPe [Peh97]. Bei den hier hergestellten InP-QPen auf AlInP ist diese Elongation deutlich geringer ausgeprägt und die lateralen Abmessungen sind insgesamt kleiner, mit 23 nm bzw. 14 nm in der [011]- und $[0\bar{1}1]$ -Richtung. Die Abnahme der Elongation entlang bestimmter Kristallrichtungen lässt sich vermutlich durch die unterschiedliche Oberflächenenergie der AlInP-Oberfläche im Vergleich zur GaInP-Oberfläche erklären, da diese einen direkten Einfluss auf die Elongation der QPe hat [Peh97]. Die Abnahme der lateralen Abmessungen insgesamt kann eine Folge der geringeren Migrationslänge von adsorbierten Atomen auf der AlInP-Oberfläche im Vergleich zur GaInP-Oberfläche sein, was auch zu einer erhöhten Oberflächendichte dieser QPe führt. Diese beträgt $6,3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ für QPe auf GaInP und $1,1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ für QPe auf AlInP. Dies hat seinen Ursprung vermutlich in der größeren Bindungsstärke von AlP im Vergleich zu GaP [Cah64]. Die stärkeren Bindungen, die Adatome dadurch auf der AlInP-Oberfläche während des QP-Wachstums erfahren, führen zu einer geringeren Migrationslänge. So stehen mehr Kondensationszentren beim Überschreiten der kritischen Schichtdicke und der QP-Bildung zur Verfügung, was zu einer höheren Oberflächendichte bei einer AlInP-Unterlage führt. Gleichzeitig verhindert eine kleinere Migrationslänge aber auch eine gleichmäßigere Diffusion der Oberflächenatome, was in einer breiteren statistischen Verteilung der QP-Höhe resultiert.

Die Lumineszenzeigenschaften der InP-QPe in unterschiedlichen Barrieren sind in Abbildung 3.3 dargestellt. Am Tieftemperatur PL-Spektrum (Abbildung 3.3a) erkennt man, dass sich die breitere Größenverteilung der QP-Abmessungen auch auf die Lu-

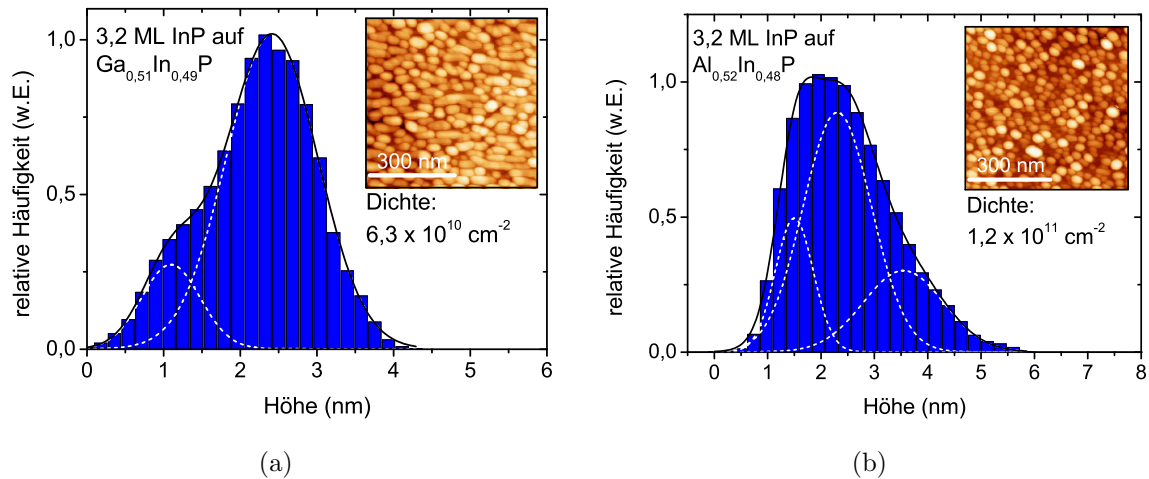


Abbildung 3.2: Statistische Verteilung der QP-Höhe von InP-QPen gebildet aus 3,2 ML InP auf gitterangepasstem GaInP (a) und AlInP (b) mit angepassten Gauß-Kurven. Die eingefügten Bilder sind repräsentative AFM-Aufnahmen der jeweiligen QPe.

mineszanz niederschlägt, in AlInP-Barrieren ist das QP-Signal deutlich breiter. Zudem führen AlInP-Barrieren zu einer Blauverschiebung der Emission, was durch die kleineren Abmessungen (in der Breite) erklärt werden kann. Auch kann nicht ausgeschlossen werden, dass bei der Bildung der QPe kleine Mengen Al aus der Barriere in die QPe diffundieren.

Allerdings sei hier darauf hingewiesen, dass die PL-Emission von den überwachten QPen in der Probe stammt, während die morphologischen Betrachtungen auf unüberwachten QPen basieren. Beim Überwachen von QPen kann es jedoch zu signifikanten Änderungen in der Morphologie wie Veränderung der Abmessungen oder Elongation in bestimmte Kristallrichtungen kommen [Joy01, Cos06, Gon04]. Auch kann sich die Zusammensetzung von QPen und Barriere durch Materialaustausch ändern [Gar97]. Unter bestimmten Wachstumsbedingungen kann die Morphologie jedoch auch weitestgehend erhalten werden [Geo95]. Bei der Interpretation von Lumineszenzeigenschaften von QPen muss die Möglichkeit, dass derartige Effekte beim Überwachen auftreten immer beachtet werden. Der direkte Schluss von morphologischen Eigenschaften der Oberflächen-QPe auf Lumineszenzverhalten ist also immer fehlerbehaftet.

Der Einfluss der Temperatur auf die PL-Emission ist in Abbildung 3.3b gezeigt. Während bei tiefen Temperaturen AlInP-Barrieren zu einer geringeren Emissionsintensität führen, nimmt diese bei steigender Temperatur, wie durch die höheren Barrieren auch zu erwarten, wesentlich weniger stark ab als bei GaInP-Barrieren. Durch eine Kurvenanpassung nach Gleichung (2.29) lässt sich die Aktivierungsenergie für GaInP-Barrieren zu 170 meV bestimmen, während sie bei AlInP mit 385 meV mehr als doppelt so hoch liegt.

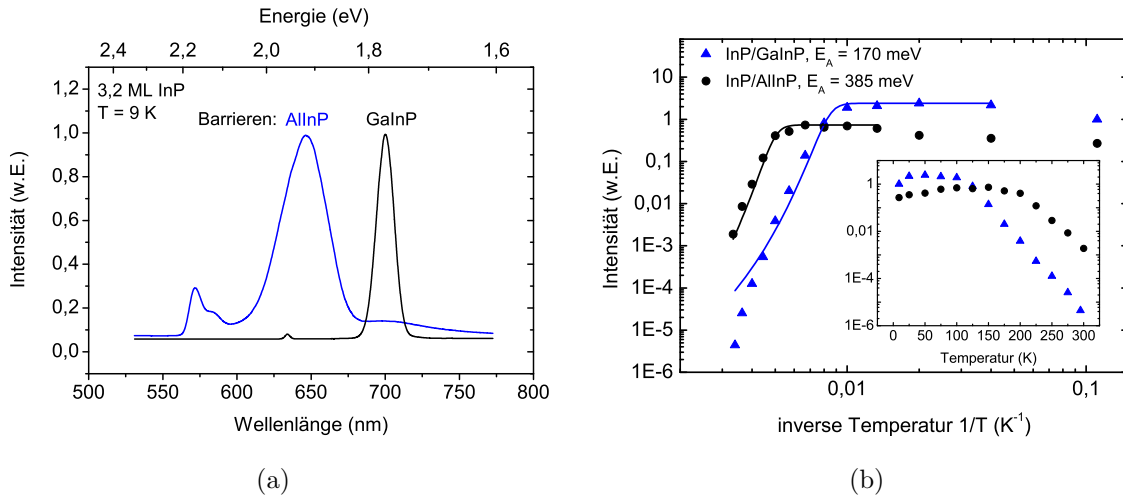


Abbildung 3.3: (a) Tieftemperatur-PL-Spektren der InP-QPe in GaInP- und AlInP-Barrieren. Das kleine Signal auf der kurzwelligen Seite stammt jeweils von Übergängen in der Barriere. (b) Temperaturabhängige PL-Intensität mit Kurvenanpassung zur Bestimmung der Aktivierungsenergie.

Wie durch diese Analyse ersichtlich, erreicht man beim Wachstum auf AlInP höhere QP-Oberflächendichten. Zudem weist die PL-Intensität in AlInP-Barrieren eine deutlich höhere Temperaturstabilität auf, als in GaInP-Barrieren. Da diese beiden Eigenschaften für die Realisierung von QP-Lasern bei Raumtemperatur sehr wichtig sind, wurden die kurzperiodischen Übergitter des Wellenleiters in den (Al)InP-QP-Laserstrukturen so angeordnet, dass direkt vor den QPen AlInP abgeschieden wurde. So kann man eine höhere QP-Oberflächendichte (was zu einer größeren modalen Verstärkung Γg_0 führt) und einen besseren Einschluss der Ladungsträger in den QPen erwarten. Die folgenden Untersuchungen an Al-haltigen QPen wurden dementsprechend auch in AlInP-Barrieren ausgeführt.

3.3 Morphologie und Lumineszenz von AlInP-Quantenpunkten

Als Vorstufe zur Realisierung eines Halbleiterlasers auf Basis von AlInP-QPen wurden PL-Proben mit Al-haltigen QPen hergestellt, um den Einfluss des Aluminiums auf die Morphologie und die Lumineszenz der QPe zu untersuchen. Wächst man reine InP-QPe, so kann man die Emissionswellenlänge prinzipiell nur über die abgeschiedene Materialmenge und damit die Größe der erzeugten QPe durch den Quantisierungseffekt einstellen (vgl. Gleichung (2.28)). Beim Wachstum mittels MOCVD ist durch Diffusion von Al aus den Barrieren in die QPe auch die Beeinflussung der Emissionsenergie über den Al-Gehalt der Barriere möglich. AlInP-QPe, bei denen der Al-Gehalt der QPe direkt über das in die QPe eingebrachte Material kontrolliert wird, bieten jedoch, wie im Folgenden gezeigt, die Möglichkeit Emissionsenergie und Morphologie in einem bestimmten Bereich unabhängig voneinander zu beeinflussen. Dazu wurde eine Probenserie mit 3,2 ML $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QPen mit Al-Konzentrationen von $x = 0, 0,05, 0,10$ und $0,15$ und eine Probe mit 5,0 ML und $x = 0,10$ gewachsen. Die QPe wurden stets in AlInP eingebettet, um eine möglichst hohe Barriere zu haben und da (wie in Abbildung 3.2 gezeigt) auf dieser Unterlage besonders hohe QP-Oberflächendichten möglich sind.

AFM- und REM-Aufnahmen der Oberflächen-QPe der entsprechenden Proben sind in Abbildung 3.4 dargestellt. Der linke Teil der Abbildung zeigt dabei AFM-Aufnahmen der Proben mit ca. 3 ML $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ mit unterschiedlichen Werten von x , sowie ganz unten der Probe mit 5,0 ML $\text{Al}_{0,10}\text{In}_{0,90}\text{P}$. Die Kantenlänge der in 3D-Ansicht dargestellten Aufnahmen betrug dabei immer 600 nm. Im rechten Teil von Abbildung 3.4 sind REM-Aufnahmen der entsprechenden Proben gezeigt, die eine senkrechte Aufsicht auf die Proben darstellen. Die Kantenlänge beträgt 2400 nm. Wie man anhand der Bilder erkennt, nimmt die QP-Oberflächendichte mit zunehmenden Al-Gehalt für die Proben mit ca. 3 ML $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ ab. Für $x = 0,15$ sind kaum noch QPe zu erkennen. Die Probe mit 5,0 ML und 10% Al zeigt jedoch QPe, welche ähnlich derer aus 3,2 ML $\text{Al}_{0,05}\text{In}_{0,95}\text{P}$ aussehen.

Diese Eindrücke lassen sich anhand einer statistischen Auswertung der Oberflächen-QPe genauer belegen. Eine solche Auswertung ist in Abbildung 3.5 gezeigt, wo die Höhenverteilung, Oberflächendichte und Breite der Oberflächen-QPe über den Al-Gehalt aufgetragen ist. Dabei ist neben der Al-Serie mit Schichtdicken von ca. 3 ML auch die Probe mit 5,0 ML $\text{Al}_{0,10}\text{In}_{0,90}\text{P}$ -QPen mittels offener Symbole eingezeichnet. Wie man anhand der Bilder sieht und in der Auswertung in Abbildung 3.5a leicht erkennen kann, nimmt die QP-Oberflächendichte mit steigendem Al-Gehalt stetig ab. Gleichzeitig nimmt auch die Höhe der QPe ab, woraus folgt, dass immer weniger des abgeschiedenen Materials in den eigentlichen QPen vorhanden ist und immer mehr Material in der Benetzungsschicht verbleibt. Dies ist auch leicht verständlich, da sich bei steigendem x in $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ die Gitterkonstante dieses Materials immer mehr an die der Unterlage,

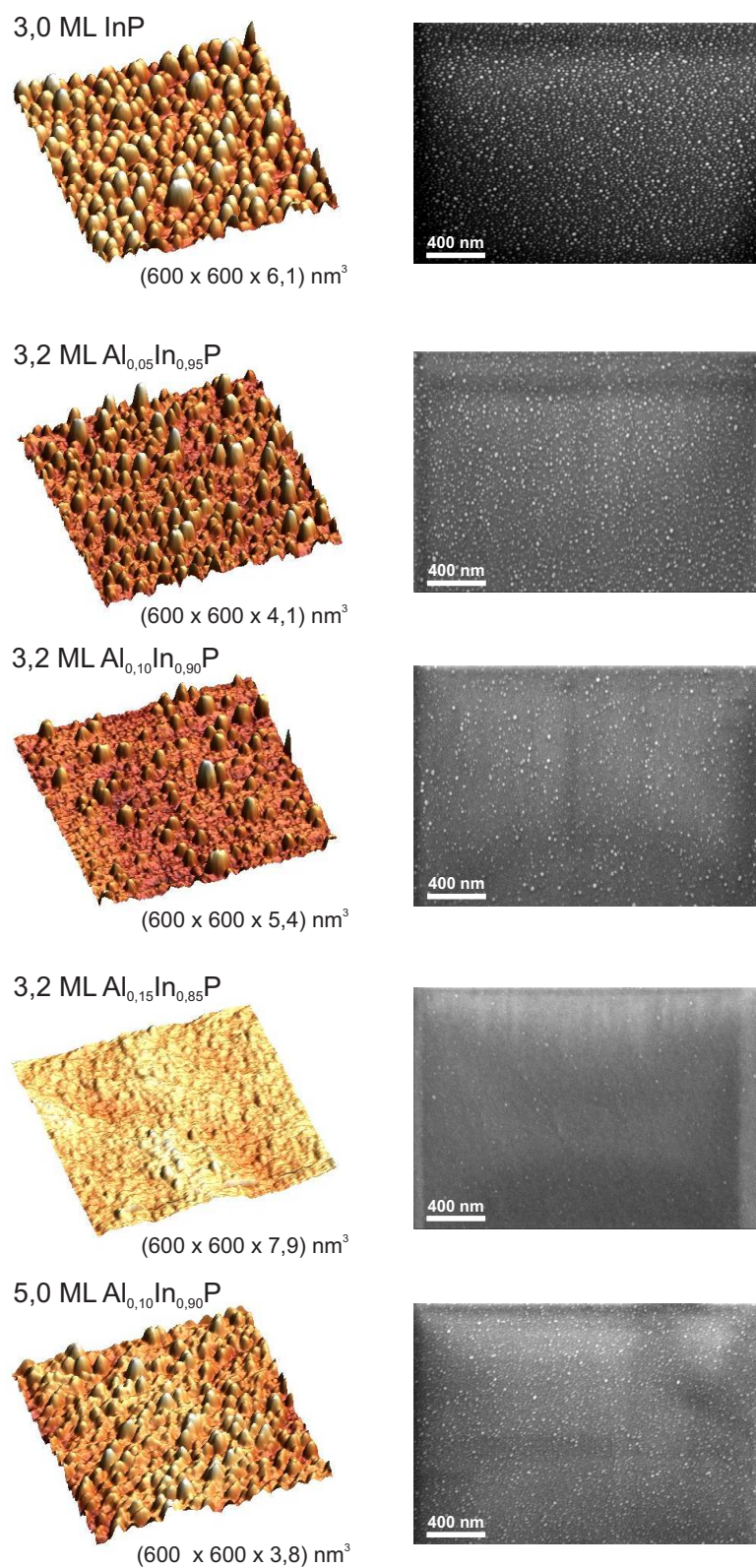


Abbildung 3.4: AFM (links) und REM-Aufnahmen (rechts) von AlInP-Oberflächen-QPen mit unterschiedlichen Zusammensetzungen.

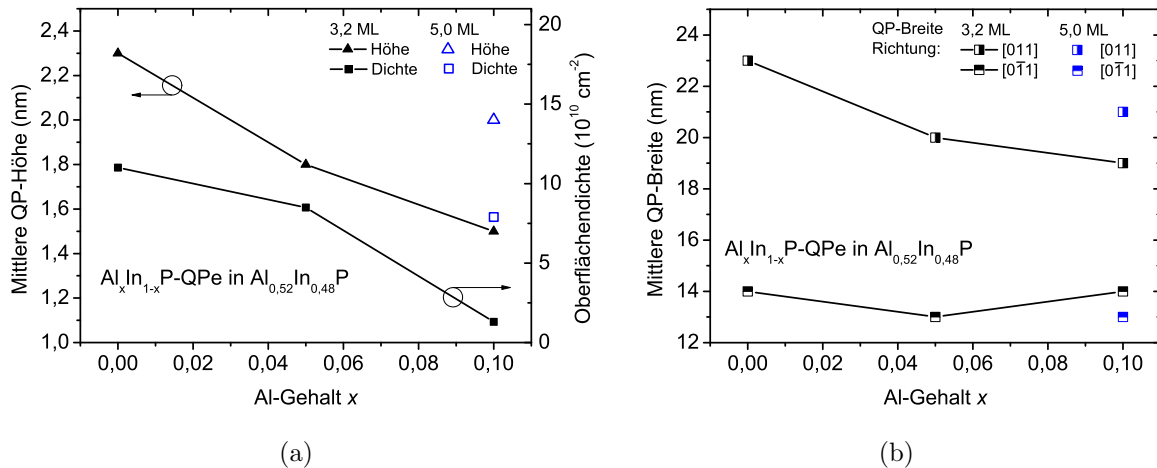


Abbildung 3.5: (a) Mittlere Höhen und Oberflächendichte von AlInP-QPen auf gitterangepasstem AlInP in Abhängigkeit des Al-Gehaltes. (b) Mittlere Breiten der QPe entlang der Kristallachsen [011] und [01̄1].

auf GaAs gitterangepasstes $\text{Al}_{0,52}\text{In}_{0,48}\text{P}$, angleicht. Die Verspannung im System nimmt also immer mehr ab und die kritische Schichtdicke nimmt zu. Da stets vergleichbare Materialmengen abgeschieden wurden, bleibt bei dem System mit der größeren kritischen Schichtdicke nicht mehr so viel Material für die Bildung der QPe übrig und diese werden kleiner und weisen eine geringere Oberflächendichte auf. Der Grenzfall wird bei der Probe mit 15% Al erreicht. Hier wird die kritische Schichtdicke praktisch nicht mehr überschritten und man erkennt in der AFM-Aufnahme nur noch Monolagenfluktuationen auf der Oberfläche und sehr vereinzelt kleine QPe. Abbildung 3.5b zeigt die Auswertung der QP-Breiten in Abhängigkeit der Zusammensetzung. Dabei werden die entlang unterschiedlicher Kristallrichtungen gemessenen QP-Breiten unterschieden. Wie schon im vorherigen Abschnitt gesehen, zeigt sich auch hier eine Elongation der QPe entlang festgelegter Kristallrichtungen, welche auf der Oberflächenrekonstruktion der AlInP-Unterlage beruht. So zeigt sich, dass die QPe in der [011]-Richtung breiter sind als in der [01̄1]-Richtung. Das Verhältnis der Breiten liegt dabei im Bereich von 0,7, wobei man anhand von Abbildung 3.5b eine leichte Tendenz erkennt, dass sich die Breiten der QPe mit steigendem Al-Gehalt einander annähern.

Die Probe mit 5,0 ML $\text{Al}_{0,10}\text{In}_{0,90}\text{P}$ weist folgerichtig wieder größere QPe auf, da man hier insgesamt mehr Material abgeschieden hat. Auch die QP-Oberflächendichte nimmt wieder zu. Dies ist für Anwendungen gerade im Halbleiterlaserbereich von Vorteil, da höhere QP-Oberflächendichten zu einer größeren modalen Verstärkung führen können, wie in Abschnitt 3.4.2 diskutiert wird.

Die PL-Eigenschaften der Proben bei Raumtemperatur und bei Tieftemperatur sind in Abbildung 3.6 dargestellt. Darin sieht man die Übergangsenergie der QPe in Abhängigkeit der Zusammensetzung bei 9 K und bei Raumtemperatur. Auf der rechten Achse

ist zusätzlich die integrierte PL-Intensität des Signals gemessen bei Raumtemperatur aufgetragen. Die mit Strichen verbundenen Daten gehören dabei zur Probenserie mit ca. 3 ML (Al)InP, die Probe mit QPen aus 5,0 ML $\text{Al}_{0,1}\text{In}_{0,9}\text{P}$ ist mit offenen Symbolen dargestellt. Die Übergangsenergie der QPe zeigt bis 10% Al einen linearen Zusammenhang mit der Al-Konzentration, wobei man die Übergangsenergie bei Raumtemperatur zwischen 1,81 eV (685 nm) für reine InP-QPe und 2,04 eV (608 nm) für QPe mit 15% Al einstellen kann. Allerdings weicht die Probe mit 15% Al vom linearen Zusammenhang ab und auch die Lumineszenzintensität bei Raumtemperatur verringert sich rapide um fast drei Größenordnungen beim Übergang von 10% Al zu 15% Al (3,2 ML). Dies ist jedoch zu erwarten, da hier, wie oben bei der Diskussion der Morphologie dieser QPe gezeigt, die Oberflächendichte gegen Null geht und nur noch sehr wenige QPe vorliegen.

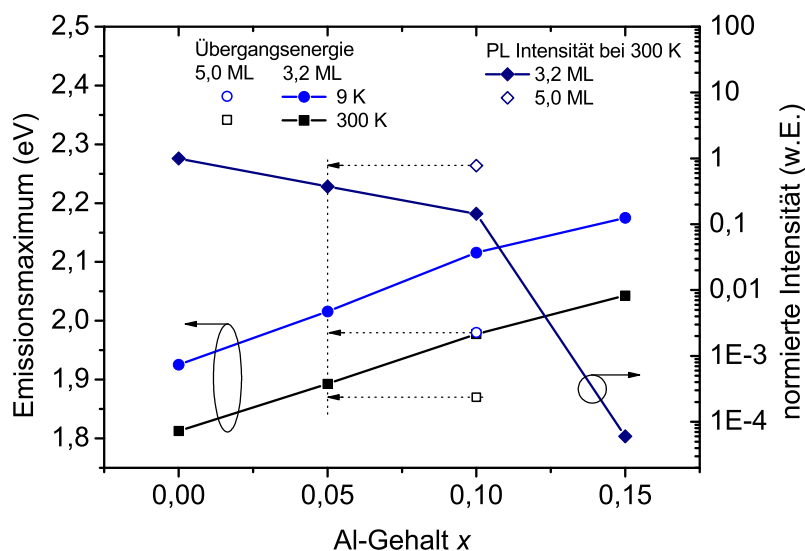


Abbildung 3.6: Übergangsenergie bei Tieftemperatur und bei Raumtemperatur sowie die normierte PL-Intensität von AlInP-QPen auf gitterangepasstem AlInP in Abhängigkeit des Al-Gehaltes. Mit Pfeilen angedeutet: Die Probe mit 5,0 ML (gekennzeichnet durch offene Symbole) weist sehr ähnliche Eigenschaften wie die mit 3,2 ML $\text{Al}_{0,05}\text{In}_{0,95}\text{P}$ auf.

Die Probe mit 5,0 ML und 10% Al zeigt in der PL-Messung ein sehr ähnliches Verhalten wie die Probe mit 3,2 ML und 5% Al. Zur besseren Sichtbarkeit wurden die Werte beider Proben mit gestrichelten Pfeilen markiert. Sowohl bei Raumtemperatur als auch bei Tieftemperatur emittieren beide Proben bei nur geringfügig anderen Energien. Die Intensität der Probe mit 5,0 ML ist bei Raumtemperatur jedoch um mehr als eine halbe Größenordnung höher und liegt auf dem selben Niveau wie die Intensität reiner InP-QPe, welche jedoch bei deutlich geringeren Energien emittieren. Dies muss mit der Morphologie der beiden Proben zusammenhängen: Durch das Abscheiden von 5,0 ML $\text{Al}_{0,1}\text{In}_{0,9}\text{P}$ erreichte man praktisch die gleiche Oberflächendichte wie

bei 3,2 ML $\text{Al}_{0,05}\text{In}_{0,95}\text{P}$, jedoch mit deutlich vergrößerter QP-Höhe. Die dadurch zu erwartende geringere Übergangsenergie der QPe wird durch den erhöhten Al-Gehalt ausgeglichen. Die größeren Abmessungen führen aber offensichtlich zu einem besseren Einschluss der Ladungsträger und zu einer erhöhten Lumineszenzintensität bei Raumtemperatur.

Dies zeigt, dass man durch die direkte Kontrolle der Materialzusammensetzung und der Materialmenge, die zur QP-Bildung führt während des epitaktischen Wachstums mittels MBE die Emissionswellenlängen und morphologische Eigenschaften von QPen gezielt und unabhängig voneinander beeinflussen kann. Zusammen mit der Möglichkeit den Wellenleiter von Lasern getrennt von der aktiven Zone optimieren zu können, weil man nicht auf die Diffusion von Al in die QPe angewiesen ist, ist dieser Ansatz vielversprechend für die Herstellung von QP-Lasern im kurzwelligen roten Spektralbereich. Die Anwendung dieses Herstellungsprinzips auf QP-Laser wird im nächsten Abschnitt untersucht.

3.4 (Al)InP-Quantenpunktlaser

3.4.1 Probenherstellung

Um die Eignung der im vorherigen Abschnitt vorgestellten QPe für Laseranwendungen zu untersuchen wurden kantenemittierende Diodenlaserstrukturen hergestellt. Im Folgenden wird zunächst das Wachstum der Schichten für die Laser erläutert. Ebenso wird die Nachbehandlung der Strukturen nach dem Wachstum und die Fabrikation zu Breitstreifen- und Stegwellenleiterlasern kurz skizziert.

Epitaktisches Wachstum

Abbildung 3.7 zeigt schematisch den Schichtaufbau der hergestellten Laserstrukturen. Im oberen Teil der Abbildung ist der Verlauf des Leitungsbands und des Dotierprofils skizziert, unten ist eine REM-Aufnahme der Spaltkante gezeigt, auf der man die entsprechenden Strukturen erkennen kann. Das übergeordnete Laserdesign stellt eine sog. SCH-Struktur (engl. *Separate Confinement Heterostructure*, Heterostruktur mit separatem Einschluss) dar. In dieser Struktur wird der Einschluss der optischen Mode über den höheren Brechungsindex der Wellenleiterschicht im Vergleich zu den Mantelschichten realisiert, während der elektronische Einschluss separat in Quantenstrukturen stattfindet. Die Abmessungen des Wellenleiters und der Mantelschichten resultieren dabei aus einer Optimierungsbetrachtung. Hierzu wurde die Wellengleichung für einen Schichtwellenleiter mit vorgegebenen Abmessungen und Brechungsindizes numerisch gelöst, wobei die Brechungsindizes der verwendeten Materialien eingesetzt wurden [Kat94]. Basierend auf diesen Berechnungen wurden die einzelnen Abmessungen

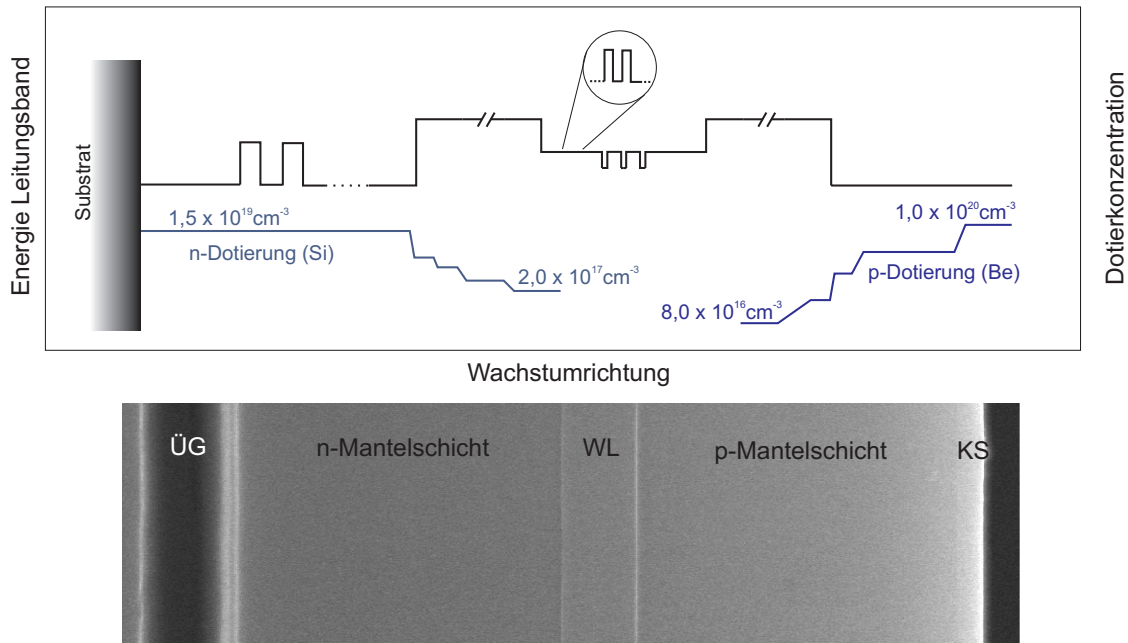


Abbildung 3.7: Skizzierter Leitungsbandverlauf und Dotierprofil der hergestellten Laserstrukturen. Unten: REM-Aufnahme der Schichten, mit Übergitter (ÜG), Wellenleiter (WL) und Kontaktschicht (KS).

hinsichtlich des maximalen Überlapps der optischen Mode mit der aktiven Zone und minimaler Verluste durch den Überlapp mit dotierten Bereichen optimiert. Das Wachstum der einzelnen Schichten wurde wie folgt realisiert:

Nach der Oxiddesorption bei 630°C unter 6 sccm AsH_3 -Fluss wurde zunächst eine Pufferschicht und 2×5 Übergitterperioden aus je 5 nm GaAs:Si und $\text{Al}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As:Si}$ zum Binden von Kristallfehlern bei einer Substrattemperatur von 580°C und einem AsH_3 -Fluss von 4 sccm abgeschieden. Nach weiteren 50 nm GaAs:Si wurde eine Wachstumspause von 10 min unter AsH_3 eingelegt, um die Substrattemperatur auf 480°C zu senken. Anschließend wurde der Gruppe-V-Fluss auf 8 sccm PH_3 geändert und 1000 nm AlInP:Si ($\text{Al}_{0,52}\text{In}_{0,48}\text{P}$, gitterangepasst auf GaAs , siehe Abschnitt 2.1.2) mit unterschiedlicher n-Dotierung abgeschieden. Der Wellenleiter bestand aus AlGaInP , wobei dieser durch ein kurzperiodisches Übergitter aus gitterangepasstem GaInP und AlInP realisiert wurde. Dabei waren die einzelnen Schichten GaInP und AlInP zwischen 1–2 nm dick. Dies hat mehrere Vorteile: Zum einen lassen sich so praktisch beliebige Zusammensetzungen von quaternärem AlGaInP realisieren, ohne für jede Konzentration die Wachstumsraten der einzelnen Zellen anpassen zu müssen, da stets gitterangepasstes Material abgeschieden wird. Zudem können kurzperiodische Übergitter im Wellenleiter zu einem effektiveren Einschluss der Ladungsträger in der aktiven Zone führen [Sch98]. Die optische Mode erfährt durch die geringe Periodenlänge nur einen mittleren Brechungsindex des AlGaInP -Mischkristalls, die Wellenleitung wird also nicht wesentlich beeinflusst. Die Abmessungen des Wellenleiters betragen auf jeder

Seite der aktiven Zone 100 nm, welche aus oben genannter Optimierungsbetrachtung resultierten. Auf der n-Seite war der Wellenleiter zu einem Drittel dotiert, auf der p-Seite undotiert.

Die QPe bestanden aus 3,0–5,0 ML (Al)InP. Es wurden stets drei QP-Schichten getrennt durch jeweils 5 nm Wellenleitermaterial in die Mitte des Wellenleiters eingebettet, wobei das zuvor beschriebene Abscheidungsverfahren verwendet wurde (vgl. Abschnitt 3.1). Auf der p-Seite wurden ebenfalls 1000 nm AlInP als Mantelschicht für den optischen Einschluss gewachsen. Dabei waren die ersten 100 nm nach dem Wellenleiter undotiert, danach wurde AlInP:Be verwendet. Den Abschluss bildet eine 300 nm dicke GaAs:Be-Schicht, welche bei 560°C gewachsen wurde.

Thermische Nachbehandlung der Strukturen

Der Grund für die fehlende Dotierung in den ersten 100 nm des Wellenleiter auf der p-Seite ist die hohe Diffusionsfähigkeit von Be-Atomen im Gitter von AlInP und GaInP. Dotiert man zu nahe an der aktiven Zone, so diffundieren die Be-Atome durch die vergleichsweise hohe Temperatur beim Wachstum der GaAs-Kontaktschicht oder anschließendes Tempern der Proben bis in die aktive Zone, wo sie sehr hohe interne Verluste α_i hervorrufen und damit die Schwellströme stark erhöhen [Man03]. Zudem ist im phosphorbasierten Materialsystem aufgrund der schlechten p-Dotiereffizienz und dem geringen Kristalleinbau ein relativ hohes Angebot von Be-Atomen nötig [Gu06]. Ein Ausweg dafür ist auch die ex-situ-Temperung der Proben (engl. *Rapid Thermal Annealing*, RTA), bei der die Be-Atome, die zunächst auf Zwischengitterplätzen sitzen, durch eine kurze Behandlung mit sehr hoher Temperatur auf Plätze im Kristallgitter wandern [Man03]. Auf diese Weise kann die Dotiereffizienz erhöht werden. Allerdings kann sich eine derartig hohe Temperatur auch negativ auf die QPe in der aktiven Zone auswirken. Auch hier finden bei erhöhter Temperatur Umlagerungsprozesse statt, die Form und Zusammensetzung der QPe beeinflussen können. Bei dem Temperprozess ist also ein Kompromiss zwischen einer „Aktivierung“ der Be-Dotierung auf der einen Seite, was die elektrischen Eigenschaften der Laser erheblich verbessert, und einer Vermeidung der Degradation der QPe und Diffusion der Be-Atome in die aktive Zone auf der anderen Seite zu finden [Man03]. Die besten Laserdaten wurden mit einem Temperprozess erreicht, bei dem die Probe zunächst für 30 s auf 500°C vorgewärmt wurde, um dann sehr schnell auf 800°C aufgeheizt zu werden. Nach 2 s bei 800°C wurde die Probe dann durch den umströmenden Reinststickstoff wieder so schnell wie möglich auf Raumtemperatur abgekühlt.

Herstellung der Breitstreifenlaser

Für die Grundcharakterisierung wurde ein ca. 10 × 10 mm großes Stück auf der n-Seite mit einem Kontakt der Schichtabfolge Titan - Gold/Germanium als Legierung und ab-

schließend Gold bedampft. Auf der p-Seite wurden Streifenkontakte mit 100 μm Breite mit der Schichtabfolge Titan - Platin - Gold aufgebracht. Die Mode wird bei dieser Struktur also durch die Verstärkung geführt, die Resonatorbreite wird durch die Breite der Streifenkontakte definiert. Die Kontakte wurden für 30 s bei 380°C einlegiert, was einer Verringerung des Übergangswiderstands dient. Beim Aufbringen der Breitstreifenkontakte ist deren Ausrichtung wichtig. Messungen an unterschiedlich hergestellten Breitstreifenlasern, bei denen die Streifenkontakte in einem Fall senkrecht zur Elongationsrichtung der QPe und im anderen Fall parallel dazu ausgerichtet waren, haben gezeigt, dass sich bei der senkrechten Ausrichtung deutlich bessere Lasereigenschaften ergeben als bei der parallelen. Daher wurde beim Aufdampfen der Breitstreifenkontakte darauf geachtet, dass diese senkrecht zur Elongationsrichtung der QPe verlaufen, d.h. die Resonatoren sind in $[0\bar{1}1]$ -Richtung des Kristalls ausgerichtet.

Anschließend wurden die Laser in Barren unterschiedlicher Kavitätslänge gespalten, die Resonatorspiegel wurden dabei durch die Spaltfacetten definiert, welche unbeschichtet blieben. Auf diese Weise stehen pro Barren ca. 7 Laser gleicher Resonatorlänge für die Untersuchung der Lasergrundeigenschaften zur Verfügung.

Herstellung der Laser mit Stegwellenleiter

Für Untersuchungen im Dauerstrichbetrieb ist ein verlustärmerer lateraler Einschluss des Lichtfeldes nötig, als dies durch Streifenkontakte möglich ist. Hierzu wurden Stegwellenleiter (engl. *Ridge Wave Guide*, RWG) auf Basis der gewachsenen Laserstrukturen hergestellt.

Die einzelnen Arbeitsschritte dafür sind in Abbildung 3.8 dargestellt. Zunächst wird ein ca. 10 mm \times 10 mm großes Stück der Laserstruktur mit Positivlack beschichtet und mittels optischer Lithographie belichtet. Nach dem Entwickeln des Lackes wird eine Ätzmaske aus BaF₂ und Cr aufgedampft, wobei das Cr dem Schutz des Materials vor dem Ätzplasma dient und sich die Maske durch das BaF₂ später einfach entfernen lässt. Durch den vorangegangenen Schritt schlägt sich die Ätzmaske nur an den Stellen auf dem Halbleiter nieder, wo vorher der Lack entwickelt wurde. Nach dem Entfernen des übrigen Lackes, dem Abhebeschritt (engl. *lift-off*), werden die Stege mittels ECR-RIE (engl. *Electron Cyclotron Resonance - Reactive Ion Etching*) mit einem Cl-Ar-Gemisch geätzt. Durch diesen hoch anisotropen Prozess werden steile Flanken an den Seiten der Stege realisiert, die ca. 100 nm über dem vertikalen Wellenleiter der Schichtstruktur enden. Anschließend wird die geätzte Struktur mittels Benzocyclobuten (BCB) planarisiert. Das zu viel aufgebrachte BCB wird in einer Plasma-Ätzkammer durch ein Gemisch aus Sauerstoff und Trifluormethan verascht. Anschließend wird die Ätzmaske entfernt, das Substrat durch einen Schleifschritt abgedünnt und ähnlich dem Schritt zur Stegdefinition mittels Lack, optischer Lithographie und Elektronenstrahlverdampfen die Kontakte definiert, die wie bei den Breitstreifenlasern zusammengesetzt und einlegiert sind. Das Abdünnen des Substrats dient dabei der Verbesserung der thermi-

schen Ankopplung des Lasers zur Wärmesenke und ermöglicht das leichtere Abspalten kleinerer Kavitätslängen.

Abbildung 3.9 zeigt eine REM-Aufnahme der Spaltfacette eines solchen RWG-Lasers, in der man das Ergebnis des oben beschriebenen Herstellungsprozesses sehen kann. Deutlich ist der p-Kontakt zu erkennen, der sich oben auf dem Stegwellenleiter und auf den benachbarten Bereichen niedergeschlagen hat und der fast weiß erscheint. Als dunkle Struktur neben dem Stegwellenleiter ist die Isolationsschicht aus BCB zu sehen. Das Halbleitermaterial der Epitaxischicht erscheint grau und man erkennt die RWG-Struktur mit den senkrecht verlaufenden Ätzflanken.

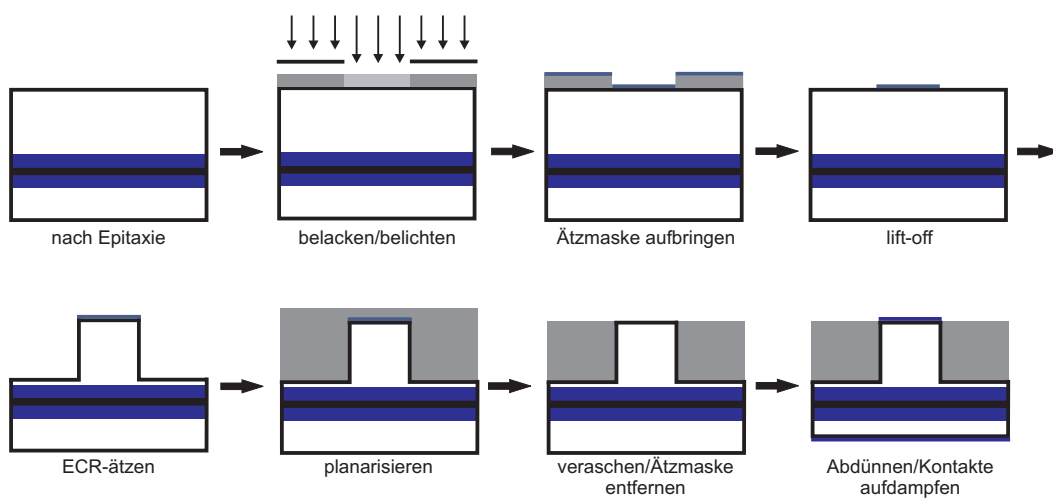


Abbildung 3.8: Arbeitsschritte zur Herstellung der RWG-Laser.

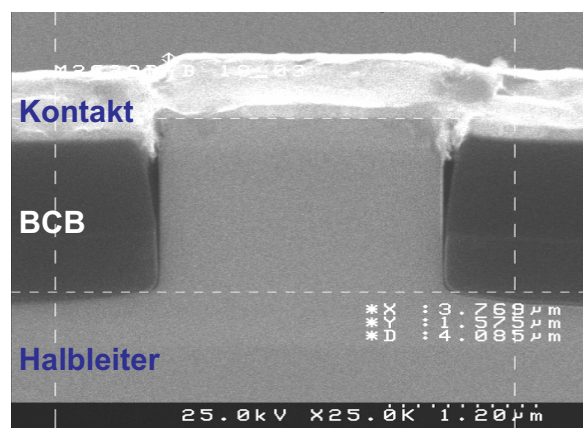


Abbildung 3.9: REM-Bild der Spaltfacette eines RWG-Lasers.

3.4.2 Grundcharakterisierung

Tabelle 3.1 gibt eine Übersicht der in diesem Abschnitt diskutierten Laserstrukturen, wobei vor allem die Zusammensetzung und Schichtdicke der QP-Schichten sowie in engen Grenzen der Wellenleiter variiert wurde. Von diesen Laserstrukturen wurden im gepulsten Betrieb Kennlinien und Spektren aufgenommen und zur Bestimmung von charakteristischen Laserparametern verwendet.

Tabelle 3.1: Übersicht über die in diesem Abschnitt diskutierten Laserstrukturen und die eingeführte Kurzbezeichnung.

Kurzbezeichnung	aktive Zone 3 QP-Schichten à	Wellenleiter
3,0ML0	3,0 ML InP	$(\text{Al}_{0,30}\text{Ga}_{0,70})_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$
3,6ML5	3,6 ML $\text{Al}_{0,05}\text{In}_{0,95}\text{P}$	$(\text{Al}_{0,45}\text{Ga}_{0,55})_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$
3,6ML7	3,6 ML $\text{Al}_{0,07}\text{In}_{0,93}\text{P}$	$(\text{Al}_{0,45}\text{Ga}_{0,55})_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$
5,0ML10	5,0 ML $\text{Al}_{0,10}\text{In}_{0,90}\text{P}$	$(\text{Al}_{0,40}\text{Ga}_{0,60})_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$

Die Emissionsspektren der Laser aus Tabelle 3.1 sind in Abbildung 3.10a für gepulsten Betrieb bei Raumtemperatur gezeigt. Das Tastverhältnis lag dabei bei 0,03% und der Strom bei der Aufnahme der Spektren betrug 2 A, bei einer Kontaktbreite von 100 μm und einer Resonatorlänge von 1,0 mm. Wie zu erwarten war, führt ein höherer Al-Anteil in den QPen zu einer kürzeren Emissionswellenlänge. Beim Übergang von reinem InP zu 7% Al erzielt man insgesamt eine Blauverschiebung um über 40 nm von 729 nm auf 685 nm. In Übereinstimmung mit den PL-Ergebnissen aus Abbildung 3.6 emittiert auch hier die Probe mit 10% Al und 5,0 ML nur geringfügig langwelliger als die Probe mit 3,6 ML und 5% Al, wobei zu beachten ist, dass die Schichtdicke zur QP-Bildung beim Laser 3,6ML5 gegenüber den PL-Proben leicht erhöht wurde.

Abbildung 3.10b zeigt Ausgangskennlinien des Lasers 5,0ML10 für unterschiedliche Resonatorlängen als Beispiel für alle untersuchten Laser. Kontaktbreite und Tastverhältnis wurden wie in Teilbild (a) gewählt. Anhand dieser Kennlinien wurden durch Geradenanpassung jeweils Schwellstromdichte und Steigung bestimmt und durch geeignete Kurvenanpassung interne Laserparameter extrahiert. Dabei fällt auf, dass mit größerer Resonatorlänge der Schwellstrom zunimmt, während die Steigung der Kennlinien abnimmt. Die Zunahme des Schwellstroms ist durch die größere gepumpte Fläche bei längeren Resonatoren erklärbar: Bei gleichem Strom führt eine größere gepumpte Fläche zu einer geringeren Stromdichte, es muss also mehr Strom fließen, um die gleiche Stromdichte (in diesem Fall die Schwellstromdichte) zu erzeugen. Zwar nehmen auch die Spiegelverluste mit größerer Resonatorlänge ab und die Schwellstromdichte verringert sich (siehe Gleichung (2.42)), dies kann jedoch die Zunahme der Fläche nicht

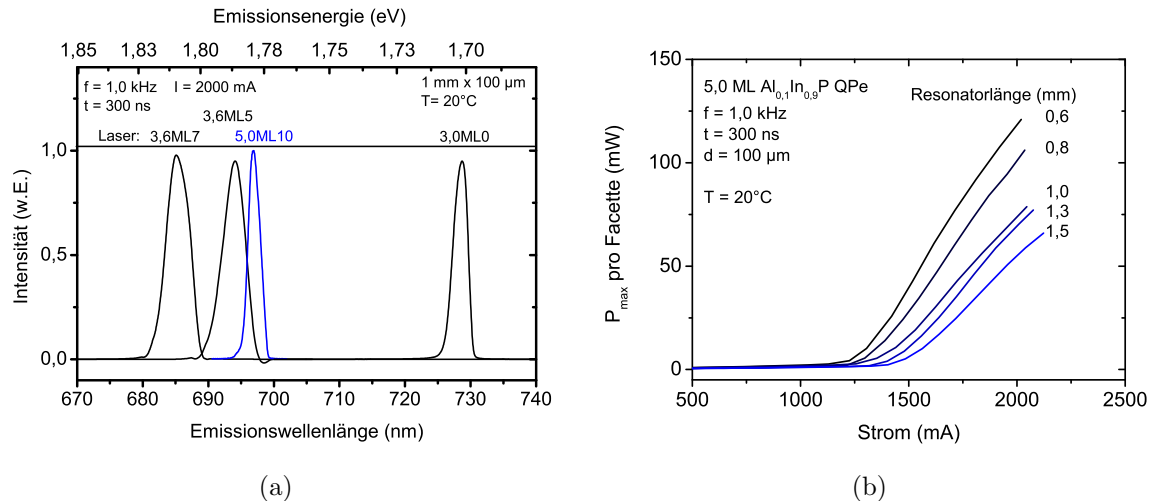


Abbildung 3.10: (a) Emissionsspektren der Laser im gepulsten Betrieb. (b) Ausgangskennlinien des Lasers 5,0ML10 mit $d = 100$ μ m Kontaktbreite als repräsentatives Beispiel für alle untersuchten Laser.

kompensieren. Die Abnahme der Steigung und damit die von η_d hängt mit den Spiegelverlusten zusammen: Diese gehen nach Gleichung (2.40) direkt in η_d ein und führen für größere Kavitätslängen zu einer Abnahme von η_d .

In Abbildung 3.10b erkennt man auch, dass bei größeren Strömen die Kennlinien leicht vom linearen Verlauf abweichen und nach unten abknicken. Erklärbar ist dies vermutlich durch die sehr hohen Stromdichten, welche bei hohen Strömen in den Lasern vorherrschen. Es ist denkbar, dass bei hohen Stromdichten nicht mehr alle Ladungsträger in die QPe relaxieren und dort rekombinieren können, da diese bereits gefüllt sind und somit wird die Ausgangsleistung gesättigt [Sug05]. Für die Auswertung wurden Ausgleichsgeraden im unteren Teil der Kennlinien angepasst, um Sättigungseffekte in der Bestimmung der Laserparameter zu vermeiden.

Die Schwellstromdichte J_{th} der Laser ist in Abbildung 3.11a über die reziproke Resonatorlänge $1/L$ aufgetragen. Die angepassten Kurven stellen Exponentialfunktionen nach Gleichung (2.42) dar, woraus sich die Transparenzstromdichte J_{tr} und der modale Verstärkungskoeffizient Γg_0 ermitteln lässt. Eine Verschiebung der Kurven nach oben auf der y -Achse bedeutet in dieser Auftragung eine Zunahme der Transparenzstromdichte J_{tr} . Zudem erkennt man, dass die oberen Kurven stärker gekrümmt sind als die unteren. Dies entspricht einem kleineren modalen Verstärkungskoeffizienten Γg_0 . In Abbildung 3.11b ist der reziproke externe differentielle Wirkungsgrad $1/\eta_d$ über die Resonatorlänge aufgetragen. Durch die Ausgleichgeraden erhält man nach Gleichung (2.40) den internen Wirkungsgrad η_i und die interne Absorption α_i des Lasermaterials. In dieser Auftragung bedeutet eine Verschiebung der Kurven auf der y -Achse nach oben eine Abnahme des internen Wirkungsgrades η_i . Auch zu erkennen ist die bei al-

len Geraden nahezu gleiche Steigung. Aus dieser lässt sich die interne Absorption α_i bestimmen, die hier für alle gemessenen Laserstrukturen sehr ähnlich ist.

Es sei hier darauf hingewiesen, dass jeder Punkt in Abbildung 3.11 einen Mittelwert aus der Messung von 5–7 einzelnen Lasern darstellt.

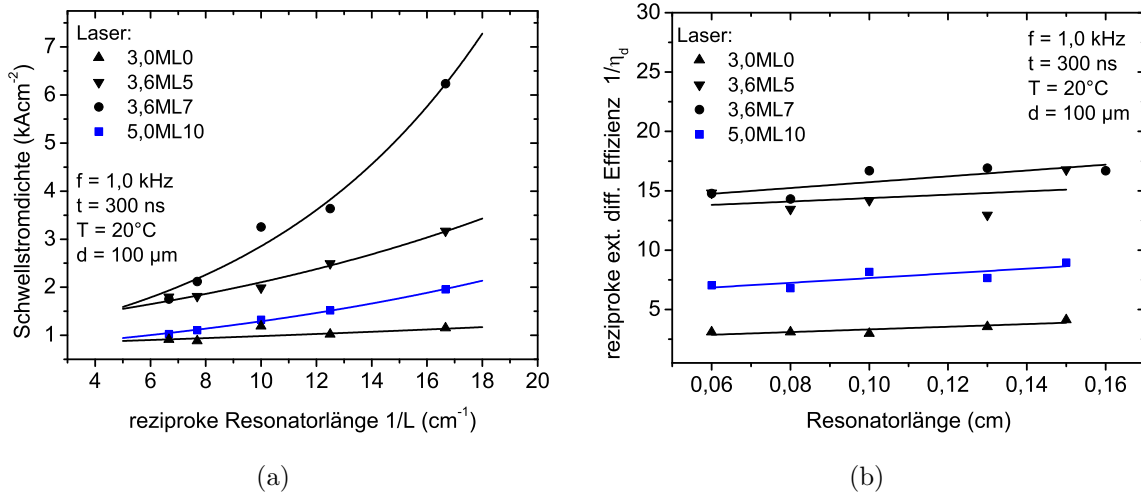


Abbildung 3.11: (a) Schwellstromdichte J_{th} aufgetragen über die reziproke Resonatorlänge und angepasste Exponentialfunktionen zur Bestimmung von J_{tr} und Γg_0 . (b) Reziproke externe differenzielle Effizienz $1/\eta_d$ aufgetragen über die Resonatorlänge und Ausgleichsgeraden zur Bestimmung von α_i und η_i . Jeder Punkt in diesen Graphen entspricht dabei dem Mittelwert aus etwa 5–7 einzelnen Breitstreifenlasern.

Zur Bestimmung der Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichte und daraus der charakteristischen Temperatur T_0 wurden jeweils Kennlinien der Laser mit 1,0 mm Resonatorlänge in Schritten von 5°C bei Temperaturen zwischen 5°C und 75°C aufgenommen. Als Beispiel sind Kennlinien für unterschiedliche Temperaturen des Lasers 3,0ML0 in Abbildung 3.12a gezeigt. Wie man in dieser Abbildung sieht, nimmt die Schwellstromdichte mit steigender Temperatur zu. Durch die Auftragung der Schwellstromdichte, die aus den einzelnen Kennlinien bestimmt werden kann, über die Temperatur und eine Kurvenanpassung nach Gleichung (2.43) erhält man die charakteristische Temperatur T_0 . Diese Auswertung ist für alle hier gezeigten Laser in Abbildung 3.12b durchgeführt. Eine stärkere Krümmung der Kurven resultiert dabei aus einem kleineren T_0 -Wert und damit einer schlechteren Temperaturstabilität. Hierbei ist jedoch zu beachten, dass bei dem hier verwendeten einzelnen Laserbauteil die Schwellstromdichte bei Raumtemperatur für 5,0ML10 höher liegt als für 3,6ML5, wobei diese im Mittel bei 5,0ML10 geringer ist (siehe Abbildung 3.11a).

Die ermittelten Werte für die interne Absorption lagen bei allen untersuchten Lasern bei sehr ähnlichen niedrigen Werten um $\alpha_i = 1 \text{ cm}^{-1}$. Betrachtet man die übrigen Laser-

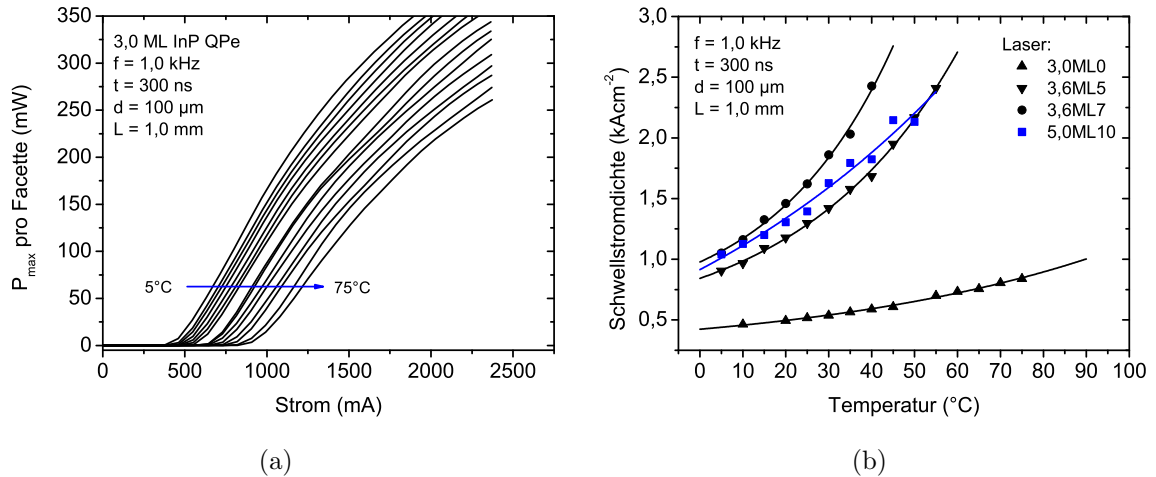


Abbildung 3.12: (a) Kennlinien des Lasers 3,0ML0 für unterschiedliche Temperaturen. (b) Auftragung der aus den Kennlinien bestimmten Schwellstromdichte über die Temperatur für alle Laser.

parameter der Probenserie mit ca. 3 ML (Al)InP-QPen in Abbildung 3.11, so wird deutlich, dass ein Erhöhen der Emissionsenergie mittels größerer Al-Konzentration in einer Degradation der Lasereigenschaften resultiert. Dies ist aufgrund der in Abschnitt 3.3 gewonnenen Erkenntnisse bezüglich Morphologie und PL-Eigenschaften dieser QPe auch verständlich, wobei unterschiedliche Effekte eine Rolle spielen. Zum einen zeigte die Auswertung der Morphologie, dass die QP-Oberflächendichte mit steigendem Al-Gehalt aufgrund der verringerten Gitterfehlangepassung zurückgeht. Damit steht bei den Lasern 3,6ML5 und 3,6ML7 effektiv weniger verstärkendes Material zur Verfügung. Zum anderen wurde die Bandlücke der QPe mittels AIP erhöht und es bilden sich kleinere QPe. Dies führt zu einem verschlechterten elektronischen Einschluss der Ladungsträger aufgrund der größeren Bandlücke und zusätzlich zur Erhöhung der Energieniveaus in den QPen durch die Quantisierung, da diese mit $1/d^2$ vom QP-Durchmesser abhängen (vgl. Gleichung (2.28)). Aufgrund der kleinen effektiven Masse ist dieser Effekt im Leitungsband für Elektronen besonders stark ausgeprägt. Zwar wurde der Wellenleiter bei den Al-haltigen QPen angepasst, so dass für die Laser mit höherer Emissionenergie auch die Barriere um die QPe erhöht wurde, trotzdem führt eine Erhöhung der Bandlücke und eine verstärkte Quantisierung zu einem vermehrten Entkommen von Ladungsträgern aus den QPen in die Barriere. Diese können dort nichtstrahlend rekombinieren und stehen nicht mehr für die Laseremission zur Verfügung. Dies konnte man auch schon im Verhalten der Photolumineszenzintensität der (Al)InP-QPe beobachten (Abbildung 3.6).

Betrachtet man nicht nur die Serie mit ca. 3 ML $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$, sondern schließt auch den Laser 5,0ML10 mit ein, so kann man am besten Aussagen über das Verhalten machen, wenn man die Laserparameter über die Emissionswellenlänge aufträgt. Dies ist

in Abbildung 3.13 geschehen. Hier sind die durch die Kurvenanpassung in Abbildung 3.11 und 3.12b ermittelten Laserparameter über die Emissionswellenlänge bei 1,0 mm Resonatorlänge der entsprechenden Laser aufgetragen. In Teilbild (a) ist dabei der modale Verstärungskoeffizient Γg_0 und die interne Effizienz η_i aufgetragen. Teilbild (b) zeigt die Transparenzstromdichte J_{tr} und die charakteristische Temperatur T_0 . Betrachtet man zunächst die Serie mit 3 bzw. 3,6 ML (Al)InP, so zeigt sich das bereits oben diskutierte Verhalten: Der modale Verstärungskoeffizient Γg_0 nimmt beim Übergang zu kürzeren Wellenlängen innerhalb der Serie ab. Dies lässt sich sehr gut mit den Beobachtungen der Morphologie aus Abschnitt 3.3 erklären: Mit steigendem Al-Anteil nimmt hier die Oberflächendichte der QPe ab, was zu einer Verringerung des modalen Verstärungskoeffizienten Γg_0 führt. Hierbei wird zum einen der modale Überlapp Γ durch das geringere gesamte QP-Volumen verringert. Zum anderen nimmt auch die elektronische Zustandsdichte durch die geringere Anzahl an QPen ab, was die Materialverstärkung g verringert [Kir96, Sch07].

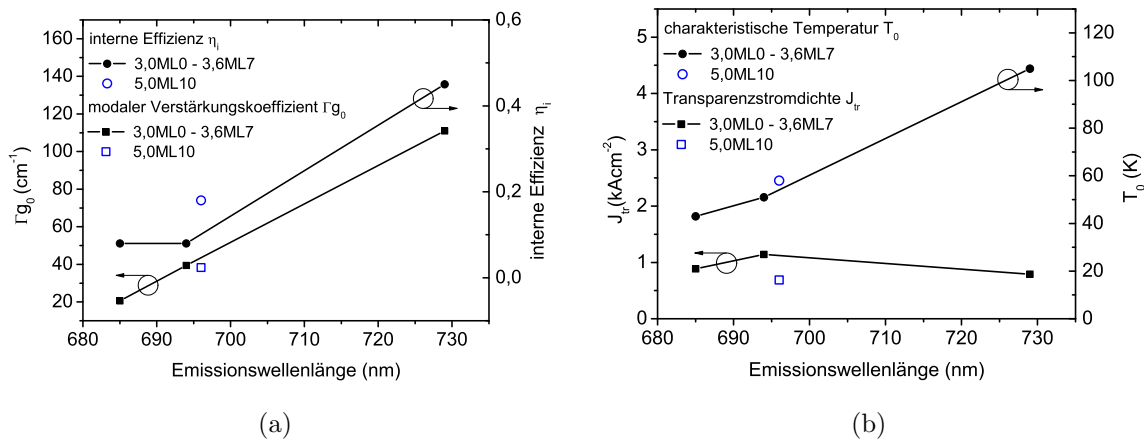


Abbildung 3.13: (a) Modaler Verstärungskoeffizient Γg_0 und interne Effizienz η_i bzw. (b) Transparenzstromdichte J_{tr} und charakteristische Temperatur T_0 aufgetragen über die Wellenlänge.

Bezüglich der internen Effizienz η_i zeigt sich, dass auch hier eine Abnahme mit steigendem Al-Gehalt stattfindet. Wie in Kapitel 2 definiert bezeichnet die interne Effizienz den Anteil des Stromes, der in der aktiven Zone Ladungsträger generiert, die zur Verstärkung beitragen können [Col95]. Auch die Abnahme von η_i ist verständlich: Durch den geringeren Einschluss von Ladungsträgern in den QPen aufgrund größerer effektiver Bandlücke, werden mehr Ladungsträger aus der aktiven Zone in die umliegenden Bereiche der Laserdiode angeregt, wo sie nicht mehr zur Verstärkung beitragen.

Abbildung 3.13b zeigt das Verhalten der Transparenzstromdichte J_{tr} und der charakteristischen Temperatur T_0 in Abhängigkeit der Emissionwellenlänge. Die Abnahme von T_0 bei geringeren Emissionswellenlängen und damit höheren Al-Anteilen in den QPen spiegelt den eben bereits angesprochenen verminderten Einschluss der Ladungsträger

bei QPen mit viel Aluminium wider: Eine Erhöhung der Umgebungstemperatur führt nach Gleichung (2.29) zu einer Erhöhung der Wahrscheinlichkeit, dass Ladungsträger aus den QPen in die Barrieren entkommen. Da bei QPen mit mehr Al die Aktivierungsenergie E_A kleiner ist, nimmt die Schwellstromdichte bei höheren Temperaturen folglich stärker zu.

Die Transparenzstromdichte J_{tr} ändert sich innerhalb der Serie mit 3 bzw. 3,6 ML nur wenig und zeigt nur eine leichte Tendenz bei kürzerer Emissionswellenlänge zuzunehmen.

Mit offenen Symbolen dargestellt ist in allen Graphen der Laser 5,0ML10, der eine sehr ähnliche Emissionswellenlänge wie 3,6ML5 aufweist. Wie man schon in Abbildung 3.11 und 3.12b gesehen hat, besitzt dieser aus größeren QPen mit mehr Al-Gehalt basierende Laser sowohl bezüglich der Schwellstromdichten für unterschiedliche Resonatorlängen, als auch bezüglich der Effizienz und Temperaturstabilität bessere Eigenschaften als 3,2ML5.

Betrachtet man die Werte im Einzelnen (Abbildung 3.13), so weist 5,0ML10 praktisch den gleichen modalen Verstärkungskoeffizienten Γg_0 wie 3,6ML5 auf, was durch die praktisch gleiche QP-Oberflächendichte erklärt werden kann. Interne Effizienz η_i , charakteristische Temperatur T_0 und Transparenzstromdichte J_{tr} sind aber zum Teil deutlich besser als bei 3,6ML5. Dies wird verständlich, betrachtet man die Intensität einer PL-Messung bei Raumtemperatur von vergleichbaren QP-PL-Proben in Abschnitt 3.3. Der hier gemessene Trend setzt sich auch in den Lasern fort: Durch die größeren Abmessungen der QPe erfahren die Ladungsträger (aufgrund der geringeren effektiven Masse vor allem Elektronen) einen besseren Einschluss, was zu überlegenen Lasereigenschaften bei vergleichbaren Emissionswellenlängen gegenüber Lasern mit kleineren QPen und weniger Al-Anteil führt. Dieser Effekt dominiert sogar, obwohl der Wellenleiter bei 5,0ML10 weniger Al enthielt und damit eine geringere Barrierenhöhe aufwies ((Al_{0,45}Ga_{0,55})_{0,51}In_{0,49}P bei 3,6ML5 zu (Al_{0,40}Ga_{0,60})_{0,51}In_{0,49}P bei 5,0ML10).

Diese Ergebnisse zeigen, dass die direkte und unabhängige Kontrolle der Morphologie und Übergangsenergie von AlInP-QPen mittels des gezielten Einstellens des Al-Gehaltes durchaus Vorteile in der Herstellung von rot emittierenden QP-Lasern mit vorgegebener Wellenlänge bietet.

3.4.3 Dauerstrichbetrieb

Sehr viele Anwendungen benötigen Laserlichtquellen im Dauerstrichbetrieb. In diesem Abschnitt sollen daher Stegwellenleiterstrukturen von Lasern, welche auf AlInP-QPen basieren vorgestellt werden, bei denen ein Betrieb mit Konstantstrom bei Raumtemperatur möglich ist. Dabei werden die Eigenschaften und Parameter der Laser im Dauerstrichbetrieb erläutert. Die hier verwendeten Laserstrukturen basieren auf der Probe 5,0ML10, welche in Abschnitt 3.4.2 grundcharakterisiert wurde. Auf Basis dieser Probe

wurden nach dem in Abschnitt 3.4.1 beschriebenen Verfahren Laser mit Stegwellenleiter hergestellt. Die Stegbreiten betragen dabei 2, 3, 4 und 5 μm .

Abbildung 3.14a zeigt Ausgangskennlinien für Laser mit unterschiedlichen Stegbreiten und einer Resonatorlänge von 1,0 mm bei Raumtemperatur unter Dauerstrichbetrieb. Zusätzlich ist die Strom-Spannungs-Kennlinie aufgetragen. Die maximale Ausgangsleistung liegt bei 7 mW pro Facette für Laser mit 2 μm Stegbreite und ist durch thermisches Überrollen begrenzt. Die Schwellströme sind aufgrund der unterschiedlichen Größe der gepumpten Fläche abhängig von der Stegbreite und liegen zwischen 35 mA für Laser mit 2 μm Stegbreite und 73 mA für Laser mit 5 μm Stegbreite. Berechnet man mit Hilfe der gepumpten Fläche die Schwellstromdichte der jeweiligen Laser, so nimmt diese mit zunehmender Stegbreite zunächst ab, wie in Abbildung 3.15 dargestellt. Ein Minimum findet sich bei 4 μm . Dies ist vermutlich auf eine Rauigkeit der Ätzflanken der Stegwellenleiter zurückzuführen, welche vom Ätzprozess zur Stegwellenleiterdefinition herrühren und für eine Streuung und Absorption von Photonen sorgen. Bei den breiteren Stegen sind diese Flanken weiter vom Maximum der lateralen Mode entfernt und führen so zu geringeren Verlusten als bei schmalere Stegen. Der erneute Anstieg der Schwellstromdichte bei Laser für 5 μm resultiert aus dem breiteren gepumpten Bereich, wobei die Verluste durch die Ätzflanken nicht mehr wesentlich abnehmen. Man nähert sich hier sozusagen der verstärkungsgeführten Mode des Breitstreifenlasers an.

Die Steigungen der Ausgangskennlinien liegen im Bereich um 0,2 W/A, wobei hier das Optimum bei einer Breite von 3 μm erreicht wird.

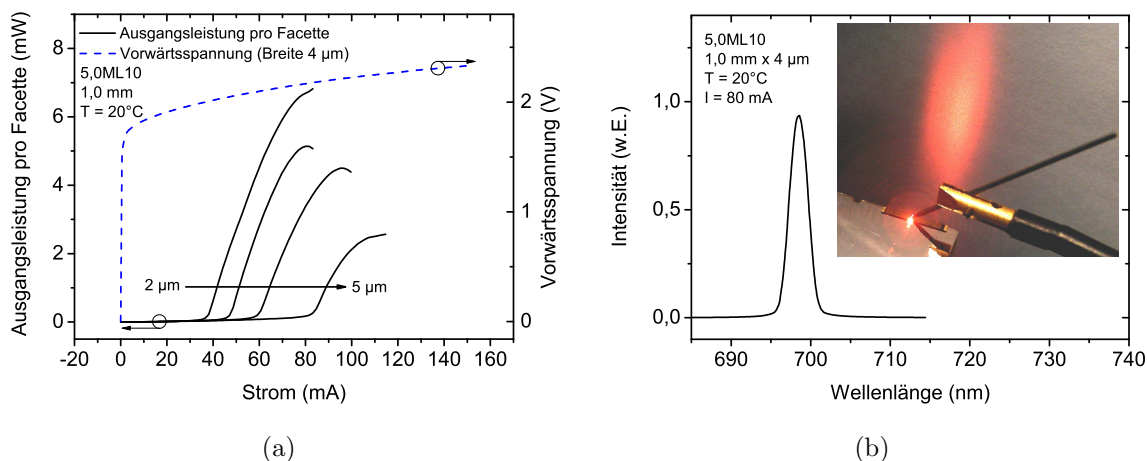


Abbildung 3.14: (a) Ausgangskennlinien für 1,0 mm lange Laser mit Stegbreiten zwischen 2 - 5 μm sowie eine Strom-Spannungs-Kennlinie für einen Laser mit 4 μm Breite. (b) Emissionsspektrum für einen Laser mit 4 μm Stegbreite bei Raumtemperatur. Das eingefügte Bild zeigt ein Foto des Lasers im Betrieb.

Ein Emissionsspektrum (Stegbreite $4 \mu\text{m}$) ist in Abbildung 3.14(b) gezeigt. Gegenüber der gepulsten Messung des Breitstreifenlasers ergibt sich durch die Änderung der Modenföhrung, aber vor allem durch die Erwärmung der aktiven Zone aufgrund des Konstantstroms eine Rotverschiebung der Emissionswellenlänge um ca. 3 nm . Legt man eine temperaturabhängige Wellenlänge von $0,13 \text{ nm/K}$ zugrunde, welche zuvor am Breitstreifenlaser von 5,0ML10 durch Variation der Wärmesenktemperatur bestimmt wurde, so kann man eine Erhöhung der Temperatur der aktiven Zone im Dauerstrichbetrieb bei 80 mA von etwa 23 K abschätzen. Liest man auch die an der Laserdiode bei 80 mA anliegende Spannung zu $2,17 \text{ V}$ und die optische Ausgangsleistung zu $6,8 \text{ mW}$ (für beide Facetten) ab, so kann nach Gleichung (2.44) hiermit der thermische Widerstand berechnet werden. Es ergibt sich ein Wert von 138 K/W . Nach Gleichung (2.45) kann dieser Wert auch näherungsweise aus den Abmessungen des Lasers mit $w = 4 \mu\text{m}$, $h = 200 \mu\text{m}$ und $L = 1 \text{ mm}$ und der thermischen Leitfähigkeit des Lasermaterials abgeschätzt werden. Benutzt man für diese Abschätzung den Wert für GaInP von $\xi = 0,157 \text{ W/cmK}$ [Nak88] ergibt sich $R_{th} = 107 \text{ K/W}$. Bedenkt man, dass es sich bei Gleichung (2.45) nur um eine Näherungsformel handelt, stimmt dieser Wert relativ gut mit den experimentellen Beobachtungen überein.

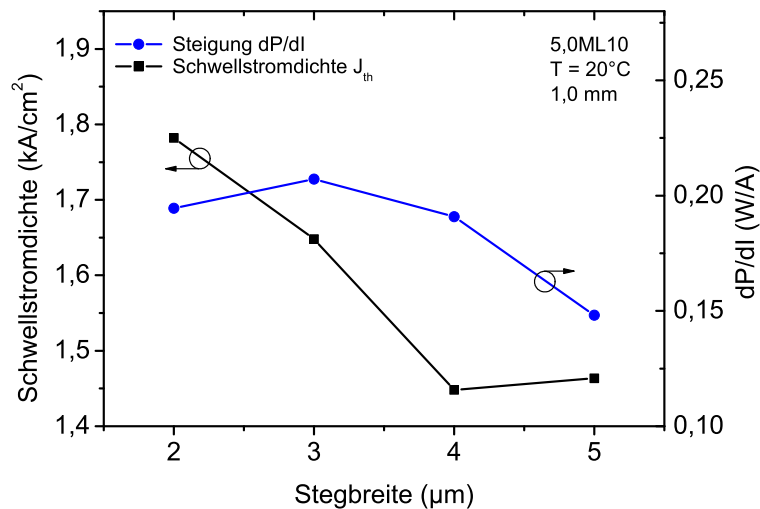


Abbildung 3.15: Schwellstromdichte und Steigung der Ausgangskennlinie in Abhängigkeit der Stegbreite. Jeder Wert stellt den Mittelwert aus einer Messung von drei bis vier Lasern dar.

3.4.4 Die kurzweilige Grenze von AlGaInP-Lasern

Um die Emission noch weiter zu kürzeren Wellenlängen hin zu verschieben, wurde ein Laser mit $5,0 \text{ ML Al}_{0,13}\text{In}_{0,87}\text{P}$ -QPen (im Folgenden als 5,0ML13 bezeichnet) hergestellt, mit dem eine Wellenlänge von 656 nm erreicht werden konnte. Die hier gezeigten

Eigenschaften ergaben sich analog zu den Lasern in Abschnitt 3.4.2 durch eine gepulste Messung von Lasern mit unterschiedlicher Resonatorlänge. Allerdings wurden diese Messungen nicht an Breitstreifenlasern, sondern an Lasern mit Stegwellenleiter und einer Stegbreite von $3 \mu\text{m}$ durchgeführt.

Abbildung 3.16a zeigt die Schwellstromdichte für 5,0ML13 aufgetragen über die reziproke Resonatorlänge für Schwellstromdichten, die mit der Stegbreite von $3 \mu\text{m}$ berechnet wurden. Durch die Anpassung einer Exponentialfunktion nach Gleichung (2.42) ergibt sich ein modaler Verstärkungskoeffizient von 24 cm^{-1} , was immer noch mit den in Abschnitt 3.4.2 beschriebenen Lasern vergleichbar ist. Allerdings ist die Transparenzstromdichte mit $5,0 \text{ kA/cm}^2$ sehr hoch.

Durch eine Geradenanpassung an die reziproke externe differentielle Effizienz aufgetragen über die Resonatorlänge (Abbildung 3.16b) kann man interne Absorption und internen differentiellen Wirkungsgrad bestimmen, man erhält $\alpha_i = 0,8$ und $\eta_i = 0,03$.

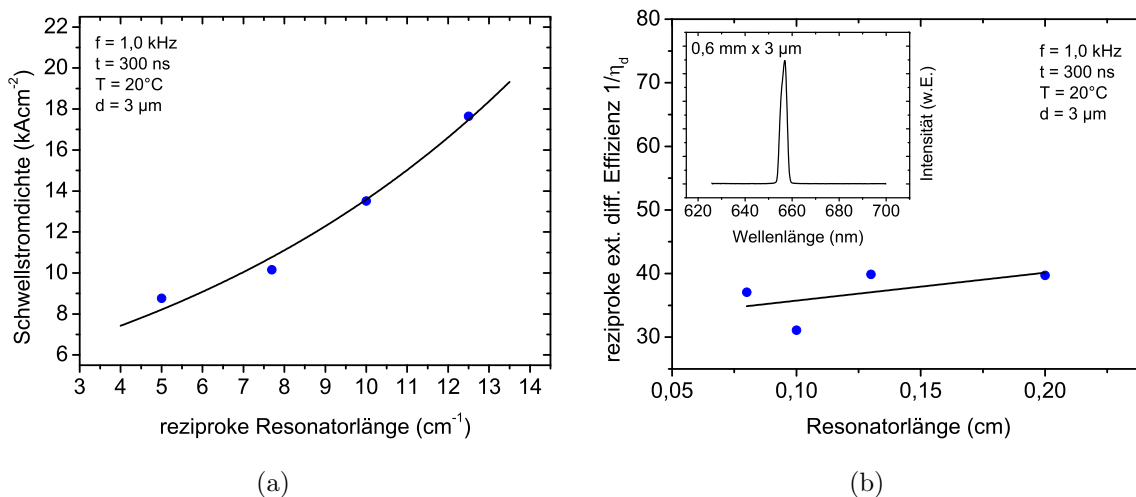


Abbildung 3.16: (a) Schwellstromdichte über reziproke Resonatorlänge im gepulsten Betrieb mit angepasster Exponentialfunktion. (b) Reziproke externe differentielle Effizienz für unterschiedliche Resonatorlängen und angepasste Gerade. Das eingefügte Bild zeigt ein Emissionsspektrum für einen 0,6 mm langen Laser.

Der sehr kleine Wert für η_i fügt sich in die Auftragung der Laserparameter über die Wellenlänge (Abbildung 3.13) ein, wo eine Abnahme von η_i bei kürzeren Wellenlängen zu beobachten ist. Die extrem hohe Transparenzstromdichte J_{tr} und das geringe η_i zeigen, dass die Laserstruktur 5,0ML13 bereits sehr nahe am unteren Limit der Wellenlänge eines QP-Lasers basierend auf GaAs-gitterangepasstem AlGaInP ist. Allerdings ist durch weitere Optimierung der Wachstumsparameter und der Schichtstruktur durchaus noch eine weitere Verschiebung der Emission hin zu kürzeren Wellenlängen möglich. So demonstrierten Walter *et al.* 2003 einen Laser basierend auf QPen, welche an Quantenfilme gekoppelt waren, mit einer Emissionswellenlänge von 645 nm bei 20°C . Dieser

RWG-Laser hatte eine Schwelle von 34 mA im Dauerstrichbetrieb bei Abmessungen von $200\ \mu\text{m} \times 4\ \mu\text{m}$. Der kurzwelligste bisher veröffentlichte Laser basierend auf einer Schicht QPe wurde 2009 von Schulz *et al.* veröffentlicht und emittierte bei 638 nm. Dieser mittels MOCVD hergestellte Laser hatte im gepulsten Betrieb eine Schwellstromdichte von $840\ \text{A}/\text{cm}^2$ bei Raumtemperatur mit einer Breitstreifengeometrie von $2,0\ \text{mm} \times 64\ \mu\text{m}$ und funktionierte bis 40°C .

Diese Ergebnisse legen nahe, dass man mit geeigneter Optimierung von Dotierprofil, Schichtstruktur und -qualität und der direkten Kontrolle der QP-Morphologie und Übergangsenergie mittels des in dieser Arbeit gezeigten Ansatzes noch etwas kurzwelligere Emissionen erzielen kann. Zusammen mit den in Abschnitt 3.4.2 dargestellten Daten zeigt dies aber auch, dass sich die Eigenschaften von (Al)InP-QP-Lasern mit abnehmender Wellenlänge zusehens verschlechtern. Der Grund ist das begrenzte Einschlusspotential des AlGaInP-Materialsystems, wenn es auf GaAs gitterangepasst gewachsen wird. Die Mantelschichten mit dem geringsten Brechungsindex, die sich in diesem Materialsystem realisieren lassen, bestehen aus $\text{Al}_{0,52}\text{In}_{0,48}\text{P}$. Die Wellenleiterschicht kann dabei nicht wesentlich mehr als etwa 30% Al enthalten, da ansonsten Leckströme vom Wellenleiter in die Mantelschichten stark zunehmen [Rie02]. Dies begrenzt jedoch auch den Einschluss der Ladungsträger in den QPen. Eine abnehmende Emissionswellenlänge bedeutet dabei ein immer flacheres Einschlusspotential für Elektronen und Löcher, was zu immer mehr Reemission von Ladungsträgern aus den QPen in die umgebenden Schichten führt. Diese stehen nicht mehr für den Laserübergang zur Verfügung und die Laserdaten wie Schwellstromdichte, Effizienz und charakteristische Temperatur verschlechtern sich. Wie im vorigen Abschnitt gezeigt kann man zwar durch direkte Kontrolle der Zusammensetzung und Morphologie der QPe die Eigenschaften derartiger Laser verbessern, letztendlich ist aber auch dieser Ansatz durch die Bandlücken des auf GaAs gitterangepassten AlGaInP-Materialsystems begrenzt. Für noch größere Übergangsenergien ist man damit auf andere Materialsysteme angewiesen. Im folgenden Kapitel sollen daher (Al,Ga)InP-QPe, welche auf GaP-Substrat hergestellt werden, auf ihre Eignung in der Optoelektronik im sichtbaren Spektralbereich untersucht werden. Diese Materialkombination bietet neben den sehr großen erreichbaren Bandlücken zudem die Möglichkeit optoelektronische Bauteile auf Si-Wafern zu realisieren, da GaP und Si nur eine geringe Gitterfehlanpassung aufweisen.

4 (Al,Ga)InP-Quantenpunkte auf GaP

4.1 Strahlende Übergänge in Galliumphosphid

Selbst unbewachsenes GaP zeigt bei Photolumineszenzmessungen einige leicht detektierbare strahlende Übergänge im sichtbaren Spektralbereich [Ing03]. Diese rühren sowohl von der Dotierung des Substrats, also der gezielten Verunreinigung, als auch von ungewollter Verunreinigung des Substrats während der Herstellung her. Um die Lumineszenz des Substrats eindeutig von jener der aufgewachsenen Quantenstrukturen wie QPen und Benetzungsschicht trennen zu können, wurde das unbewachsene Substrat mittels Photolumineszenz untersucht.

Eine Photolumineszenzmessung von einem unbewachsenen GaP-Epitaxiesubstrat ist in Abbildung 4.1 dargestellt. Deutlich zu erkennen ist ein Doppelmaximum um 570 nm. Dieses Signal ist auf Donor-Akzeptor-Paarübergänge (DA-Paarübergänge) zurückzuführen, welche zwischen Schwefel (als Donor) und z.B. Kohlenstoff (als Akzeptor) stattfinden [Ala97]. Schwefel ist dabei als Dotierstoff in dem n-dotierten Substrat eingebracht, während Kohlenstoff eine nicht zu vermeidende Verunreinigung im Substrat darstellt. Dieser Übergang wird als Doppelmaximum detektiert, da man neben dem Hauptmaximum auch ein bzw. zwei Phononen-Replika dieses Übergangs beobachten kann, welche als Schultern auf der langwelligen Seite des Hauptübergangs auftreten [Ala97]. In Abbildung 4.1 ist als Einfügung eine vergrößerte Darstellung dieser Emission zu sehen. Auf der kurzwelligen Seite der DA-Übergänge erkennt man eine Vielzahl von schmalen Linien, welche, bei höherer Auflösung betrachtet, die Feinstruktur der DA-Übergänge darstellen [Tho64]. Der Hauptübergang und das erste Phononen-Replikum befinden sich bei allen untersuchten Substraten bei 10 K bei 2,17 eV bzw. 2,22 eV und besitzen Halbwertsbreiten von 0,35 eV bzw. 0,25 eV.

Neben den DA-Übergängen erkennt man zentriert um etwa 725 nm in Abbildung 4.1 einen sehr breiten, weniger intensiven Übergang. Dieser ist auf Sauerstoffverunreinigungen im Substrat zurückzuführen, welche während des Herstellungsprozesses in den Halbleiter unbeabsichtigt eingebracht werden [Ing03, Dea83]. Dabei sitzen die Sauerstoff-Atome energetisch ungefähr in der Mitte der indirekten Bandlücke von GaP und ermöglichen so einen strahlenden Defektübergang von Elektronen vom Leitungs-

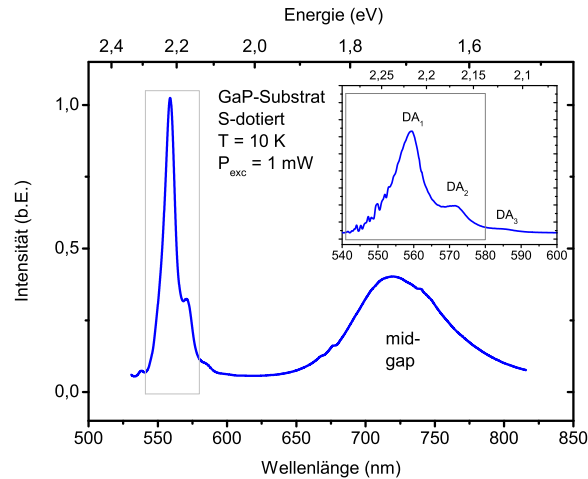


Abbildung 4.1: Photolumineszenzspektrum von Volumen-GaP bei 10K und einer Anreizungsleistung P_{exc} von 1 mW.

ins Valenzband. Daher wird dieser Übergang auch mid-gap Übergang (von engl. *mid-gap* in der Mitte der Bandlücke) genannt. Je nach Qualität des verwendeten Epitaxie-substrates und sogar innerhalb einer Charge, zeigt dieser Übergang sehr unterschiedliche Intensitäten und Halbwertsbreiten. Auch die energetische Lage kann leicht variieren.

Da in den nächsten Abschnitten QP-Proben diskutiert werden, welche auch deutlich oberhalb von 10 K Lumineszenz zeigen, wurde auch das GaP-Ausgangsmaterial bei verschiedenen Temperaturen untersucht. Abbildung 4.2 zeigt die entsprechenden Spektren zwischen 10 K und 130 K. Während der DA-Übergang bereits bei 60 K kaum noch zu detektieren ist, kann man den Sauerstoff-Defektübergang bis ca. 120 K beobachten.

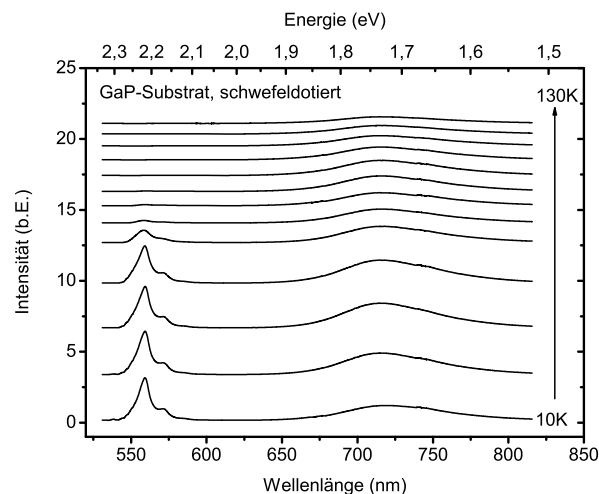


Abbildung 4.2: Photolumineszenzspekten von Volumen-GaP zwischen 10 K und 130 K in Schritten von 10 K.

4.2 GaInP-Quantenpunkte in GaP

4.2.1 Probenherstellung

Alle in diesem Kapitel behandelten Proben wurden mittels GS-MBE hergestellt. Dabei wurde schwefeldotiertes GaP-(100)-Substrat mit einem Durchmesser von 2 Zoll und einer Dicke von 300 μm verwendet, welches auf der Epitaxie-Seite poliert, auf der Rückseite matt geätzt war.

Die Substrattemperatur während des Wachstums wurde dabei über das im Manipulator eingebaute Thermoelement (engl. *thermocouple*, TC) kontrolliert und nicht, wie sonst in der Epitaxie üblich, mittels optischer Verfahren wie beispielsweise eines Pyrometers. Pyrometer messen die Schwarzkörperstrahlung des heißen Substrates und ermitteln so die Temperatur. Der Grund, warum ein solches Verfahren hier nicht eingesetzt werden kann ist, dass typische, für die Epitaxie von GaAs eingesetzte Pyrometer in einem Wellenlängenbereich von etwa 900 nm bis 1000 nm arbeiten. Bei den typischen Substrattemperaturen (von ca. 400 - 700°C) während der Epitaxie ist in diesem Bereich genügend Intensität für die verlässliche Messung der Substrattemperatur vorhanden und GaAs absorbiert bei diesen Temperaturen Licht dieser Wellenlängen. Aufgrund der großen Bandlücke von GaP ist dieses jedoch auch bei hohen Temperaturen für Infrarot-Strahlung in diesem Wellenlängenbereich transparent [Vur01], was dazu führt, dass das Pyrometer lediglich die Strahlung der hinter dem Substrat angebrachten Heizspirale misst, und so keine zuverlässige Temperaturmessung der Halbleiterscheibe liefert. Dies ist in Abbildung 4.3 veranschaulicht, wo die Planck'sche Strahlungsverteilung eines Schwarzkörperstrahlers bei einer Substrattemperatur von 600°C aufgetragen ist [Ott08]. Zusätzlich sind die Bandlücken von GaAs und GaP bei dieser Temperatur sowie der Messbereich eines typischen Pyrometers eingezeichnet [Vur01, Spr90]. Abbildung 4.3 zeigt auch ein Bild eines GaP-Substrates, welches aufgrund seiner Bandlücke im sichtbaren Spektralbereich bei Raumtemperatur orange erscheint. Um dennoch eine Aussage über die Substrattemperatur während des Wachstums treffen zu können, wurde das TC vor der Epitaxie von GaP mittels eines GaAs-Wafers, für den die Pyrometermessung möglich ist, mit annähernd gleichen Abmessungen kalibriert. Als zusätzlicher Parameter wurde der durch die Heizwendel fließende Strom überwacht.

Der gesamte Wachstumsprozess fand unter einem Phosphin-Fluss von 15 sccm statt, welches bei einer Zelltemperatur von 1100°C thermisch aufgebrochen wurde (vgl. Abschnitt 2.4.1). Für den Wachstumsprozess wurde das Substrat zunächst auf 630°C erhitzt, um es von eventuell auf der Oberfläche vorhandenen Oxiden und anderen Verunreinigungen zu reinigen. Anschließend wurde die Substrattemperatur auf 560°C gesenkt und eine 200 nm dicke undotierte GaP-Pufferschicht abgeschieden, welche vor allem dem Glätten des Substrats dient. Bei unveränderter Substrattemperatur wurde danach 150 nm Barrierenmaterial, welches aus $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$ ($0 \leq x \leq 1$) bestand abgeschieden. Zum Wachstum der Quantenpunkte wurde während einer Wachstums-

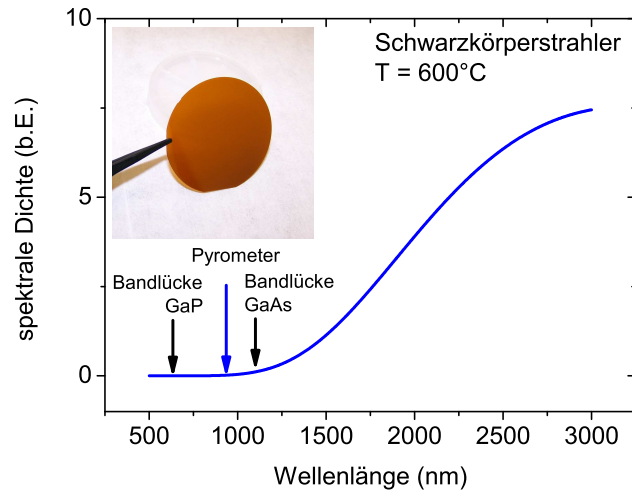


Abbildung 4.3: Planck'sche Strahlungsverteilung für einen Schwarzkörperstrahler der Temperatur 600°C , einer typischen Substrattemperatur in der Epitaxie. Eingezeichnet sind die ungefähren Absorptionskanten von GaAs und GaP bei dieser Temperatur sowie die typische Arbeitswellenlänge eines Pyrometers. Links oben ist ein Bild eines GaP-Substrates zu sehen, das aufgrund seiner Bandlücke im sichtbaren Spektralbereich bei Raumtemperatur orange erscheint.

pause die Substrattemperatur auf Werte um 500°C abgesenkt und zwischen 4,8 und 7,4 ML (Ga)InP abgeschieden. Eine Monolage bezieht sich dabei auf eine vollständig druckverspannte Schicht InP auf einer Oberfläche aus GaP, was einer Anzahl von $6,7 \times 10^{14}$ Indiumatomen pro Quadratzentimeter entspricht und damit eine Schichtdicke von 0,3424 nm erzeugt [Mas01]. Nach einer Pause von 60 s für die Oberflächenmigration der Adatome und zum Reifen der Quantenpunkte wurden diese wiederum mit 200 nm Barrierenmaterial bei 560°C überwachsen. Auf der Oberfläche der Probe wurden abschließend nominell identische Quantenpunkte unter soweit wie möglich identischen Bedingungen für morphologische Untersuchungen mittels AFM und REM abgeschieden.

Wie schon bei den AlInP-QPen aus den Kapiteln zuvor wurde auch hier, um eine vollständige Durchmischung der angebotenen Materialien zu gewährleisten, bei der Abscheidung ein bestimmter Zyklus der Blendenbetätigung eingehalten, der zu einer Abwechslung der Materialschichten im Bereich von einer ML führt. Ein Beispiel für die Abscheidung von 2 nm $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ ist in Abbildung 4.4 dargestellt. Auf diese Weise wurden $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QPe mit $0 \leq x \leq 0,46$ hergestellt und bezüglich ihrer morphologischen und optischen Eigenschaften untersucht.

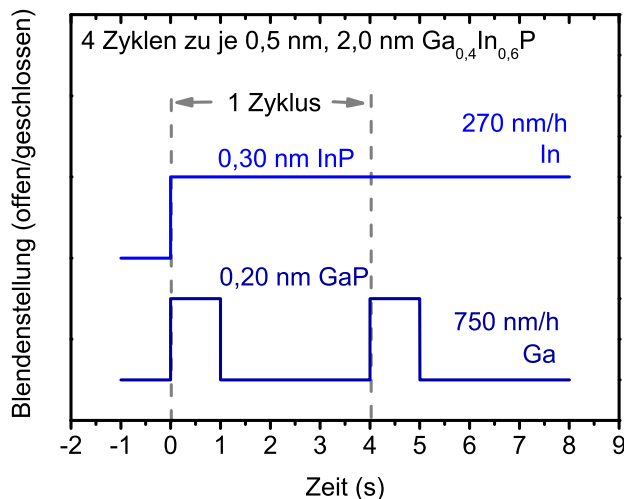


Abbildung 4.4: Zyklus für die Abscheidung von 2 nm $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ mit den typischen verwendeten Wachstumsraten.

4.2.2 Morphologische Eigenschaften

Wie in Abschnitt 4.2.1 beschrieben wurden $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QP-Proben hergestellt, um den Einfluss des Ga-Gehalts auf die morphologischen und optischen Eigenschaften der QPe zu untersuchen. Dazu wurde eine Probenserie gewachsen, welche unterschiedliche Zusammensetzungen zwischen 0% Ga (InP) und 46% Ga enthielt. Da sich mit zunehmendem Ga-Gehalt die Gitterkonstante von $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ immer mehr an die von GaP annähert und somit die Gitterfehlpassung immer kleiner wird [Vur01], steigt die kritische Schichtdicke an. Um dennoch über die kritische Schichtdicke zu kommen wurde die abgeschiedene Materialmenge zwischen der Probe mit 0% Ga und 46% Ga sukzessive erhöht (von 4,8 ML reinem InP bis 7,4 ML bei $\text{Ga}_{0,46}\text{In}_{0,54}\text{P}$).

Ein besonderes Augenmerk bei der Untersuchung der Morphologie lag auf der Oberflächendichte der QPe, also der Anzahl der QPe pro Fläche, da dies eine wichtige Kenngröße für die spätere Anwendung in Lasern oder Leuchtdioden darstellt. Eine hohe Flächendichte ist dabei eine Voraussetzung für eine effiziente Lichterzeugung, da diese von der Anzahl der verfügbaren Lichtemitter abhängt. Diese Anzahl beeinflusst im Laser direkt den Überlapp der Mode mit den aktiven Emittern Γ , sowie über die Zustandsdichte auch die Materialverstärkung g . Wie in Abschnitt 3.4.2 gesehen, hat die Oberflächendichte damit einen großen Einfluss auf die modale Verstärkung im Laser, welche mit steigender Oberflächendichte zunimmt.

Abbildung 4.5 zeigt REM- und AFM-Aufnahmen von unüberwachsenen $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QPen mit unterschiedlichen Zusammensetzungen. Dabei sind auf der linken Seite AFM-Aufnahmen in 3D-Darstellung der hier diskutierten Proben gezeigt. Rechts sieht man REM-Aufnahmen der Proben unter einem Winkel von 20° zur Oberfläche. Es ist schon mit bloßem Auge zu erkennen, dass die Oberflächendichte der QPe mit steigendem Ga-Gehalt stark zunimmt. Zudem erkennt man das Auftreten von deutlich kleineren

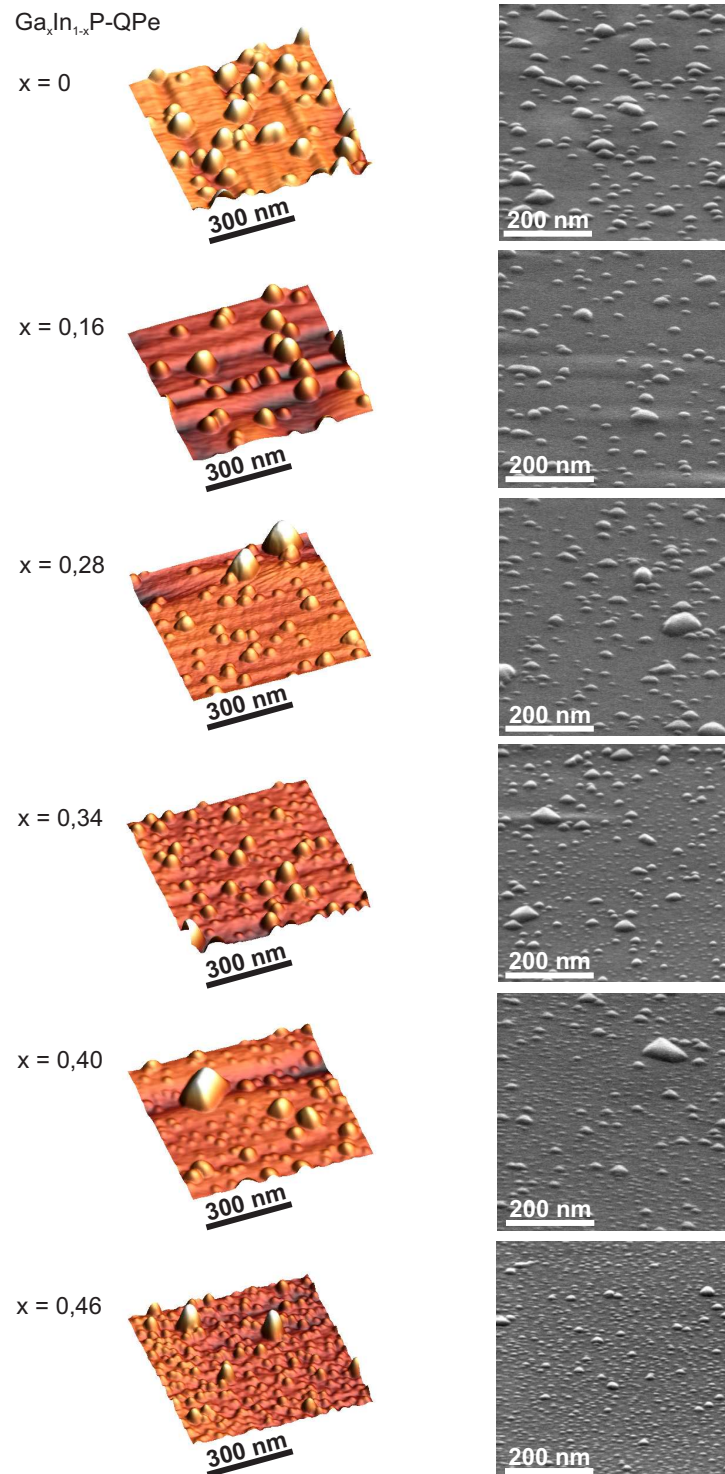


Abbildung 4.5: REM- (rechts) und AFM-Bilder (links, in 3D Darstellung) der unüberwachten $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P-QPe}$. Die Kantenlänge der Aufnahmen beträgt jeweils 600 nm.

QPen ab einer Ga-Konzentration von 34%, die neben den größeren vorhanden sind. Dies führt zu einem starken Anstieg der gesamten Oberflächendichte bei den Proben mit Ga-Konzentrationen über 30%.

Abbildung 4.6a zeigt die quantitative Auswertung der Anzahl der Oberflächenquantenpunkte in Abhängigkeit der Zusammensetzung. Hier erkennt man gut den Einfluss der angebotenen Ga-Menge auf die Oberflächendichte der QPe. Während reine InP-QPe ($x = 0$) Dichten von etwa $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ aufweisen, steigt die Dichte bis zur Probe mit 46% Ga um fast eine Größenordnung auf etwa $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ an. Dies stellt einen Rekordwert dar, bisherige Maximalwerte lagen meist im Bereich zwischen 5×10^9 und $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ [Por00, Hat03]. Der Grund für die Abhängigkeit der Oberflächendichte von der Zusammensetzung könnte in der unterschiedlichen Bindungsstärke von Ga-Atomen im Gegensatz zu In-Atomen an der Oberfläche des Substrates während des Wachstums liegen: Da GaP eine höhere Bindungsstärke als InP besitzt [Cah64], ist die Migrationslänge der Ga-Adatome auf der Oberfläche bei sonst gleichen Wachstumsbedingungen geringer als die der In-Adatome. Dies führt dazu, dass bei Erreichen der kritischen Schichtdicke mehr Kondensationszentren zur Verfügung stehen an denen QPe entstehen können. Dies wiederum führt zu einer größeren Oberflächendichte der QPe.

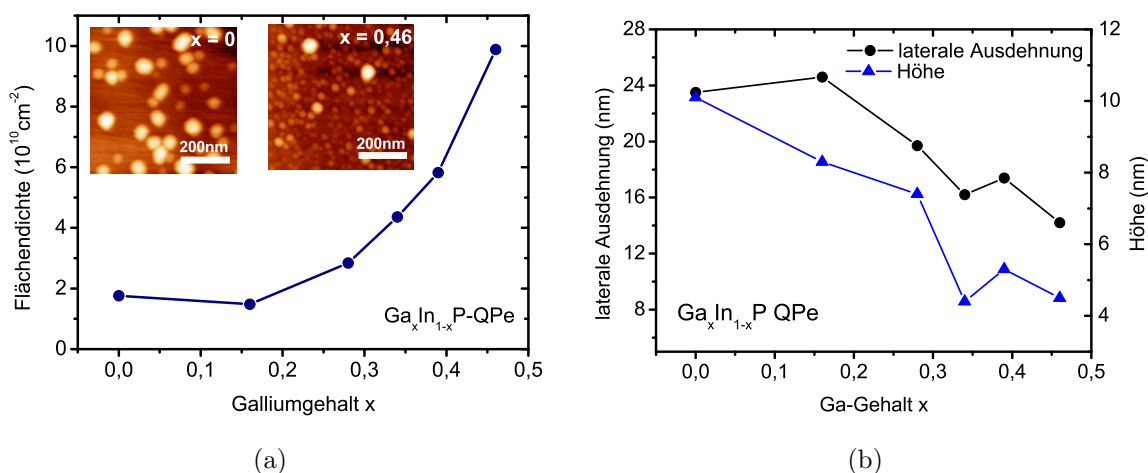


Abbildung 4.6: (a) Oberflächenendichte von $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QPen in Abhängigkeit der Zusammensetzung. Links oben sind AFM-Aufnahmen in Aufsicht dargestellt. (b) Mittlere Ausdehnungen der QPe in lateraler Richtung bzw. in der Höhe in Abhängigkeit der Zusammensetzung.

Weitere interessante Eigenschaften dieser QPe ergeben sich bei der genaueren statistischen Auswertung der Größenverteilung sowohl in lateraler Richtung als auch in der Höhe. Abbildung 4.6b zeigt zunächst die mittleren Ausdehnungen der QPe. Wie man auch in den Mikroskop-Aufnahmen in Abbildung 4.5 sehen kann, nimmt die mittlere Größe der QPe mit zunehmendem Ga-Gehalt ab. Dieses Verhalten ist leicht verständ-

lich: Zwar wurde mit steigendem Ga-Gehalt immer mehr Material abgeschieden, um die größere kritische Schichtdicke zu kompensieren, jedoch steigt die Anzahl der gebildeten QPe sehr viel stärker an. Dies führt dazu, dass bei den Proben mit höheren Ga-Konzentrationen letztlich weniger Material pro QP zur Verfügung steht. Die QPe müssen also zwingend kleiner werden. Die Größenverteilung der QPe ist in Abbildung 4.7 gezeigt. Hier wurde für alle Proben die Größe und Breite der QPe gemessen und gemäß der jeweiligen Häufigkeit aufgetragen. Zusätzlich wurden an die Daten Gaußkurven angepasst. Man erkennt, dass unter 34% Ga QPe mit lateralen Ausdehnungen um 25 nm und Höhen um 10 nm dominieren. Kleinere QPe treten nur selten auf. Dieses Verhalten ändert sich, wenn man die Probe mit 34% Ga betrachtet. Hier, bei mittlerem Ga-Gehalt, erkennt man eine zweite Verteilung mit Breiten um 15 nm und Höhen um 4 nm. Gleichzeitig sind jedoch noch größere QPe vorhanden und es existiert eine deutlich ausgeprägte bimodale Verteilung. Betrachtet man die Proben mit höherem Ga-Gehalt von über 34%, so sind die größeren QPe fast verschwunden und es dominieren klar die kleineren QPe.

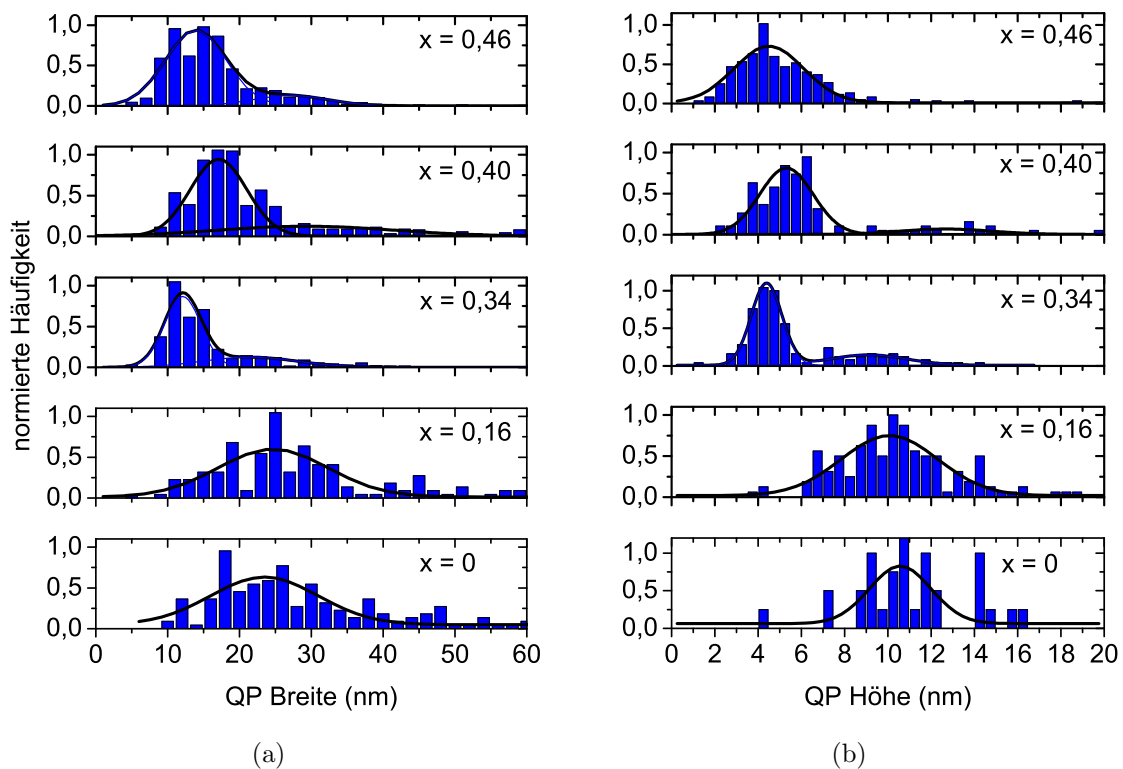


Abbildung 4.7: Statistische Verteilung der QP-Dimensionen einiger Proben aus der Ga-Serie: (a) Verteilung der Breite, (b) Verteilung der Höhe von $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QPen. Die angepassten Kurven sind einzelne Gaußfunktionen, bzw. zwei Gaußfunktionen, wenn bimodale Verteilungen beobachtet wurden.

Tabelle 4.1 fasst die Ergebnisse der Größenstatistiken zusammen. Hier sind die mittleren Abmessungen und die Halbwertsbreiten der angepassten Gaußkurven ersichtlich. Abweichungen ergeben sich vor allem bei den Proben mit hohem Ga-Gehalt (40% und 46%) für die größeren QPe (Abmessungen h_2 und d_2), da hier nur noch wenige dieser QPe vorliegen und damit die Statistik auf weniger Einzelmessungen beruht als bei den übrigen Proben.

Tabelle 4.1: Zusammenfassung der Ergebnisse aus der statistischen Auswertung der REM- und AFM-Aufnahmen von $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QPen; durch Anpassung von Gaußkurven erzeugte Mittelwerte und Halbwertsbreiten (FWHM) für laterale Abmessungen (d_1 , d_2) und Höhen (h_1 , h_2). Die Indizes 1, 2 beziehen sich auf die jeweiligen bimodalen Verteilungen.

x	h_1 [nm]	FWHM $_{h_1}$ [nm]	h_2 [nm]	FWHM $_{h_2}$ [nm]	d_1 [nm]	FWHM $_{d_1}$ [nm]	d_2 [nm]	FWHM $_{d_2}$ [nm]
0	-	-	10	3	-	-	23	16
0,16	-	-	8	4	-	-	25	18
0,28	-	-	7	3	-	-	20	20
0,34	4	2	9	4	12	6	21	15
0,40	5	3	12	7	17	9	29	29
0,46	5	4	-	-	14	10	27	12

4.2.3 Photolumineszenz

In diesem Kapitel wird auf die optischen Eigenschaften von $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QPen in GaP eingegangen, welche in Kapitel 4.2.2 hinsichtlich ihrer Morphologie untersucht wurden. Der Messaufbau ist in Kapitel 2.4.2 beschrieben.

Abbildung 4.8 zeigt ein PL-Spektrum reiner InP-QPe ($x = 0$) eingebettet in GaP bei Tieftemperatur. Vergleicht man dieses Spektrum mit dem von unbewachsenen GaP (Abbildung 4.1), so erkennt man neben den Donor-Akzeptor-Paarübergängen (DA) und dem *mid-gap*-Übergang, welche auch in unbewachsenem GaP zu sehen sind ein weiteres Signal um 620 nm, welches den QPen zuzuordnen ist [Hat01, Bei03, Ing03, Dew09]. Im Vergleich zu den vom Substrat stammenden Übergängen ist das Signal dieser einzelnen QP-Schicht allerdings vergleichsweise schwach.

Betrachtet man jedoch die gesamte Probenserie mit unterschiedlichen Zusammensetzungen der QPe, so zeigt sich eine deutlich erhöhte Intensität des QP-Signals ab einem Ga-Gehalt von über 30%. Dies ist in Abbildung 4.9 zu erkennen.

Teilbild 4.9a zeigt dabei ein Übersichtsspektrum, in dem der gesamte relevante Spektralbereich von 550 nm bis 760 nm zu sehen ist. Dort sind sowohl die vom GaP-Substrat stammenden DA-Übergänge (um ca. 570 nm) und *mid-gap*-Übergänge (um 740 nm) zu

erkennen als auch das den QPen zugeordnete Signal im Bereich um 620 nm. Teilbild (b) gibt den Teil des Spektrums mit dem Signal der QPe vergrößert wieder. Zunächst fällt auf, dass sich mit steigendem Ga-Gehalt x die Emissionswellenlänge des QP-Signals nicht signifikant ändert, wie man es erwarten würde, wenn man die Bandlücke von $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ in Betracht zieht. Dies wurde in früheren Arbeiten mit der Ladungsträgerdynamik zwischen der indirekten GaP-Barriere, der Benetzungsschicht und den QPen, sowie dem Ordnungsphänomen in GaInP erklärt [Por00, Lee97].

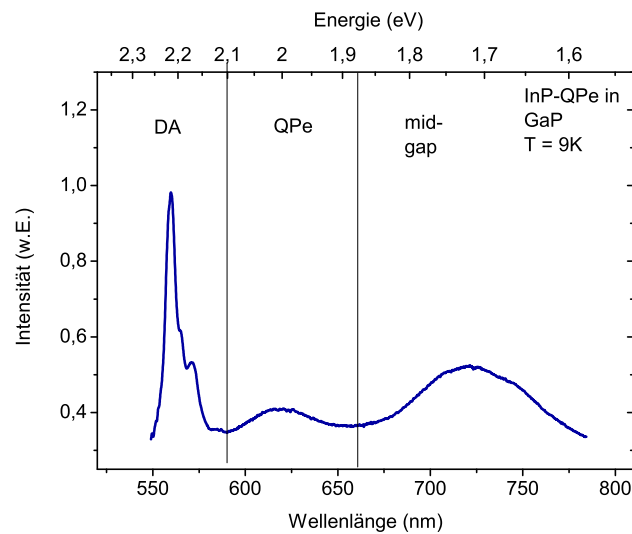


Abbildung 4.8: PL-Spektrum von InP-QPen eingebettet in GaP bei Tieftemperatur.

Weiterhin fällt auf, dass die DA-Übergänge, die in Abbildung 4.1 von unbewachse- nem GaP gezeigt sind, von Probe zu Probe leicht unterschiedlich aussehen. Besonders deutlich ist dies in den Proben mit $x = 0$ und $x = 0,16$ zu erkennen. Der Grund liegt in der Benetzungsschicht der QPe, welche in diesen Fällen ebenfalls einen optischen Übergang zeigt, den man in etwa im gleichen Wellenlängenbereich wie die DA-Übergänge erwarten würde [Hat01]. Dies führt zu einer „Modulation“ des Messsignals der DA-Übergänge und damit zu einer geänderten Form des Spektrums.

Einen weiteren interessanten Aspekt, welcher hier genauer diskutiert werden soll, stellt die unterschiedliche Emissionsintensität der QPe dar, welche stark von der Zusammen- setzung abhängt. Dies ist sowohl in Abbildung 4.9a zu erkennen, wo die Normierung der Spektren auf den jeweils höchsten Peak dazu führt, dass ab $x = 0,34$ die Signale des GaP-Substrates von dem Signal der QP deutlich überstrahlt werden, als auch in Abbildung 4.9b, wo die Emission der QPe vergrößert dargestellt ist.

Der zunächst naheliegendste Grund für die Zunahme der PL-Intensität bei steigen- dem Ga-Gehalt ist die stark zunehmende QP-Oberflächendichte mit größerem x , wie im vorherigen Abschnitt diskutiert. Dies ist einleuchtend, da bei einer größeren Ober- flächendichte bei gleicher angeregter Fläche mehr Emitter zur Verfügung stehen und

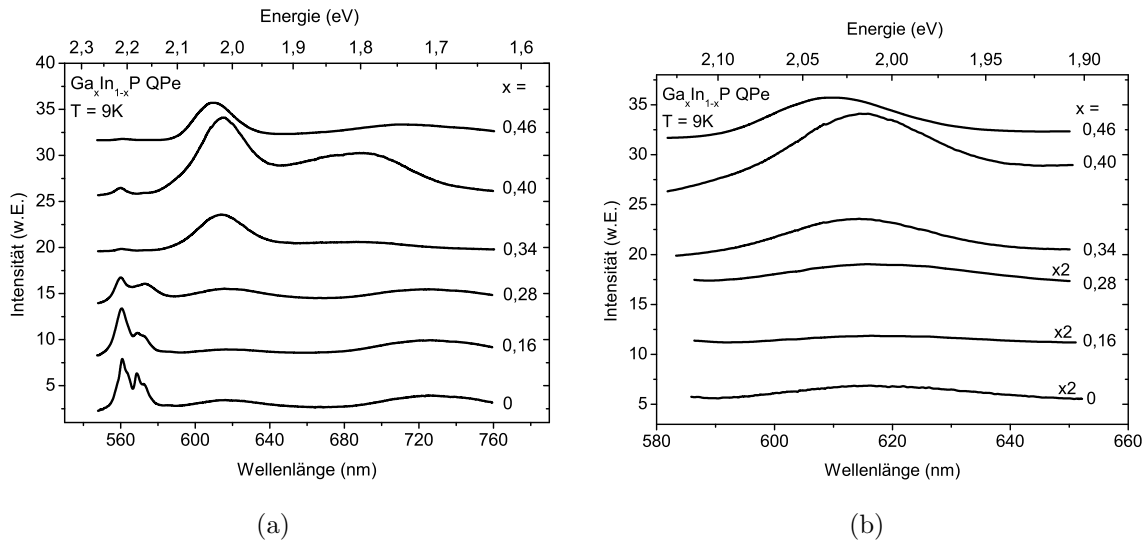


Abbildung 4.9: PL-Spektren von $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QPen in GaP für verschiedene Werte von x . (a) zeigt Übersichtsspektren über den gesamten relevanten Spektralbereich, in denen auch die DA- und *mid-gap*-Übergänge zu sehen sind. (b) zeigt einen vergrößerten Bildausschnitt von (a) mit dem Signal, das den QPen zugeordnet wird. Die Spektren für $x = 0, 0,16$ und $0,28$ wurden um einen Faktor zwei hochskaliert.

damit eine größere Emissionsintensität erreicht werden kann. Dass dies jedoch nicht der einzige Grund für die Abhängigkeit der Intensität mit der Zusammensetzung sein kann, wird aus Abbildung 4.10 deutlich.

Hier ist die integrierte PL-Intensität der QP-Spektren aus Abbildung 4.9b gegen die Zusammensetzung aufgetragen. Wie aus Abbildung 4.9 schon ersichtlich ist, nimmt die absolute Intensität mit steigendem Ga-Gehalt stark zu. Teilt man nun diese Intensität durch die QP-Oberflächendichten der jeweiligen Proben, so erhält man eine auf die Anzahl der angeregten QPe normierte Intensität. Diese „Emission pro QP“ kann als Kenngröße für die Effizienz des QP-Materials betrachtet werden und ist ebenfalls in Abbildung 4.10 aufgetragen. Erkennbar steigt auch diese normierte Emissionsintensität mit dem Ga-Gehalt stark an, was für eine Zunahme der Strahlungseffizienz der QPe mit steigendem Ga-Gehalt spricht.

Der Grund für dieses Verhalten kann auf die statistischen Verteilung der QP-Größen zurückgeführt werden. Betrachtet man Abbildung 4.7, so erkennt man, dass ab der Probe mit 28% Ga die mittlere Ausdehnung der QPe (und hier vor allem die Höhe) stark abnimmt, was aus dem vermehrten Auftreten von kleineren QPen mit großer Oberflächendichte resultiert. Genau ab dieser Zusammensetzung steigt auch die Emissionsintensität und Strahlungseffizienz der QPe stark an. Dies ist ein Zeichen dafür, dass kleinere QPe eine wesentlich bessere Lumineszenzausbeute liefern als größere. Besonders deutlich wird dies in Abbildung 4.11. Hier ist nochmals die auf die Oberflä-

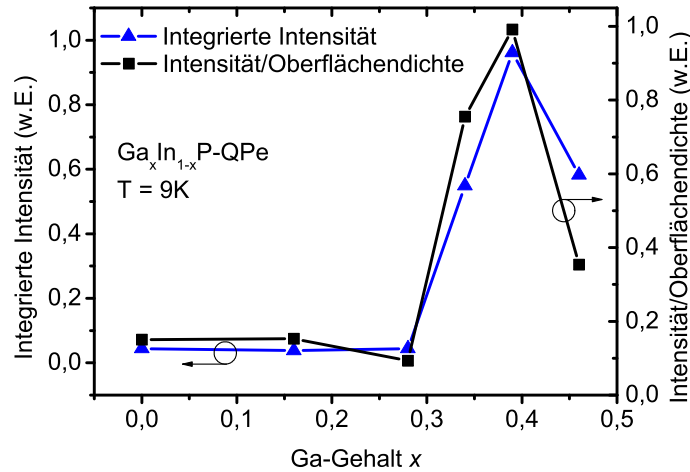


Abbildung 4.10: Integrierte PL-Intensität von QPen in Abhängigkeit der Zusammensetzung. Aufgetragen sind die Absolutwerte sowie die Intensität normiert auf die Oberflächendichte der jeweiligen Oberflächen-QPe.

chendichte normierte PL-Intensität über dem Ga-Gehalt aufgetragen. Zusätzlich eingezeichnet sind aber auch die QP-Oberflächendichten für QPe unterschiedlicher Höhen. Diese wurden nach

$$n(h) = \frac{N(h)}{N_{ges}} n_{ges}$$

berechnet, wobei $N(h)$ die anhand von AFM-Aufnahmen ausgezählte Anzahl von QPen der Größe h darstellt, N_{ges} die gesamten ausgezählten QPe und n_{ges} die gesamte Oberflächendichte von QPen aller Größen. Damit bezeichnet $n(h)$ die Oberflächendichte von QPen der Größe h . Wie man sieht, skaliert die Anzahl der QPe mit Größen bis 6 nm sehr ähnlich zur normierten PL-Intensität, während die QPe mit Größen ab 7 nm einen gegenläufigen Trend zeigen. Dies untermauert die Vermutung, dass QPe mit Größen unter 7 nm eine deutlich höhere Lumineszenzausbeute zeigen als größere QPe. Allerdings erkennt man auch, dass die Effizienz für den Punkt bei 46% Ga wieder abnimmt.

Ähnliche Beobachtungen wurden schon zuvor mit reinen InP-QPen in GaP-Substrat gemacht. Auch hier konnte eine deutlich gesteigerte Lumineszenzausbeute bei kleineren QPen beobachtet werden [Hat03]. Die unterschiedlichen QP-Größen wurden dort aber nicht durch unterschiedliches Gruppe-III-Materialangebot während des epitaktischen Wachstums erreicht, sondern durch unterschiedliche Phosphorflüsse während des Wachstums der InP-QPe. Der Grund für die starke Abnahme der Effizienz von großen QPen in diesem Materialsystem wird hier in Defekten vermutet, die sich vor allem in den sehr stark verspannten größeren QPen bilden [Hat03]. Diese Defekte wirken als nichtstrahlende Rekombinationszentren für Ladungsträger in den QPen und setzen so die Emissionsintensität herab.

Die erneute Abnahme der Lumineszenzausbeute und QP-Effizienz bei sehr hohen Ga-Konzentrationen von 46%, wie sie in Abbildung 4.10 beobachtet werden kann, kann

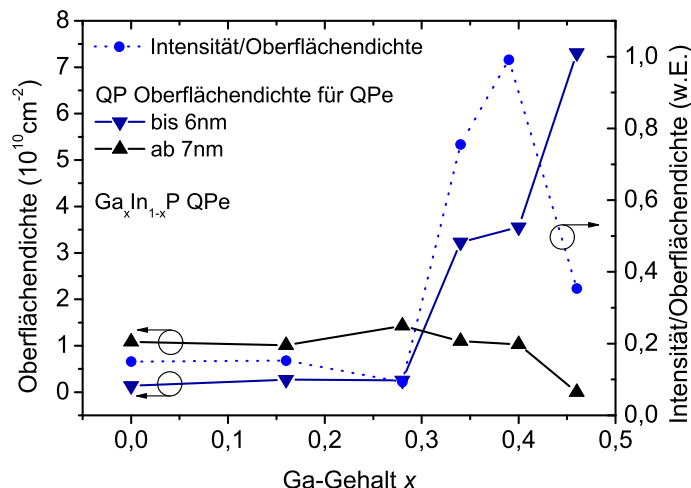


Abbildung 4.11: Auf die Oberflächen- und PL-Intensitätsdichten normierte PL-Intensität verglichen mit der Oberflächen- und PL-Intensitätsdichte von QPen mit unterschiedlichen Größen.

hiermit jedoch nicht erklärt werden. Denn diese Probe zeigt eine noch größere Dichte von sehr kleinen QPen. Allerdings wird in Abschnitt 4.5.2 im Zuge numerischer Berechnungen der Bandstruktur ein Modell vorgestellt, welches zusammen mit der Neigung zur Defektbildung bei großen QPen eine Erklärung für den Intensitätsverlauf liefern kann.

4.3 AlGaInP-Quantenpunkte in GaP

4.3.1 Probenherstellung

Der Probenaufbau war grundsätzlich der gleiche wie bei den $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -QP-Proben, die in Abschnitt 4.2.1 beschrieben werden: Nach der Oxidation und dem Wachstum der 200 nm dicken GaP-Pufferschicht wurden 5,8 ML (Al,Ga)InP zur Bildung der QPe abgeschieden. Diese QPe wurden wiederum überwachsen und auf der Oberfläche für morphologische Studien erneut abgeschieden. Bei den Proben, bei denen die QPe in AlGaP eingebettet waren, wurden diese in die Mitte einer 150 nm dicken Schicht AlGaP gewachsen, welche bei gleichem PH_3 -Fluss und unveränderter Substrattemperatur abgeschieden wurde.

Die Substrattemperatur während des Abscheidens der AlGaInP-QPe und der Wachstumspause direkt nach dem Abscheiden betrug bei den Al-haltigen QPen 520°C und war damit 10°C höher als bei den GaInP-QPen aus dem vorherigen Abschnitt, da AlP eine stärkere chemische Bindung besitzt als GaP und InP [Cah64]. Dies resultiert in einer größeren Bindung der Al-Adatome an der Substratoberfläche und damit zu einer geringeren Migrationslänge. Die Substrattemperatur wurde um 10°C erhöht, um so thermisch der geringeren Migrationslänge entgegenzuwirken und eine gute Ausbildung der QPe und Durchmischung der Materialien zu gewährleisten.

Der Durchmischung der Materialien muss beim Wachstum von quaternären QPen besondere Aufmerksamkeit gewidmet werden, da aufgrund der teilweise sehr unterschiedlichen Wachstumsraten (zwischen 300 nm/h und 750 nm/h) und gewünschten Materialkonzentrationen in den QPen (zwischen 5% und 60%) darauf geachtet werden muss, dass so weit wie möglich homogen durchmischte QPe erzeugt werden. Hierzu wurde der in Abschnitt 4.2.1 verwendete Abscheidezyklus um Aluminium erweitert. Es ergibt sich ein Zyklus, der für ein Beispiel mit $\text{Al}_{0,06}\text{Ga}_{0,34}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen in Abbildung 4.12 dargestellt ist.

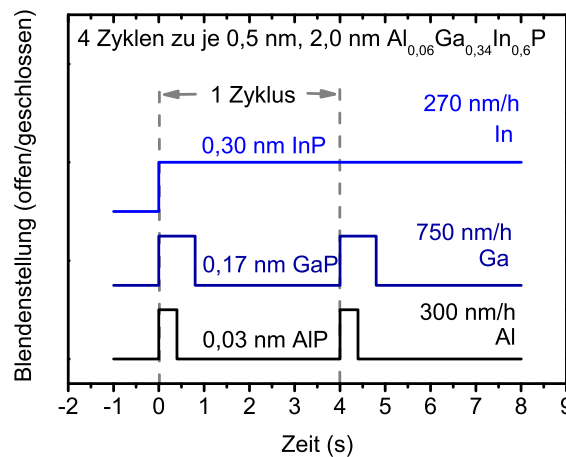


Abbildung 4.12: Abscheidezyklus für das Wachstum von 2 nm $\text{Al}_{0,06}\text{Ga}_{0,34}\text{In}_{0,6}\text{P}$ mit typischen Wachstumsraten.

4.3.2 Morphologische Eigenschaften

Da die Probe mit $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen, wie in Abschnitt 4.2.3 beschrieben die höchste Lumineszenzausbeute lieferte, wurde diese erneut als Referenzprobe hergestellt. Auf dieser Basis wurden $\text{Al}_y\text{Ga}_{0,4-y}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QP-Proben gewachsen, bei denen unterschiedliche Anteile Ga durch Al ersetzt wurden. Im Folgenden werden die morphologischen Eigenschaften dieser Proben, die zwischen 0% und 10% Aluminium enthalten, dargestellt.

Abbildung 4.13 zeigt REM- und AFM-Aufnahmen von auf der Probenoberfläche abgeschiedenen $\text{Al}_y\text{Ga}_{0,4-y}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen unterschiedlicher Zusammensetzung. Die Oberflächendichten der QPe liegen zwischen $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ für die Probe mit 5% Aluminium und $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ für die restlichen Proben, was um etwa eine Größenordnung niedriger ist als die Oberflächendichte der $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPe aus Kapitel 4.2.2. Da dies jedoch auch bei der erneut hergestellten Probe mit $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen der Fall ist, wird dies nicht dem Beimischen von Aluminium zugeschrieben, sondern einer generellen Änderung der Wachstumsbedingungen. So wurde im Vergleich zu den GaInP-QP-Proben aus Abschnitt 4.2.2 die Substrattemperatur während des Wachstums um 10°C höher gewählt,

was eine größere Migrationslänge der adsorbierten Atome auf der Oberfläche zur Folge hat und somit zu einer geringeren Oberflächendichte und größeren Abmessungen der QPe beiträgt. Zusätzlich ist die Kontrolle der Substrattemperatur mittels eines Thermoelements an der Rückseite des Substrats beim Wachstum auf GaP zwar unvermeidlich, jedoch mit gewissen Unsicherheiten verbunden, so dass die Substrattemperatur auch höher als 520°C gelegen haben könnte. Auch die von der Probenserie stark abweichende Morphologie der Probe mit 5% Al ist wahrscheinlich auf eine unterschätzte Substrattemperatur beim Wachstum der Oberflächen-QPe zurückzuführen. Bei dieser Probe erkennt man auf den AFM- und REM-Aufnahmen neben den großen QPen geringer Oberflächendichte auch extrem kleine. Dies ist ein Hinweis darauf, dass aufgrund eines erhöhten Ostwald-Reifeprozesses, ausgelöst durch die zu hohe Substrattemperatur, vermehrt Material von kleinen zu großen QPen transferiert wurde [Car95, Poo01]. Aufgrund der extrem kleinen Abmessungen dieser QPe sind sie praktisch nicht zuverlässig zu vermessen und wurden bei der folgenden statistischen Auswertung nicht berücksichtigt.

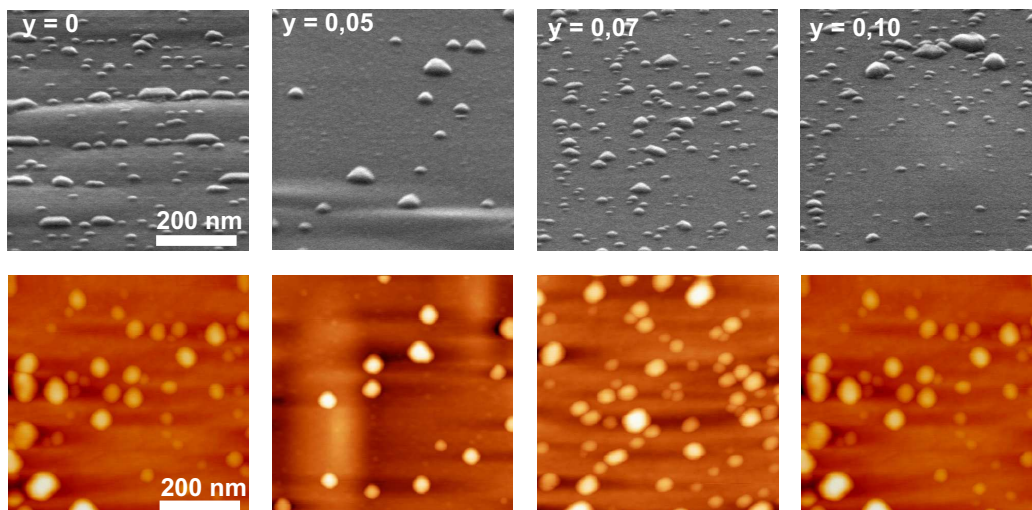


Abbildung 4.13: REM- (oben) und AFM-Aufnahmen (unten) von $\text{Al}_y\text{Ga}_{0,4-y}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -Oberflächen-QPen für unterschiedliche Werte von y .

Die aus den Aufnahmen in Abbildung 4.13 extrahierten mittleren Abmessungen und Oberflächendichten der QPe sind in Abbildung 4.14 gezeigt. Lässt man die Probe mit $y = 0,05$ (in Abbildung 4.14 mit offenen Symbolen gekennzeichnet) außen vor, so ist dort zu erkennen, dass eine Tendenz zur Bildung von kleineren QPen bei höherem Al-Anteil besteht. Dabei nehmen die mittleren lateralen Abmessungen zwischen 0% und 10% Aluminiumgehalt von 25 nm auf 21 nm ab, die mittleren Höhen verringern sich von 4,5 nm auf 3 nm. Die Oberflächendichte der QPe schwankt um den Wert $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Dies ist vermutlich mit der Bindungsstärke der beteiligten Atome erklärbar: AlP besitzt

eine größere Bindungsstärke als GaP, welches wiederum eine stärkere Bindung aufweist als InP (vgl. Abschnitt 4.2.2 und [Cah64]). Dies führt zu einer geringeren Migrationslänge der während des Wachstums auf der Oberfläche adsorbierten Al-Adatome und damit zu mehr QP-Kondensationszentren und einer höheren Oberflächendichte kleinerer QPe. Ein solcher Effekt wurde früher schon im AlGaInAs/AlGaAs-Materialsystem beobachtet [Bak97, Sch09], wobei dieser bei den in Abbildung 4.13 gezeigten Proben deutlich geringer ausgeprägt ist. Dies hängt vermutlich auch mit dem relativ geringen Bereich zusammen, in dem die Zusammensetzung der QPe variiert wurde ($x_{Al} = 0-10\%$).

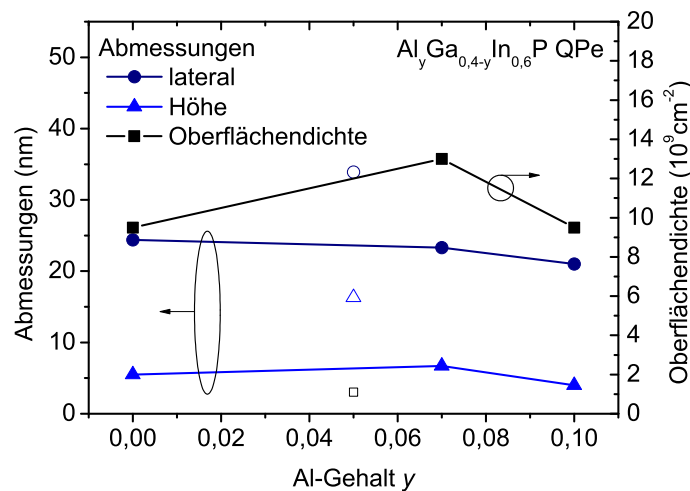


Abbildung 4.14: Oberflächendichte und Abmessungen der $\text{Al}_y\text{Ga}_{0,4-y}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -Oberflächen-QPe. Die Werte für $y = 0,05$ sind mit offenen Symbolen gezeichnet.

Die Größenverteilung der QPe ist sowohl für die Höhe als auch für die lateralen Abmessungen in den Histogrammen in Abbildung 4.15 dargestellt. Betrachtet man die Höhenverteilung, kann man eine leichte Tendenz zur Bildung einer bimodalen Verteilung der Proben mit $x = 0, 0,07$ und $0,10$ erkennen. Die Anzahl der größeren QPe mit einer Höhe über 10 nm ist aber sehr gering, so dass diese bei der Anpassung der Gauß-Kurven außer Acht gelassen wurden. Vor allem in der Höhenverteilung erkennt man die nicht systematische Morphologie der Probe mit $x = 0,05$.

Wie sich im nächsten Abschnitt jedoch zeigen wird, sind die optischen Eigenschaften dieser Probe durchaus mit den anderen Proben vergleichbar, was ein Hinweis darauf ist, dass die morphologische Schwankung nur für die Oberflächen-QPe so stark ausgeprägt ist, die überwachsenen QPe jedoch sehr viel einheitlicher sind. Der Grund dafür könnte, wie oben bereits diskutiert, eine Schwankung der Substrattemperatur bei der Abscheidung der Oberflächen-QPe der Probe mit 5% Al sein. Die Substrattemperatur wurde bei der Abscheidung dieser QPe vermutlich unterschätzt, was sich bei Oberflächen-QPen besonders stark auswirkt. Denn bei der Abscheidung auf der Oberfläche ergibt

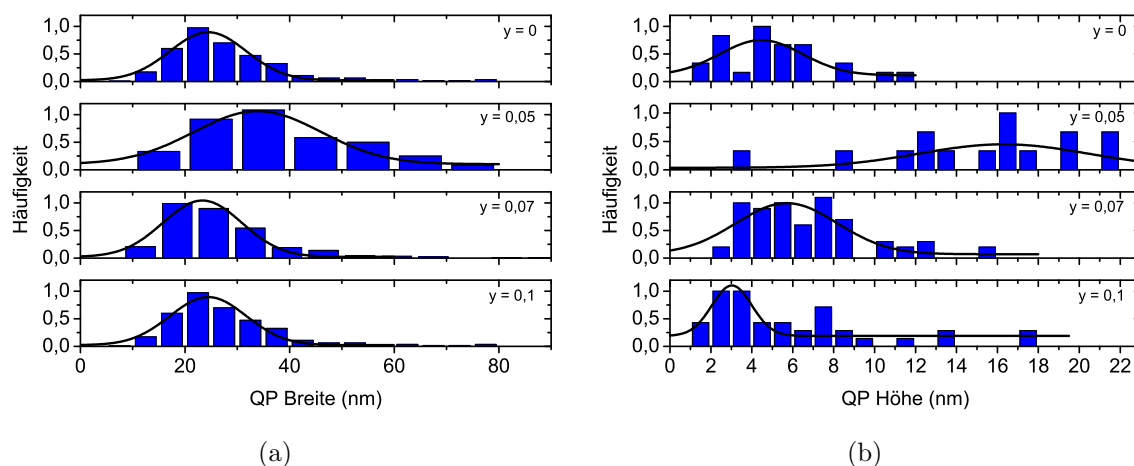


Abbildung 4.15: Statistische Verteilung der Abmessungen von $\text{Al}_y\text{Ga}_{0,4-y}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen für verschiedene y -Werte mit angepassten Gaußkurven. (a) zeigt die Verteilung der Breite, (b) die der Höhe.

sich neben der absichtlich eingefügten Wachstumspause von 60 s noch während des unvermeidlichen Abkühlens des Substrates nach dem Ende des Wachstums Zeit für Umordnungsprozesse wie der Ostwald-Reifung. Dadurch wirken sich Schwankungen in der Substrattemperatur wesentlich stärker aus.

Insgesamt lässt sich festhalten, dass die Abmessungen der $\text{Al}_y\text{Ga}_{0,4-y}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPe mit einer Höhe um 4 nm und Breiten um 20 nm im Bereich liegen, in denen nach den Betrachtungen aus Kapitel 4.2.3 optisch aktive QPe zu erwarten sind.

4.3.3 Photolumineszenz

In Abbildung 4.16 sind PL-Spektren der $\text{Al}_y\text{Ga}_{0,4-y}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QP-Proben für Al-Konzentrationen zwischen 0% und 10% dargestellt. Abbildung 4.16a zeigt hierbei die Emission der Proben bei 9 K. Hier erkennt man deutlich das Signal der QPe, das in Abhängigkeit der Al-Konzentration wie erwartet mit steigendem Al-Gehalt in Richtung kürzerer Wellenlänge verschoben wird. Während das Maximum der Emission von aluminiumfreien $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen um 612 nm liegt, was einer rot-orangen Farbe entspricht, befindet sich das Maximum bei einer Konzentration von 5% bereits unter 600 nm, was als gelbe Emission wahrgenommen wird. Die Probe mit dem höchsten Al-Gehalt von 10% emittiert bei 9 K bereits im optisch grün erscheinenden Bereich, das Maximum liegt bei 575 nm.

Ab etwa 7% überlappt das QP-Signal teilweise mit dem DA-Signal des GaP-Substrats, welches in Abbildung 4.16a durch gestrichelte Linien bei 2,22 eV und 2,17 eV markiert ist (vgl. Kapitel 4.1). Wie man anhand dieser Spektren erkennt, beeinflussen sich die DA-Emissionen und die Emission der QPe gegenseitig, was man vor allem bei der Probe mit 10% Al-Konzentration sieht: Das Maximum der DA-Emission verschiebt sich zu längeren Wellenlängen und das QP-Signal wird verbreitert.

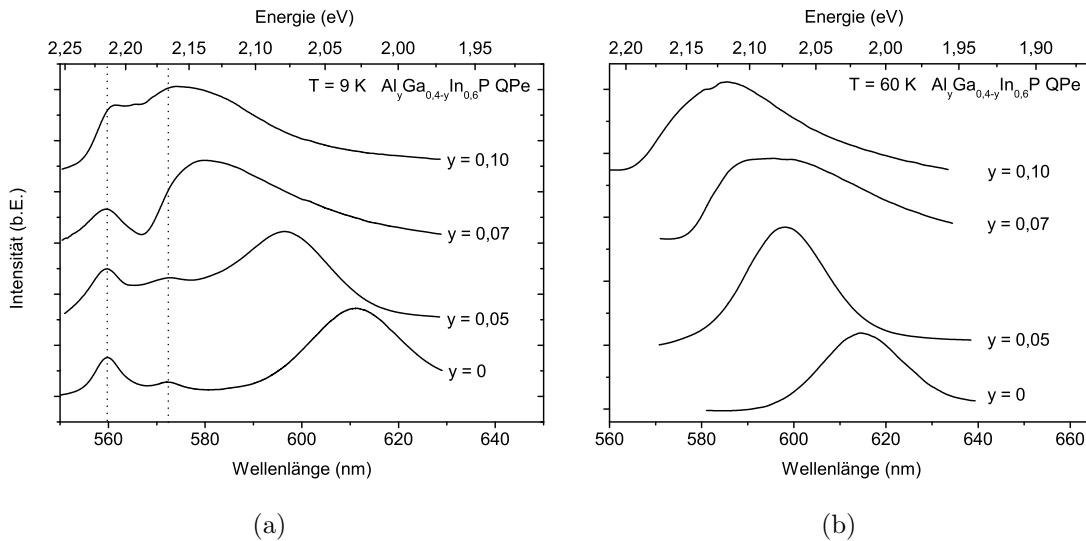


Abbildung 4.16: PL-Spektren von $\text{Al}_y\text{Ga}_{0,4-y}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen in GaP für verschiedene Werte von y bei 9 K und bei 60 K. Links ist das DA-Signal bei 2,22 eV und 2,17 eV markiert (vgl. Kapitel 4.1).

Um das Signal der QPe besser von dem der DA-Übergänge trennen zu können, sind in Abbildung 4.16b die bei 60 K aufgenommenen Spektren der selben Probenreihe dargestellt, da hier die Intensität der DA-Übergänge kaum noch detektierbar ist und man so davon ausgehen kann, dass das gemessene Signal von den QPen herrührt. Man erkennt eine Rotverschiebung der Emission aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Bandlücke um etwa 30 meV. Zusätzlich ist zu sehen, dass die Proben mit dem höheren Al-Gehalt ($y = 0,07$ und $y = 0,10$) eine schwächere Intensität zeigen und breiter werden. Dies ist durch den geringeren elektronischen Einschluss der Ladungsträger bei größerer Bandlücke der QPe zu erklären. Eine genauere Diskussion des Einflusses der Temperatur auf die Emission erfolgt in Kapitel 4.4.

Abbildung 4.17 zeigt die integrierte Intensität der PL-Spektren aus Abbildung 4.17a sowie den Verlauf des Intensitätsmaximums in Abhängigkeit der Zusammensetzung der QPe für 9 K und 60 K. Man erkennt, dass die integrierte Intensität mit steigendem Al-Gehalt abnimmt. Dies ist vermutlich mit dem geringeren elektronischen Einschluss der Ladungsträger bei einer größeren Bandlücke der QPe zu erklären. Um das Integral der Intensität zu bestimmen, wurde dabei wie folgt vorgegangen: Bei der Probe mit 0% Al in den QPen, in der das QP-Signal sowie der DA-Übergang genügend weit separiert sind, wurde zunächst das Signal des DA-Übergangs numerisch integriert und so der Integralwert des DA-Signals bestimmt. Anschließend wurde bei allen Proben der gesamte relevante Spektralbereich numerisch integriert und der Wert des DA-Integrals abgezogen. So erhält man in guter Näherung den Anteil der QP-Emission an der Gesamtintensität.

In Abbildung 4.17 sind auch die Emissionsmaxima der PL-Spektren in Abhängigkeit

von y aufgetragen. Man erkennt einen näherungsweise linearen Verlauf der Emission, die sich für 1% Al um etwa 2,3 nm zu kürzeren Wellenlängen (0,013 eV zu höheren Energien) verschiebt. Ab 7% Al-Konzentration ist eine leichte Abweichung vom linearen Verlauf hin zu kürzeren Wellenlängen für die Messung bei 9 K und zu längeren Wellenlängen für die Messung bei 60 K feststellbar. Dies liegt vermutlich am Beitrag der DA-Emission bei 9 K und dem breiteren Emissionsspektren dieser Proben bei 60 K, was zu Unsicherheiten in der Bestimmung der Maxima führt.

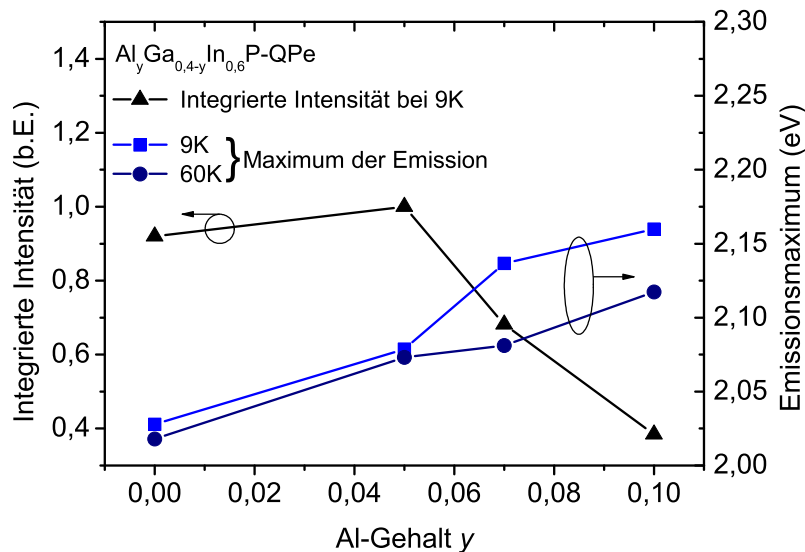


Abbildung 4.17: Emissionsmaximum bei 9 K und 60 K sowie integrierte Emissionsintensität der PL-Spektren aus Abbildung 4.16a.

4.4 Temperaturabhängigkeit der Lumineszenz

Während in den vorherigen Abschnitten die Lumineszenzeigenschaften von AlGaInP-QPen in GaP vor allem bei Temperaturen um 10 K untersucht wurden, soll in diesem Abschnitt auf die Temperaturabhängigkeit der Lumineszenz dieser QP-Strukturen eingegangen werden. Das Verständnis der Ladungsträgerdynamik bei steigenden Temperaturen ist sehr wichtig für die Optimierung der Lumineszenzeigenschaften bei höheren Temperaturen und damit für die Möglichkeit, die entwickelten QPe in eine Anwendung zu überführen.

Abbildung 4.18 zeigt als Beispiel die temperaturabhängige PL-Messung von $\text{Ga}_{0.4}\text{In}_{0.6}\text{P}$ -QPen eingebettet in GaP. Man erkennt, dass die Lumineszenz ab etwa 60 K stark einbricht, bei 120 K ist sie nicht mehr detektierbar.

Durch die Auswertung solcher temperaturabhängiger Messungen lässt sich die Aktivierungsenergie der Ladungsträger in den QPen, also der energetische Abstand des quan-

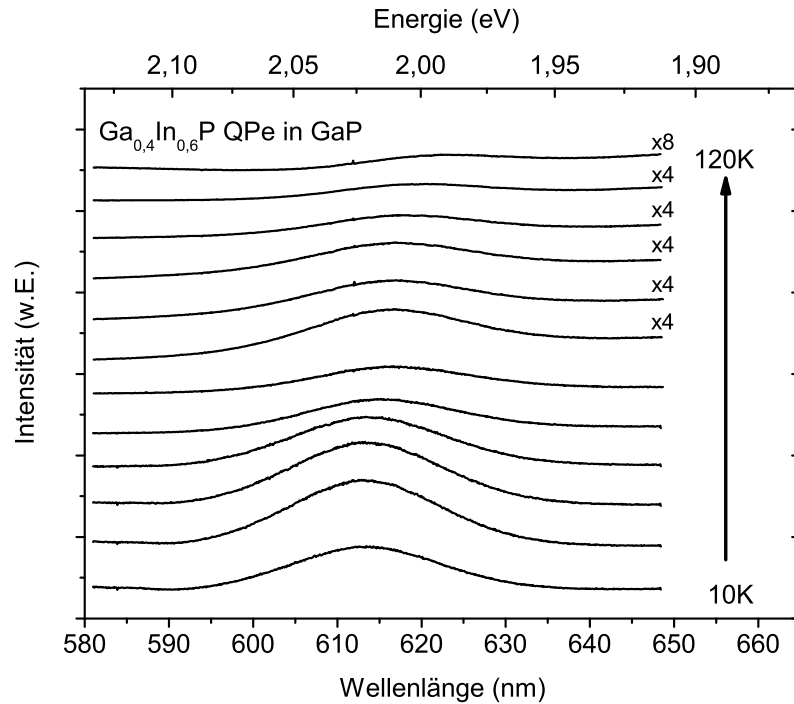


Abbildung 4.18: PL-Spektrum von $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPe in GaP für verschiedene Temperaturen. Die Spektren ab 70 K wurden zur besseren Sichtbarkeit mit dem angegebenen Faktor skaliert.

tenmechanischen Energieniveaus zur oberen Grenze der Barriere, welche den Quantentopf einschließt, bestimmen. Die Aktivierungsenergie ist ein wichtiges Maß für die Veränderung der Lumineszenzintensität bei steigender Temperatur und liefert zudem Informationen über die Bandstruktur der QPe in der entsprechenden Barriere, welche im nächsten Abschnitt behandelt wird.

Abbildung 4.19 zeigt die integrierte PL-Intensität des QP-Signals der jeweiligen Probe aufgetragen über die inverse Temperatur. Da bei den Proben ab 7% Al-Gehalt das QP-Signal teilweise von den DA-Übergängen überlagert wird, welche bis ca. 50 K deutlich hervortreten (vgl. Abbildung 4.16), wurde das Signal der DA-Übergänge an der Probe mit $y = 0$ gesondert integriert und vom Gesamtsignal abgezogen. Die durchgezogenen Linien zeigen angepasste Kurven nach Gleichung (2.29), aus denen sich die Aktivierungsenergie E_A bestimmen lässt. Die Ergebnisse sind ebenfalls in Abbildung 4.19 gezeigt. Der Verlauf der Intensität lässt sich dabei in zwei Bereiche aufteilen: Im Bereich von 10 K bis etwa 40 K (T^{-1} von 0,1 bis 0,025) nimmt die Emissionsintensität leicht zu, bevor sie ab 40 K sehr schnell einbricht. Den leichten Anstieg bei tiefen Temperaturen kann man vor allem bei den Proben mit $y = 0,05$ und $y = 0,07$ beobachten. Dies lässt sich durch eine erhöhte Beweglichkeit der Ladungsträger erklären, welche so leichter aus der Barriere bzw. der Benetzungsschicht in die QPe relaxieren können [Hat03]. Die strahlenden Übergänge, welche im Spektrum als QP-Übergang indentifi-

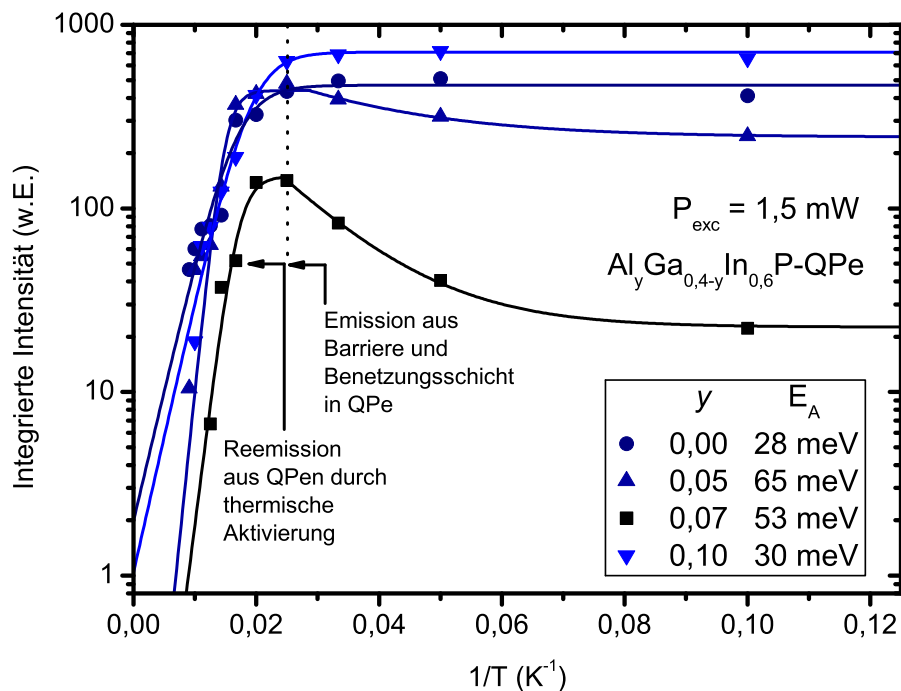


Abbildung 4.19: Integrierte Intensität des QP-Signals der PL-Spektren aufgetragen über die inverse Temperatur mit Kurvenanpassungen.

ziert wurden, werden so stärker bevölkert und können somit auch stärker emittieren. Im zweiten Bereich von 40 K bis 100 K (T^{-1} von 0,025 bis 0,01) führt die steigende Temperatur zu einer thermischen Aktivierung der Ladungsträger aus den QPen heraus in die Barriere. Diese stehen nun nicht mehr für strahlende Übergänge zur Verfügung und die Intensität nimmt ab. Hierbei ist zu beachten, dass mit Gleichung (2.29) nur die thermische Aktivierung der Ladungsträger aus den QPen heraus beschrieben werden kann (linker Bereich in Abbildung 4.19). Bei den Proben, bei denen die Intensität mit steigender Temperatur bei sehr niedrigen Temperaturen stark zunimmt (rechter Bereich in Abbildung 4.19), wurde zusätzlich ein exponentieller Anstieg der Form $\propto e^{ax}$ an den entsprechenden Teil der Daten angepasst.

Die bestimmten Aktivierungsenergien liegen im Bereich zwischen 30 und 60 meV, was verglichen mit Werten von InP-QPEn aus der Literatur sehr gering ist. Hatami *et al.* ermittelten für InP-QPe in GaP einen Wert von 398 meV [Hat03]. Beirne *et al.* konnten für mittels MOCVD hergestellte $\text{Ga}_{0,5}\text{In}_{0,5}\text{P-QPe}$ unterschiedliche Werte für verschiedene Temperaturregionen ermitteln, welche die Autoren auf verschiedene Bereiche in der Umgebung der QPe mit unterschiedlichen In-Konzentrationen zurückführten. Diese lagen zwischen 7 und 280 meV [Bei03]. Dazu ist zu bemerken, dass das hier verwendete Modell nicht beide Ladungsträgerarten berücksichtigt, sondern von einem einfachen Zwei-Niveau-System ausgeht. Ob die geringe Aktivierungsenergie also vom geringen Einschluss von Elektronen oder Löchern herrührt, kann damit nicht ohne Weiteres geklärt werden. Einen genaueren Hinweis auf den Bandverlauf in den Proben und auch

eine mögliche Erklärung für die geringen beobachteten Aktivierungsenergien liefern die Bandstrukturberechnungen, welche in Abschnitt 4.5 diskutiert werden.

4.5 Berechnung der Bandstruktur

4.5.1 Bandverlauf in (Al,Ga)InP-Quantenpunkten in GaP

GaP und AlP sind indirekte Halbleiter, bei denen der X-Punkt des Leitungsbandes unter dem Γ -Punkt liegt. Auch Mischungen dieser Materialien nach der Formel $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$ besitzen eine indirekte Bandlücke [Vur01]. In dieses Material wurden in dieser Arbeit selbstorganisierte QPe eingebettet, die aus ternärem $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ und quaternärem $\text{Al}_y\text{Ga}_x\text{In}_{1-x-y}\text{P}$ bestehen. Die Zusammensetzung dieser QPe wurde zwar stets so gewählt, dass ihre Bandlücke direkt sein sollte, allerdings ergibt sich durch das Einbetten der QPe in eine indirekte Matrix ein nicht trivialer Bandverlauf, der zudem noch ganz entscheidend von der Verspannung der nach dem Stranski-Krastanov-Wachstumsmodus hergestellten QPe beeinflusst wird. Dieser Bandverlauf kann zu verschiedenen Effekten führen, welche das Emissionsverhalten der QPe entscheidend beeinflussen. Das Verständnis dieser Effekte ist für grundlegende Einblicke in das Verhalten derartiger Quantenstrukturen höchst interessant, aber auch für eine spätere Anwendung dieser QPe in der Optoelektronik von entscheidender Bedeutung.

So wurde schon in mehreren früheren Publikationen diskutiert, dass die gegenüber dem InGaAs/GaAs-Materialsystem herabgesetzte Lumineszenzausbeute insbesondere bei direkten InP-QPen in GaP ihren Ursprung in Streuprozessen haben könnte. Diese könnten dazu führen, dass Elektronen aus den QPen in den X-Punkt des Leitungsbandes der umgebenden GaP-Matrix gestreut werden und dort nichtstrahlend relaxieren [Hat01, Ing03]. Bereits ein Bändermodell, welches die Verspannung nicht mit berücksichtigt, legt eine solche Vermutung aufgrund der energetischen Nähe des Leitungsbandes der direkten QPe zum X-Punkt des Leitungsbandes der indirekten GaP-Matrix nahe [Hat01]. Numerische Berechnungen, welche die kohärente Verspannung im System InP-QP in GaP-Matrix berücksichtigen, führen zu dem Schluss, dass sich im Leitungsband ein dreieckiger Quantentopf am X-Punkt der GaP-Barriere ausbildet, der energetisch tiefer liegt als der quantenmechanische Zustand der Elektronen am Γ -Punkt in den QPen [Wil98]. Dies würde zu einem Übergang führen, der sowohl im Realraum als auch im reziproken Raum indirekt wäre.

Um einen genaueren Einblick in den Bandverlauf der in dieser Arbeit behandelten $\text{Al}_y\text{Ga}_x\text{In}_{1-x-y}\text{P}$ -QPe in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$ zu bekommen, wurden numerische Berechnungen durchgeführt, die Effekte wie Verspannung, piezoelektrische Felder und Quantisierung berücksichtigen.

Zur Einführung der verwendeten Bezeichnungen und Auftragungsweisen zeigt Abbil-

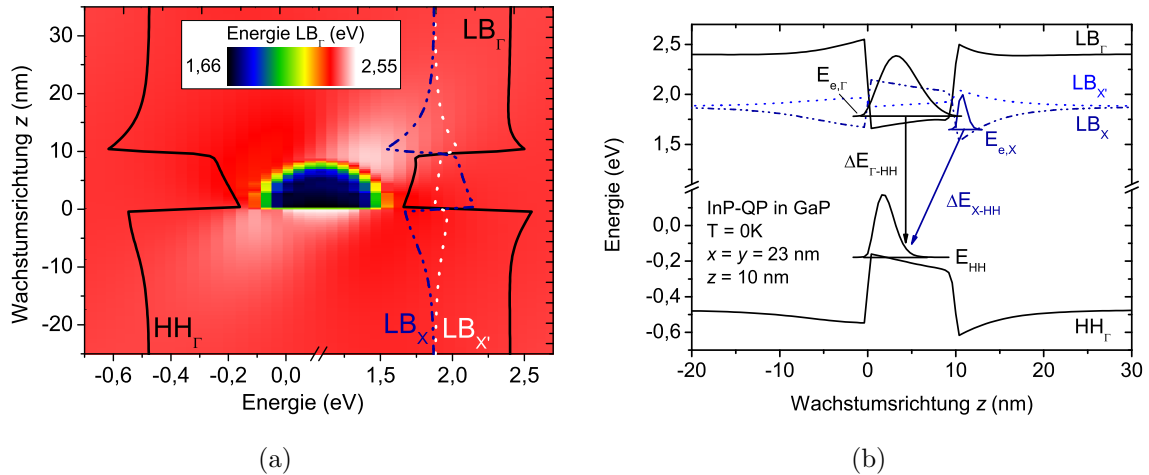


Abbildung 4.20: 3D-Simulationsergebnis eines InP-QPs in GaP. Dargestellt ist jeweils der Energieverlauf in z -Richtung. Teilbild (a) zeigt zusätzlich zum Bandverlauf einen 2D-Plot des simulierten QPs, bei dem der Verlauf des Γ -Punktes des Leitungsbandes farbkodiert dargestellt ist, um die Lage des QPs zu kennzeichnen. Teilbild (b) zeigt zusätzlich zum Bandverlauf noch die berechneten Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichten der Elektronen am Γ - und X-Punkt des Leitungsbandes ($E_{e,\Gamma}$, $E_{e,X}$) und der schweren Löcher im Valenzband (E_{HH}).

Abbildung 4.20 das einfachste Beispiel eines InP-QPs in GaP-Barrieren. Die Temperatur des Kristallgitters wurde in der Simulation auf 0 K gesetzt, als Abmessungen des QPs wurden die Daten der Probe mit InP-QPen auf GaP aus Abschnitt 4.2.2 angenommen. Dabei zeigt Teilbild 4.20a die Position im Realraum über der energetischen Lage der Bänder, wobei zusätzlich der berechnete QP eingezeichnet ist, um dessen örtliche Lage zu kennzeichnen. Farbkodiert ist dabei die Energieposition des Γ -Punktes für Elektronen im Leitungsband (LB_{Γ}). Nach oben ist der Ort (in Wachstumsrichtung z) aufgetragen, nach rechts die energetische Position der jeweiligen Bänder. Teilbild (b) zeigt die gleiche Struktur, aber um 90° gedreht und gespiegelt, so dass die übliche Auftragung Energiewert über Position im Realraum Anwendung findet. Mit Linien eingezeichnet ist der Bandverlauf des Valenzbandes für schwere Löcher am Γ -Punkt der Brillouinzone, bezeichnet mit HH_{Γ} , sowie zwei wichtige Punkte der Brillouinzone für Elektronen im Leitungsband, der Γ -Punkt (LB_{Γ}) und der X-Punkt (LB_X).

Dabei ist zu beachten, dass aufgrund der Verspannung im System die Entartung der X-Punkte im Bereich des QPs aufgehoben wird und eine Aufspaltung für unterschiedliche Ränder der Brillouinzone stattfindet (siehe Abschnitt 2.1.3). Der X-Punkt befindet sich jeweils entlang der $\langle 001 \rangle$ -Richtungen der Brillouinzone und es existieren somit sechs äquivalente X-Punkte. Die Minima des Leitungsbandes an den X-Punkten spalten unter Verspannung in zwei entartete entlang der $[001]$ - und $[00\bar{1}]$ -Richtung (X')

und vier entartete jeweils entlang der $[100]$ -, $[\bar{1}00]$ - und $[010]$ -, $[0\bar{1}0]$ -Richtungen (X) auf [Wal89]. Weit weg von der Verspannungszone, die durch den QP verursacht wird, laufen die Energien für alle X-Richtungen wieder zusammen und sind wieder entartet. Ob durch die Verspannung die energetische Lage erhöht oder erniedrigt wird, liegt, wie in Abschnitt 2.1.3 erklärt, am Vorzeichen des entsprechenden Deformationspotentials. Im hier gezeigten Fall, wird die Lage vom LB_X erniedrigt, die von $LB_{X'}$ erhöht. Für Ladungsträger am Γ -Punkt findet eine solche Aufspaltung nicht statt, denn diese befinden sich genau im Zentrum der Brillouinzone.

Den Einfluss der Verspannung kann man nicht nur an der Aufspaltung am X-Punkt erkennen, sondern auch an der Verbiegung der Bänder in der Nähe des QPs. Der QP wurde in Form eines Halbellipsoids („linsenförmig“) angenommen, denn dies stimmt am besten mit den Ergebnissen der AFM- und REM-Aufnahmen überein. Die Asymmetrie der Linsenform führt dazu, dass an der „spitzen“ Seite des QPs ($z = 10$ nm) die Verspannung größer ist als an der Basis, was zu einer stärkeren Verbiegung der Bänder führt. Auch zu erkennen ist, dass auch ohne Verspannung der X-Punkt der indirekten GaP-Barriere sehr nahe am Γ -Punkt des verspannten QPs liegt. Durch die Kombination der GaP-Barriere mit dem InP-QP und der Verspannung liegt in diesem Beispiel der X-Punkt der Barriere sogar tiefer als der Γ -Punkt des QPs und es bildet sich ein dreieckiger Quantentopf an der Grenzfläche aus [Wil98].

In Abbildung 4.20b sind auch die berechneten Grundzustandsenergieniveaus und die Wahrscheinlichkeitsdichte ($|\Psi|^2$) der Elektronen an den relevanten Punkten im Leitungsband (Γ und X) und der Löcher im Valenzband (Schwerlochband am Γ -Punkt) eingezeichnet. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Ladungsträger im QP ist etwas zur Basis des QPs hin verschoben, was an der Asymmetrie des linsenförmigen QPs liegt. Im dreieckigen Quantentopf, der vom Leitungsband am X-Punkt direkt neben dem QP gebildet wird, lässt sich bei dieser Berechnungsart ein gebundener Zustand finden, der energetisch etwas niedriger als der Elektronenzustand im QP liegt. Allerdings befindet er sich in diesem Fall örtlich relativ weit vom Lochzustand entfernt und hat somit einen nur sehr geringen örtlichen Überlapp mit der Lochwellenfunktion, worauf später noch genauer eingegangen wird. Auch an der Basis des QPs, also in Abbildung 4.20b links vom QP ($z = 0$), bildet sich ein dreieckiger Quantentopf aus. Auch in diesem lässt sich ein gebundener Zustand finden, dieser liegt jedoch aufgrund der Asymmetrie energetisch ein wenig höher. Da hier für alle Quantentöpfe nur die Grundzustandsenergien gezeigt sind, wurde dieser Zustand nicht eingetragen. Die möglichen Übergänge zwischen den jeweiligen Grundzuständen an verschiedenen Orten der Brillouinzone (d.h. Γ und X) im Leitungs- und Valenzband sind ebenfalls eingezeichnet und mit $\Delta E_{\Gamma-HH}$ und ΔE_{X-HH} bezeichnet.

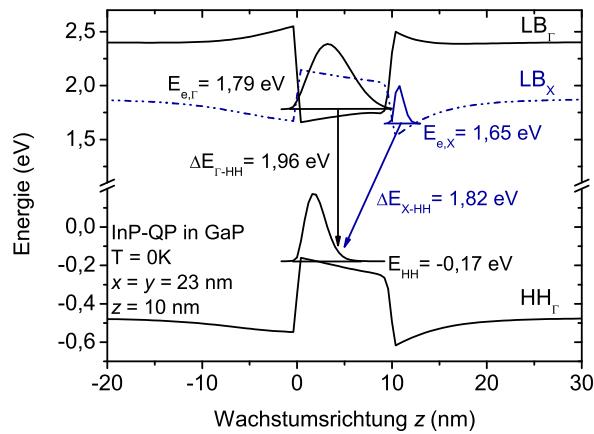
Einfluss der Zusammensetzung der QPe

Die oben beschriebenen Computersimulationen eignen sich nicht nur für die Berechnung von Bandstrukturen von einfachen InP/GaP-QPen, sondern es kann auch der Einfluss von ternären und quaternären (Al,Ga)InP-QPen untersucht werden.

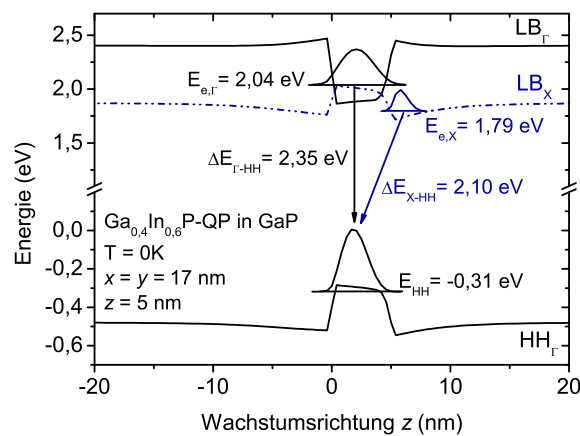
Abbildung 4.21 zeigt am Beispiel von in GaP eingebetteten InP-, $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ - und $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen die Änderungen in der energetischen Lage der Bänder beim Übergang von InP- zu GaInP- und AlGaInP-QPen. Die Auftragung und Notation entspricht dabei der oben eingeführten.

Zunächst ist zu sehen, dass bei allen drei Strukturen sowohl ein gebundener Elektronenzustand am Γ -Punkt ($E_{e,\Gamma}$) in den direkten QPen gefunden werden kann, als auch ein Zustand in der lokalen Potentialmulde, welche am X-Punkt des indirekten Barrierenmaterials GaP durch die Verspannung verursacht wird ($E_{e,X}$). Aufgrund der kleineren Abmessungen der QPe in Teilbild 4.21b und (c) im Gegensatz zu (a) findet man eine größere Quantisierungsenergie der Ladungsträger im Valenz- und Leitungsband der QPe, was zusammen mit der größeren Bandlücke von $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ insgesamt zu einer deutlich vergrößerten Übergangsenergie $\Delta E_{\Gamma-HH}$ führt. Interessanterweise hat die Größen- und Materialänderung aber auch einen Einfluss auf $E_{e,X}$: Aufgrund der geringeren Gitterfehlpassung und QP-Größe von $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ auf GaP gegenüber InP auf GaP ist die Verspannung im System geringer, was zu einem deutlich flacheren Verlauf von LB_X im Bereich der QPe führt. Dadurch ist der Zustand $E_{e,X}$ schwächer gebunden, aber bei einer signifikant höheren Energie. Dies ändert sich beim Übergang zu $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ (Teilbild c) nicht mehr wesentlich, da Ga-Atome in diesem Mischkristall praktisch ohne Änderung der Verspannung durch Al-Atome ausgetauscht werden können.

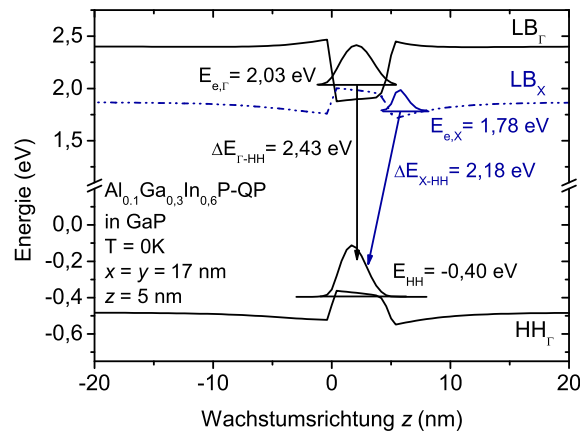
Weiterhin ist zu sehen, dass die Asymmetrie der Elektronen- und Lochzustände im QP ($E_{e,\Gamma}$, E_{HH}) aufgrund der geringeren Verspannung und Abmessungen in (b) und (c) deutlich kleiner ist und diese Zustände nun örtlich näher am Elektronenzustand in der Barriere $E_{e,X}$ liegen. Der energetische Abstand von $E_{e,\Gamma}$ zu $E_{e,X}$ nimmt beim Übergang InP zu $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ zu. In Abbildung 4.21c, wo noch 10% Ga durch Al ausgetauscht sind, ergibt sich erwartungsgemäß eine deutlich größere Übergangsenergie $\Delta E_{\Gamma-HH}$ aufgrund der größeren Bandlücke. Dies resultiert aber praktisch nur aus der veränderten energetischen Lage der Löcher im Valenzband des QPs E_{HH} , während die Energien im Leitungsband fast unverändert zum Teilbild (b) sind. Der Grund ist der VBO von AlP (vgl. Abschnitt 2.1.1), der gegenüber GaP -0,47 eV und gegenüber InP -0,80 eV beträgt [Vur01]. Dadurch liegen die Leitungsbänder fast auf gleicher Höhe, das Valenzband liegt jedoch deutlich tiefer. Sichtbar wird dies auch in der geringeren Quantentopftiefe im Verlauf des Valenzbandes HH_Γ , in dem die Löcher eingeschlossen sind. Zu beachten ist hier allerdings, dass in diesem Beispiel zur besseren Veranschaulichung des Einflusses von Al auf die Bandstruktur die Abmessungen des $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPs



(a)



(b)



(c)

Abbildung 4.21: Berechnete Bandstrukturen für InP-, $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ - und $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPe, jeweils eingebettet in GaP-Barrieren. Die Abmessungen orientieren sich dabei an den mittels AFM und REM ermittelten Werten. Der $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QP wurde in diesem Beispiel allerdings zur besseren Vergleichbarkeit genauso groß wie der $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QP angenommen.

identisch mit denen des $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPs angenommen wurden. Beim späteren Vergleich mit experimentellen Daten orientierten sich die Abmessungen jedoch an denen aus den AFM- und REM-Messungen.

Wellenfunktionen und Übergänge

In Abbildung 4.21 ist für die Löcher, die im Valenzband in den QPen gebunden sind, die Wahrscheinlichkeitsdichte $|\Psi(z)|^2$ aufgetragen, mit der man die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Löcher in einem Intervall dz in Wachstumsrichtung durch Integration bestimmen kann. Ψ ist dabei die quantenmechanische Wellenfunktion eines Teilchens in einem Quantentopf, hier eines Loches im QP. Analog sind die Wahrscheinlichkeitsdichten von Elektronen im Leitungsband im QP (am Γ -Punkt der Brillouinzone) und neben dem QP in der Barriere (am X-Punkt des indirekten Materials GaP) gezeigt. In Abbildung 4.21 sind auch optische Dipolübergänge vom Leitungs- ins Valenzband eingetragen und zwar sowohl von $E_{e,\Gamma}$ im QP zu E_{HH} im QP, als auch von $E_{e,X}$ in der Barriere zu E_{HH} im QP. Die Übergangsenergie ist dabei durch den Energieunterschied der Zustände im Leitungs- und Valenzband gegeben und mit $\Delta E_{\Gamma-HH}$ und ΔE_{X-HH} bezeichnet. Da der Elektronenzustand am X-Punkt der Barriere vor allem bei kleinen QPen mit großer Bandlücke (Abbildung 4.21b und c) um einige 100 meV energetisch tiefer liegt als der Elektronenzustand am Γ -Punkt in den QPen ist die Übergangsenergie ΔE_{X-HH} stets geringer als $\Delta E_{\Gamma-HH}$. Zudem ist zu erwarten, dass sich Elektronen gerade bei tiefen Temperaturen am energetisch niedrigeren X-Punkt der Barriere anordnen und von dort mit Löchern in den QPen (Γ -Punkt des Valenzbandes) rekombinieren können. Es bildet sich ein sog. Typ-II-Bandverlauf aus, wie er z.B. schon in GaSb-QPen in GaAs beobachtet wurde [Hat95, Suz99, Sun96]. Ein solcher Übergang ist jedoch im Allgemeinen unwahrscheinlicher, da er im Ortsraum „schräg“ statt finden muss. „Schräg“ ist dabei im Ortsraum in Abbildung 4.21 leicht zu erkennen, da Elektronen und Löcher sich in diesem Fall nicht am gleichen Ort befinden. Quantenmechanisch hängt dies mit dem Überlappintegral

$$|\langle \text{Elektron} | \text{Loch} \rangle|^2 = \int \Psi_{\text{Elektron}}^* \Psi_{\text{Loch}} dz$$

zusammen, welches in diesem Fall verglichen mit einem örtlich direkten Übergang klein ist. Zusätzlich dazu befinden sich in dem hier gezeigten Fall von QPen in GaP die Elektronen neben den QPen am X-Punkt der Brillouinzone, was gleichbedeutend mit einem unterschiedlichen Impuls ist. Dieser Übergang muss also zusätzlich „schräg“ im Impulsraum statt finden, was hier durch die unterschiedliche Position der Ladungsträger in der Brillouinzone (nämlich Γ - und X-Punkt) ausgedrückt werden kann. Für einen optischen Übergang ist damit z.B. noch der Impuls eines beteiligten Phonons nötig, was zu einem unwahrscheinlicheren Dreiteilchen-Prozess führt. Dies wird am Ende von Abschnitt 4.5.2 genauer diskutiert werden.

Im Folgenden werden nun zunächst die berechneten Übergangsenergien beider Übergänge (direkt und indirekt) mit den aus den PL-Messungen ermittelten experimentellen Werten verglichen. Zudem wird das Überlappintegral berechnet und ausgewertet. Anschließend werden die Ergebnisse mit Blick auf den unterschiedlichen Impuls der Ladungsträger diskutiert und zur Untermauerung der Ergebnisse der Einfluss von AlGaP-Barrieren untersucht.

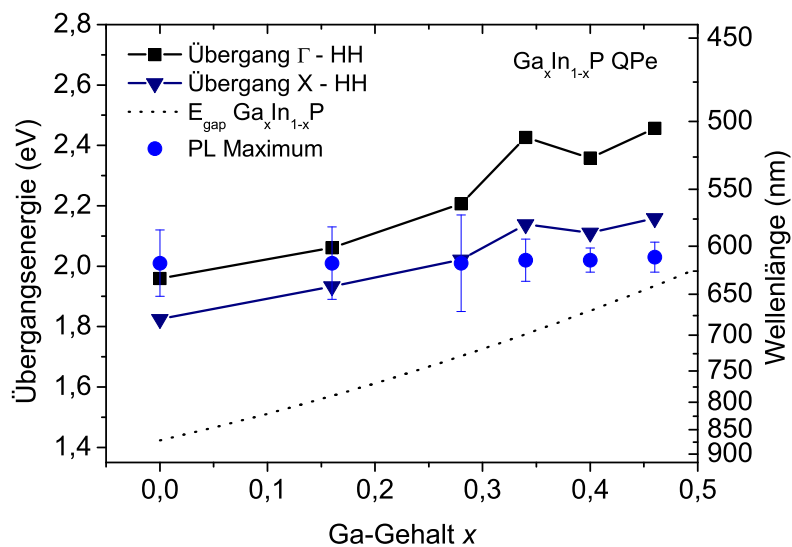
4.5.2 Vergleich mit experimentellen Daten

GaInP-Quantenpunkte

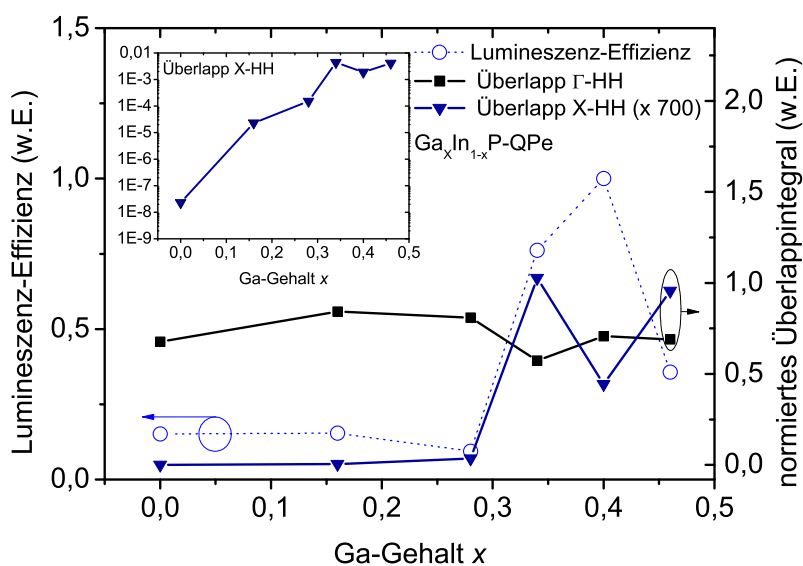
Um die Lumineszenzeigenschaften von GaInP-QPen in GaP zu erklären, wurden 3D-Berechnungen dieser QPe durchgeführt. Die Abmessungen der QPe wurden dabei aus den AFM- und REM-Messungen entnommen, welche in Tabelle 4.1 auf Seite 75 zusammengefasst sind. Dabei wurden bei bimodalen Verteilungen jeweils die Abmessungen der kleineren QPe benutzt, da diese nach der Auswertung in Abschnitt 4.2.3 eine größere Lumineszenzeffizienz besitzen. Die QPe wurden dabei als „linsenförmig“, also als Halbellipse mit einer kreisförmigen Basis mit dem Durchmesser der lateralen Abmessungen der QPe aus Tabelle 4.1 und der entsprechenden Höhe angenommen.

An dieser Stelle sei nochmals darauf hingewiesen, dass die Abmessungen der QPe, die hier für die Simulationen benutzt werden, aus Betrachtungen der Oberflächen-QPe resultieren. Die Lumineszenz geht jedoch von den überwachsenen QPen in der Probe aus. Hierbei ist zu beachten, dass es beim Überwachsen der QPe zu signifikanten Änderungen in der Morphologie kommen kann. So können sich durch die geänderte Verspannung in der Umgebung der QPe die Abmessungen und die Form ändern [Joy01, Cos06, Gon04]. Auch die Zusammensetzung der QPe und der Barriere kann durch Umlagerungsprozesse beeinflusst werden [Gar97]. Die Größe dieser Änderungen hängt stark von den anfänglichen Abmessungen der unüberwachsenen QPe und dem Materialsystem ab. Auch ist es unter bestimmten Wachstumsbedingungen möglich, dass die Morphologie der QPe beim Überwachsen weitestgehend erhalten bleibt [Geo95]. Jedoch stellt die Bestimmung der Größe der QPe mittels Oberflächen-QPen und der Rückschluss daraus auf Lumineszenzeigenschaften immer eine fehlerbehaftete Abschätzung dar. Da in diesem Kapitel aber vor allem Tendenzen und nicht ausschließlich einzelne Werte betrachtet werden und Abweichungen vom Experiment auch diskutiert werden, kann man davon ausgehen, dass diese Näherung hier gerechtfertigt ist.

Abbildung 4.22a zeigt die berechneten Übergangsenergien des Γ -HH Übergangs und des X-HH Übergangs aufgetragen über die Ga-Konzentration x . Zusätzlich sind die Maxima der PL-Messungen aus Abbildung 4.9 eingetragen, sowie als gestrichelte Linie der Verlauf der Übergangsenergie von GaInP-Volumenmaterial. Die Fehlerbalken bei den experimentellen Daten resultieren dabei aus der Halbwertsbreite des PL-Signals. Proben mit geringem Ga-Gehalt leuchten relativ schwach, was die Bestimmung der



(a)



(b)

Abbildung 4.22: Ergebnis der Berechnungen und Vergleich mit experimentellen Daten.

(a) Berechnete Übergangsenergie für den direkten Γ -HH-Übergang sowie den „schrägen“ X-HH-Übergang im Vergleich mit den Maxima der PL-Messungen aus Abschnitt 4.2.3. Als Fehlerbalken sind die Halbwertsbreiten der PL-Signale eingezeichnet. Die gestrichelte Linie bezeichnet die Bandlücke von $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$ -Volumenmaterial (nach [Vur01]). (b) Berechnete Überlappintegrale für die entsprechenden Übergänge und ein Vergleich mit der Lumineszenzeffizienz aus Abschnitt 4.2.3. Der eingefügte Graph zeigt das Überlappintegral des X-HH-Übergangs in logarithmischer Auftragung.

Übergangsenergie durch Kurvenanpassung schwierig macht und zu einer vergleichsweise großen Halbwertsbreite führt. Bei den stärker leuchtenden Proben ab 34% Ga ist die Halbwertsbreite deutlich kleiner. Interessant ist, dass bei QPen mit geringem Ga-Anteil die gemessene Übergangsenergie sehr nahe an der berechneten des direkten Γ -HH-Übergangs liegt, während sie sich mit steigendem Ga-Gehalt mehr an den berechneten indirekten Übergang X-HH annähert. Wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, liegen die Energien $E_{e,\Gamma}$ und $E_{e,X}$ bei niedrigem Ga-Gehalt energetisch noch nah beieinander, während der Zustand in der Barriere mit zunehmendem Ga-Gehalt energetisch immer tiefer liegt. Dies würde nahelegen, dass man bei niedrigen Ga-Konzentrationen den direkten, bei hohen den indirekten Übergang beobachtet. Allerdings widerspricht diese Beobachtung der gemessenen PL-Intensität, da man für den direkten Übergang eine deutlich höhere Lumineszenzausbeute erwarten würde als für den indirekten.

Zur Abschätzung der relativen Lumineszenzintensitäten ist auch Abbildung 4.22b zu beachten. Hier ist das berechnete Überlappintegral für beide Übergänge in gleicher Einheit aufgetragen und mit der Lumineszenzeffizienz nach Abschnitt 4.2.3 verglichen. Zu beachten ist, dass das Überlappintegral nur eindimensional in der z -Richtung berechnet wurde. In den anderen Raumrichtungen hat man jedoch ähnliche Geometrien. Deshalb sollte sich die ausschließliche Betrachtung der z -Richtung nur durch einen konstanten Faktor von einer dreidimensionalen Betrachtung unterscheiden. Da hier Werte nur relativ miteinander verglichen werden, hat dies einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Ergebnisse. Auch sei darauf hingewiesen, dass sich diese Betrachtungen nur auf die Separation der Ladungsträger im Realraum (Löcher in den QPen und Elektronen in der Barriere neben den QPen) beziehen, was sich auf das Überlappintegral der Realraum-Wellenfunktionen niederschlägt. Dass der Übergang auch an unterschiedlichen Positionen im k -Raum stattfindet, hat ebenfalls einen großen Einfluss auf die Lumineszenz der Proben, worauf am Ende dieses Abschnitts gesondert eingegangen wird. Da aber für alle hier betrachteten Proben die Positionen der Ladungsträger im k -Raum gleich sind (Löcher am Γ -Punkt und Elektronen am Γ -Punkt bzw. X-Punkt), kann das Überlappintegral der Realraum-Wellenfunktionen als ein Maß für die relativen Intensitäten der Proben angesehen werden.

Der Überlapp der Wellenfunktionen liegt wie in Abbildung 4.22b gezeigt, für den direkten Γ -HH-Übergang mehrere Größenordnungen höher als für den indirekten X-HH-Übergang, was aufgrund der örtlichen Separation der Lochwellenfunktion im QP und der Elektronenwellenfunktion in der Barriere beim indirekten Übergang auch zu erwarten ist. Das Überlappintegral des Γ -HH-Übergangs ändert sich dabei nur wenig. Interessant ist jedoch der Verlauf der Überlappintegrale des X-HH-Übergangs, der in Abbildung 4.22b bereits um einen Faktor 700 skaliert dargestellt ist. Von $x = 0$ (InP-QPe) zu $x = 0,34$ nimmt der Überlapp um fünf Größenordnungen zu. Dies ist, wie im vorherigen Abschnitt diskutiert, eine direkte Konsequenz der geringeren Größe der QPe mit mehr Ga. Der Wert bei $x = 0,4$ ist wieder etwas kleiner, was ebenfalls eine

Konsequenz der mittleren Abmessungen dieser QPe ist, die etwas größer als die der benachbarten Proben sind.

Um ein besseres Verständnis zu erhalten, wie sich der Ga-Gehalt und damit vor allem die Abmessungen der QPe auf die Lage der Energieniveaus und das Überlappintegral auswirken, wurden diese Werte für interpolierte QP-Abmessungen berechnet. Dies bedeutet, dass die gemessenen QP-Höhen und -Durchmesser aus Abbildung 4.6b über den gesamten Bereich der Zusammensetzung linear angepasst wurden und die aus der Ausgleichsgerade gewonnenen interpolierten Werte für die Berechnung verwendet wurden. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.23 dargestellt.

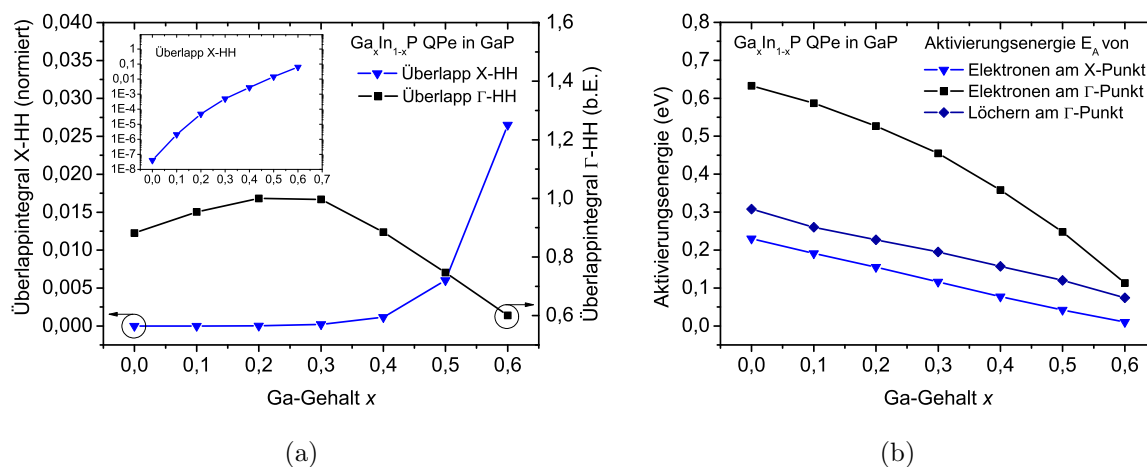


Abbildung 4.23: (a) Überlappintegrale für den Γ -HH (Typ-I) und den X-HH-Übergang (Typ-II) in Abhängigkeit des Ga-Gehalts berechnet mit interpolierten Werten für die Abmessungen der QPe. Der eingefügte Plot stellt dieselben Daten in logarithmischer Auftragung dar. (b) Aktivierungsenergien von Ladungsträgern, die in den QPen oder daneben gebunden sind in Abhängigkeit des Ga-Gehalts.

In Abbildung 4.23a ist der Verlauf der Überlappintegrale des Γ -HH- und des X-HH-Übergangs über den Ga-Gehalt der QPe aufgetragen. Dabei beziehen sich die Werte der y -Achsen auf die gleiche Einheit, sind also untereinander vergleichbar. Der Γ -HH-Übergang (Typ-I) zeigt eine vergleichsweise geringe Abhängigkeit mit einem Maximum bei ca. 20%. Der Überlapp von Elektronen- und Lochwellenfunktionen für den X-HH-Übergang (Typ-II) ändert sich jedoch sehr stark und nimmt von 0% Ga bis 60% Ga um etwa sechs Größenordnungen zu. Wie bereits beschrieben, ist dies eine direkte Konsequenz der kleineren QP-Abmessungen bei höheren Ga-Konzentrationen, was die örtliche Separation der Wellenfunktionen von Löchern in den QPen und Elektronen in der Barriere verringert.

Aufschlussreich ist auch der Verlauf der Lage der Energieniveaus der Ladungsträger

relativ zur jeweiligen Barriere (also der Aktivierungsenergie), der in Abbildung 4.23b gezeigt ist. Wie zu erwarten nimmt der Einschluss von Elektronen und Löchern in den QPen (am Γ -Punkt) mit steigendem Ga-Gehalt und bei kleineren QPen ab. Jedoch zeigt auch der Einschluss von Elektronen neben den QPen in der Barriere eine Abhängigkeit, obwohl die Zusammensetzung der QPe keinen direkten Einfluss darauf hat. Durch das geringere Spannungsfeld von kleineren QPen mit mehr Ga verringert sich jedoch auch die Bandverbiegung der Barriere in der Nähe der QPe und die Tiefe des Potentialtopfs nimmt ab. Bei 60% Ga ist die Aktivierungsenergie bereits fast null.

Die Ergebnisse dieser Berechnungen liefern eine mögliche Erklärung für den Verlauf der Lumineszenzeffizienz, wie sie in Abbildung 4.22(b) nochmals dargestellt ist: Im Experiment beobachtet man eine deutliche Zunahme der PL-Intensität und der Lumineszenzeffizienz bei Ga-Konzentrationen von über 30%, also genau ab da, wo kleine QPe mit entsprechend großem X-HH-Überlappintegral dominieren. Allerdings nimmt diese bei sehr hohen Ga-Anteilen von 46% wieder ab, während sich das Überlappintegral nur vergleichsweise wenig ändert. Auch hier liefert das Modell eine mögliche Erklärung: Wie in Abbildung 4.23b zu sehen wird der dreieckige Quantentopf am X-Punkt der Barriere mit steigendem Ga-Gehalt immer flacher. Dies liegt an der geringen Größe der QPe und der Verringerung der Gitterfehlpassung mit steigender Ga-Konzentration, was zu immer weniger Verspannung führt. Dies könnte als ein gegenläufiger Effekt betrachtet werden, der die Effizienz des Ladungsträgereinfangs herabsetzt und für die Abnahme der Lumineszenzeffizienz bei sehr hohen Ga-Konzentrationen verantwortlich ist. Die Probe mit $x = 0,4$ könnte hier ein Optimum zwischen Überlapp der Wellenfunktionen und Tiefe des Quantentopfes am X-Punkt der Barriere darstellen, was ein Grund dafür sein kann, warum diese die höchste Lumineszenzeffizienz zeigt.

Das hier vorgestellte Modell ist dabei immer vor dem Hintergrund zu sehen, dass auch andere Effekte einen Einfluss auf die Lumineszenz von (Ga)InP-QPen in GaP haben. So haben Hatami *et al.* gezeigt, dass große Quantenpunkte eine Neigung zur Defektbildung haben und dadurch nur sehr ineffizient leuchten [Hat03]. Diese Tatsache darf nicht außer Acht gelassen werden, wenn man die hier vorgestellten Ergebnisse interpretiert, denn auch dies kann eine Rolle bei der herabgesetzten Lumineszenz der Proben mit großen QPen und Ga-Konzentrationen unter 30% haben. So ist es denkbar, dass die InP-QPe unabhängig vom Bandverlauf in der Struktur eine schlechte Lumineszenzausbeute zeigen, weil sie aufgrund der starken Gitterfehlpassung und ihrer Größe sehr viele Defekte aufweisen, die die Lumineszenzausbeute herabsetzen.

AlGaInP-Quantenpunkte

Basierend auf den Simulationsergebnissen des vorherigen Abschnitts wurden ebenso QPe aus $\text{Al}_x\text{Ga}_{0,4-x}\text{In}_{0,6}\text{P}$ eingebettet in GaP berechnet und mit den experimentellen

Daten aus Abschnitt 4.3.3 verglichen. Als Form wurde ein linsenförmiger QP mit einheitlichen Abmessungen der Oberflächen-QPe der Probe mit 7% Al angenommen. Diese betragen für den Durchmesser der Basis des QPs 23 nm und für die Höhe 6 nm. Alle Berechnungen wurden wieder für 0 K durchgeführt. Abbildung 4.24 zeigt die mithilfe der 3D-Simulationen berechneten Übergangsenergien für den Γ -HH- und den X-HH-Übergang von $\text{Al}_y\text{Ga}_{0,4-y}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen eingebettet in GaP bei 0 K und einen Vergleich mit experimentell ermittelten Daten aus den PL-Messungen in Abbildung 4.16 bei 9 K. Man findet eine sehr gute Übereinstimmung der experimentellen Daten mit den Energien des X-HH-Übergangs der Simulation, während die Energie des berechneten Γ -HH-Übergangs deutlich höher liegt.

Das Überlappintegral liegt bei allen berechneten Proben, wie schon bei den $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen, für den X-HH-Übergang um 3 Größenordnungen niedriger als für den Γ -X-Übergang. Dass sich der Überlapp kaum ändert ist auch zu erwarten, da dieser vor allem durch die Größe und Verspannung der QPe bestimmt wird. Diese war bei allen berechneten AlGaInP-QPen praktisch gleich und lag im Bereich der $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPe.

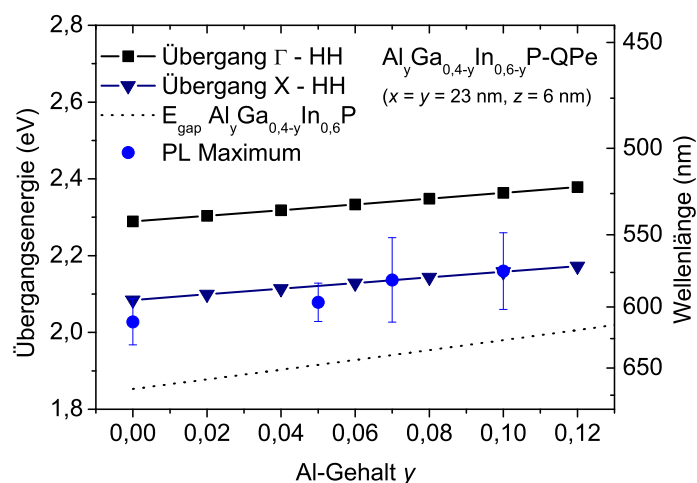


Abbildung 4.24: Vergleich der berechneten Übergangsenergien des Γ -HH-Übergangs und des X-HH-Übergangs mit den experimentell ermittelten Maxima des PL-Übergangs aus Abschnitt 4.3.3. Gestrichelt ist die berechnete Bandlücke von $\text{Al}_y\text{Ga}_{0,4-y}\text{In}_{0,6}\text{P}$ Volumenmaterial eingetragen (nach [Don03]). Die Fehlerbalken resultieren aus der Halbwertsbreite der Emission.

Einschlusspotential

In Abschnitt 4.4, in dem die temperaturabhängigen Eigenschaften der PL-Spektren diskutiert wurden, ist die experimentell bestimmte Aktivierungsenergie der Ladungsträger gezeigt. Dabei konnten Aktivierungsenergien im Bereich zwischen 30 und 60 meV gefunden werden.

Betrachtet man die Bandstrukturen für $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ - und $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPe, so lässt

sich daraus auch der Abstand des Energieniveaus eines Elektrons am Γ -Punkt im Leitungsband des QPs zur Barriere, sowie der eines Lochs im Valenzband zur umgebenden Barriere ablesen. Auch der Abstand des Niveaus von Elektronen, die sich am X-Punkt in der verspannten Barriere befinden, zum X-Punkt der unverspannten GaP-Barriere kann damit bestimmt werden.

Abbildung 4.25 zeigt die Aktivierungsenergien der relevanten Niveaus für Ladungsträger in $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ - und $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen eingebettet in GaP. Man erkennt, dass ein Hinzufügen von Al in die QPe vor allem einen Einfluss auf den Einschluss der Löcher im Valenzband hat. Aufgrund des geringeren VBOs von AlP im Vergleich zu GaP und InP nimmt die Aktivierungsenergie der Löcher um 70 meV ab. Für den Einschluss der Elektronen am Γ - und am X-Punkt im Leitungsband ergeben sich nur kleine Änderungen, wobei diese auch auf die geänderten Abmessungen zurückzuführen sind.

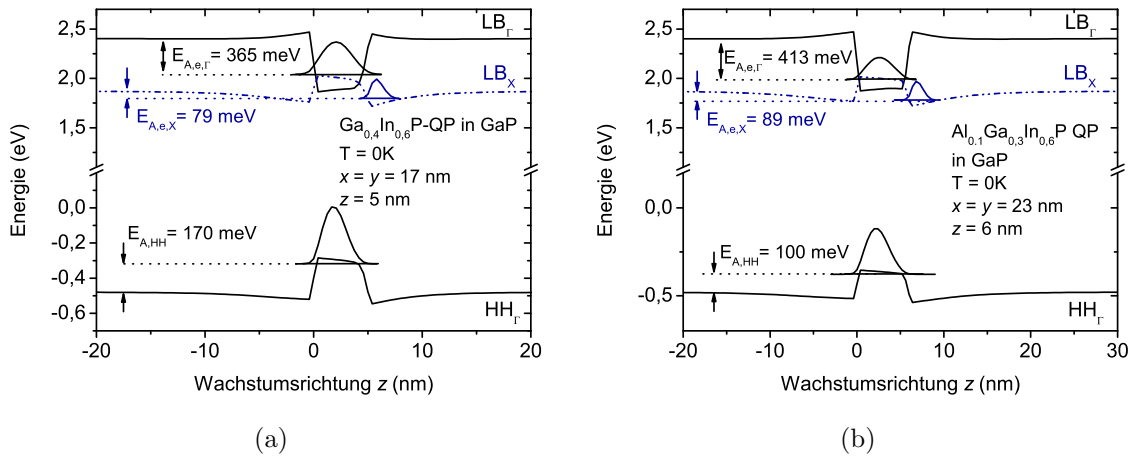


Abbildung 4.25: Aktivierungsenergien der relevanten Niveaus für Ladungsträger in $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ QPen (a) und $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen (b) jeweils eingebettet in GaP.

Die in Abschnitt 4.4 bestimmten Aktivierungsenergien von um die 40 meV liegen in derselben Größenordnung wie die durch die Simulation ermittelten von 80–90 meV für den dreieckigen Quantentopf in der GaP-Barriere. Gründe für die Abweichung sind mehrere denkbar: Zum einen wurde für die experimentelle Bestimmung der Aktivierungsenergie in Abschnitt 4.4 ein einfaches Zwei-Niveau-Modell verwendet. Dieses ist für Rechteckspotentiale zulässig, man hat es jedoch hier mit einem dreieckigen Quantentopf zu tun. Dies führt zu einer effektiven Abnahme des Einschlusses der Elektronen auf einer Seite. Zum anderen wurde die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern, welche bei den tiefen Temperaturen, bei denen die Experimente stattfanden, durchaus eine Rolle spielen, außer Acht gelassen. Die experimentell bestimmte Abnahme der Aktivierungsenergie mit zunehmenden Al-Gehalt deutet darauf hin, dass auch der Einschluss der Löcher eine Rolle bei deren Bestimmung spielt. Desweiteren ergibt sich eine nicht unwesentliche Unsicherheit aus der Abschätzung der Geometrie

durch Messungen an Oberflächen-QPen. Wie bereits dargelegt, weisen überwachsene QPe häufig geänderte Geometrien und Zusammensetzungen auf. Zuletzt ist noch zu beachten, dass in die Simulationen eine Vielzahl von Materialparametern eingehen, welche ebenfalls fehlerbehaftet sind und gerade für das AlGaInP-Materialsystem zum Teil noch wenig untersucht sind.

Diskussion der indirekten X-HH-Übergänge

Der Vergleich der berechneten strahlenden Übergänge von (Al,Ga)InP-QPen mit den experimentellen Daten der in dieser Arbeit hergestellten Proben legt nahe, dass man in den PL-Messungen den sowohl im Ortsraum als auch im Impulsraum indirekten X-HH-Übergang beobachtet. Dieser findet zwischen Elektronen, welche sich am X-Punkt der Barriere im Leitungsband befinden und Löchern, welche sich am Γ -Punkt der QPe im Valenzband befinden, statt. Dies entspricht einem Typ-II-Bandverlauf. Berechnet man das Überlappintegral von Elektronen- und Lochwellenfunktion für diesen Typ-II-Bandverlauf, so erhält man Werte, die, je nach Abmessungen der QPe, 3–8 Größenordnungen geringer sind als die für Elektronen und Löcher am Γ -Punkt, also für einen Typ-I-Übergang in diesem Materialsystem. In der Literatur findet man Dipolmatrixelemente von InP-QPen in GaP, welche bei Durchmessern von 16 nm um fünf Größenordnungen geringer sind [Wil98]. Allerdings wurde beispielweise in GaSb/GaAs-QPen, deren Bandverlauf ebenfalls vom Typ-II ist, auch schon intensive PL-Emission beobachtet [Hat95, Suz99].

Zusätzlich zu der örtlichen Separation der Ladungsträger bei den oben gezeigten Strukturen befinden sich jedoch die Elektronen am X-Punkt und die Löcher am Γ -Punkt der Brillouinzone. Dies ist gleichbedeutend mit der Tatsache, dass die Ladungsträgersorten einen unterschiedlichen Impuls besitzen. Da der Impulsübertrag bei Absorption und Emission eines Photons der beobachteten Energie verschwindend gering ist, muss bei diesen Übergängen im Allgemeinen immer noch ein weiteres (Quasi-)Teilchen (z.B. ein Phonon) beteiligt sein, um den Impulserhaltungssatz zu erfüllen. Die beobachtete Emission würde also aus einem Dreiteilchenprozess hervorgehen, was eine deutlich geringere Übergangswahrscheinlichkeit und damit eine deutlich verringerte Lumineszenzausbeute zur Folge hätte.

Allerdings ist zu beachten, dass die Ladungsträger nicht frei beweglich in den Strukturen sind, sondern in Quantentöpfen mit geringen Ausdehnungen gebunden. So sind die Löcher im Valenzband in den QPen mit Ausdehnungen von wenigen Nanometern gebunden. Betrachtet man die Wellenfunktionen der Elektronen am X-Punkt der Barriere, so ist diese im Ortsraum ebenfalls auf wenige Nanometer lokalisiert. Dies führt nach dem Prinzip der Heisenberg'schen Unschärferelation dazu, dass die Wellenfunktionen der Ladungsträger im Impulsraum nicht scharf, sondern verbreitert sind. Dies hat wiederum zur Folge, dass der Impulserhaltungssatz (bzw. quantenmechanisch die

k -Auswahlregel) auch verletzt werden kann [Bim99a, Wei91].

Um die Größenordnung der Lokalisation abzuschätzen, kann man folgenden Ansatz machen:

Nimmt man für die Ortsunschärfe Δz der Ladungsträger jeweils die Ausdehnung der Wellenfunktion an, bei der die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte auf 10% abgenommen hat, so erhält man für den Fall der $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPe in GaP für die Löcher $\Delta z_{HH} = 4,2$ nm und für die Elektronen am X-Punkt der Barriere $\Delta z_e = 2,9$ nm. Die Unschärfe im Impulsraum erhält man über die Heisenberg'sche Unschärferelation [Hak10]:

$$\Delta z \Delta p \geq \frac{\hbar}{2}$$

mit \hbar dem reduzierten Planck'schen Wirkungsquantum, Δz der Ortsunschärfe und Δp der Impulsunschärfe. Aus der Beziehung $p = \hbar k = \hbar k / 2\pi$ folgt:

$$\Delta z \Delta k \geq \frac{1}{2}$$

und

$$\Delta k \geq \frac{1}{2\Delta z}.$$

Δz eingesetzt liefert für Löcher $\Delta k_{HH} = 0,12$ nm⁻¹ und für Elektronen am X-Punkt in der Barriere $\Delta k_e = 0,17$ nm⁻¹. Zusammen liegt die Unschärfe im Impulsraum also bei 0,29 nm⁻¹.

Der Abstand des Γ -Punktes und des X-Punktes im Impulsraum beträgt $2\pi/a$, wobei a die Gitterkonstante des Halbleiters ist [Kit05]. Mit der Gitterkonstante für GaP von 0,545 nm folgt $\Delta_{\Gamma-X} = 11,5$ nm⁻¹. Die rein aus dem Einschluss der Ladungsträger auf einen bestimmten Ortsbereich resultierende minimale Unschärfe im Impulsbereich kann also, zumindest nach dieser Abschätzung, nicht den Abstand vom Γ zum X-Punkt überbrücken.

Aus obiger Abschätzung sieht man, dass die Lokalisation der Ladungsträger im Ortsraum in der Größenordnung der Gitterkonstanten liegen muss, um im k -Raum den Abstand zwischen X- und Γ -Punkt überbrücken zu können. Ein ähnliches Problem wird seit Mitte des letzten Jahrhunderts für isoelektrische Störstellen in GaP diskutiert: Die Dotierung von GaP mit Stickstoff führte zu einer Lumineszenz im grünen Spektralbereich, weil an diese Störstellen gebundene Elektronen im Ortsraum lokalisiert sind. Dies wurde in der Industrie sogar zur Herstellung von grün emittierenden LEDs ausgenutzt. Bei diesen atomaren Störstellen konnte man mit Potentialmulden von der Ausdehnung in der Größenordnung der Gitterkonstanten rechnen [Gil86]. Allerdings zeigten Berechnungen, die auch den Einfluss der Löcher in Betracht zogen, dass die Bindungsenergie der Exzitonen an diese Störstellen relativ gering ist und die Wellenfunktionen der Elektronen im k -Raum weiterhin stark am X-Punkt lokalisiert

sind. So ergaben Berechnungen von Masselink *et al.* [Mas83], dass 80% der Elektronenladung im X-Punkt konzentriert sind. Nimmt man wieder die Abnahme von $|\Psi|^2$ auf 10% für die Lokalisation eines Teichens an, so kann man nach der Veröffentlichung von Masselink *et al.* eine Ausdehnung des Elektrons im k -Raum von $4,6 \text{ nm}^{-1}$ ermitteln, wenn es zusammen mit einem Loch an eine Stickstoff-Störstelle gebunden ist. Dies ist zwar deutlich größer als der oben für die hier betrachteten QPe abgeschätzte Wert, kann aber immer noch nicht den Abstand Γ -X überbrücken.

Allerdings sei hier darauf hingewiesen, dass bei der oben angestellten Abschätzung und auch bei allen hier durchgeführten Berechnungen von Bandstrukturen die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern, welche zu einer zusätzlichen Anziehung und Lokalisation führt, außer Acht gelassen wurde. Zudem wurden Wechselwirkungen von QPen, welche sich direkt nebeneinander befinden, nicht berücksichtigt. Bei der vorliegenden sehr hohen Oberflächendichte der QPe und damit dem sehr geringen Abstand der QPe zueinander kann auch dies einen Einfluss auf die Lage der Wellenfunktionen haben. Ebenso können neben Phononen auch die Streuung an Störstellen und die Elektron-Elektron-Streuung den nötigen Impuls liefern [Pan71]. Tatsächlich wurden bereits optisch detektierbare Übergänge in sowohl im Orts- als auch im Impulsraum indirekten Strukturen beobachtet, z.B. in AlAs/GaAs-Quantenfilmen, in denen Ladungsträger stark lokalisiert waren [Ham06]. Ingale *et al.* führten die von ihnen beobachtete Lumineszenz von $\text{Ga}_{0,5}\text{In}_{0,5}\text{P}$ -QPen in GaP-Barrieren ebenfalls auf indirekte Übergänge vom X-Punkt der GaP-Barriere in das Valenzband der QPe zurück [Ing03].

Alle hier dargestellten Ergebnisse legen nahe, dass der indirekte Übergang beobachtet wird. Um dies weiter zu untersuchen, wurde eine Probe mit AlGaP-Barrieren hergestellt und der Einfluss dieser Barrieren auf die Lumineszenz untersucht, wie im Folgenden dargestellt.

Der Einfluss von AlGaP-Barrieren

Wie in Abschnitt 4.5.1 schon beschrieben, ändert sich bei der Kombination von GaP und AlP zum ternären Verbindungshalbleiter $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$ die Bandlücke des Materials aufgrund der größeren Bandlücke von AlP im Vergleich zu GaP, aber auch die absolute Lage der Bänder im Energieschema aufgrund des unterschiedlichen VBOs. Dabei liegt der X-Punkt von AlGaP energetisch niedriger als der von GaP. Bettet man nun identische AlGaInP-QPe in GaP und in AlGaP ein, so würde man für den direkten Γ -HH-Übergang keine oder nur eine geringe Änderung der Emissionsenergie (aufgrund des höheren Einschlusspotentials und der leicht geänderten Verspannung) erwarten. Beim indirekten X-HH-Übergang sollte jedoch eine deutliche Verschiebung der Emission hin zu kleineren Energien beobachtbar sein, da die absolute Lage des X-

Punktes der Barriere nun einen unmittelbaren Einfluss auf die Energie der Elektronen und damit auf die Übergangsenergie ΔE_{X-HH} haben sollte. Dies wird aus den berechneten Bandstrukturen in Abbildung 4.26 klar. Hier ist in Teilbild (a) nochmals ein $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QP in GaP-Barrieren dargestellt. In Teilbild (b) ist der identische QP in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ -Barrieren eingebettet. Wie man deutlich sieht, hat sich praktisch nur die Lage des $E_{e,X}$ -Zustands und die entsprechende X-HH-Übergangsenergie ΔE_{X-HH} geändert, welche in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ -Barrieren einen um 160 meV niedrigeren Wert hat.

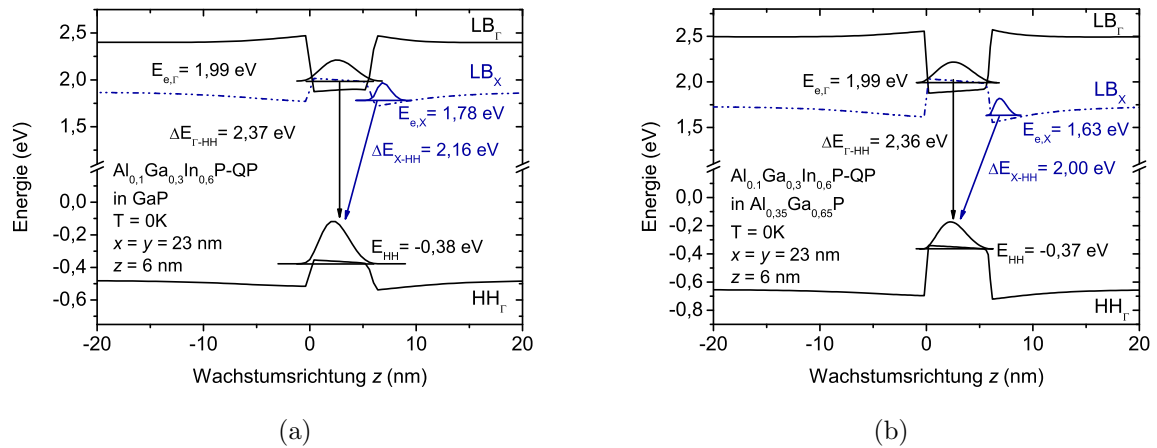


Abbildung 4.26: Berechnete Bandstruktur und Übergangsenergien für einen $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QP in GaP-Barrieren (a), sowie in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ -Barrieren (b). Die Abmessungen der QPe wurden dabei als identisch angenommen.

Um dies auch experimentell zu überprüfen wurde die Struktur aus Abbildung 4.26 hergestellt und die Ergebnisse mit den experimentellen und theoretischen Ergebnissen der nominell identischen QPe in GaP-Barrieren verglichen. Abbildung 4.27 zeigt das Tieftemperatur-PL-Spektrum der entsprechenden Proben von $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ -Barrieren im Vergleich zur Probe mit nominell identischen QPen in GaP-Barrieren: Die Emissionsenergie in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ -Barrieren ist um 130 meV geringer und stimmt gut mit den berechneten Daten aus Abbildung 4.26 überein.

Diese Ergebnis untermauert die in den vorherigen Abschnitten getroffene Schlussfolgerung, dass in den PL-Messungen der indirekte X-HH-Übergang beobachtet wird.

4.5.3 Ansätze zur Optimierung der Lumineszenzeffizienz

Wie die Abschnitte 4.3.3 und 4.4 gezeigt haben, nimmt vor allem bei höheren Temperaturen die Lumineszenzintensität von (Al,Ga)InP-QPen in GaP sehr stark ab. Für die meisten praktischen Anwendungen sind aber hohe Emissionsintensitäten bei Raum-

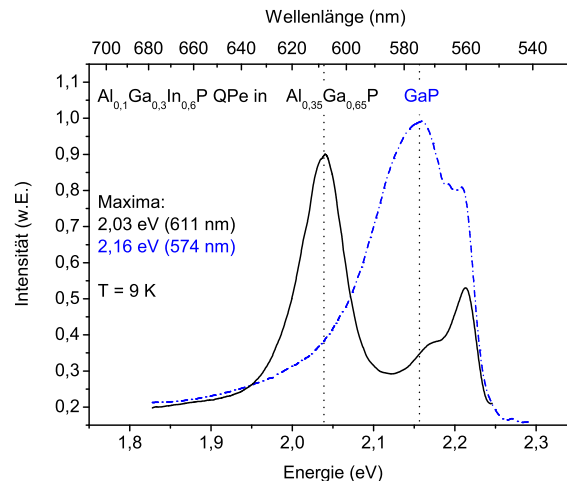


Abbildung 4.27: Tieftemperatur PL-Spektren der Proben mit $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen in unterschiedlichen Barrieren.

temperatur und darüber hinaus zwingend erforderlich. Die vorangegangenen Abschnitte haben mit Hilfe von numerischen 3D-Berechnungen gezeigt, welche Übergänge in den untersuchten Strukturen eine Rolle spielen und wie diese beeinflusst werden können. Mit diesen Ergebnissen sollen hier zunächst theoretisch Ansätze erarbeitet werden, welche eine Erhöhung der Lumineszenz und der Temperaturstabilität der Emission zur Folge haben könnten. Diese Ansätze werden anschließend experimentell untersucht.

AlGaP-Barrieren

Erhöht man die Barriere von QPen, erhöht sich im Allgemeinen auch die Aktivierungsenergie der eingeschlossenen Ladungsträger und man erreicht so eine geringere thermische Emission von Ladungsträgern aus den QPen heraus. Dies führt zu einer temperaturstabileren Lumineszenz [Kim00]. Allerdings ist dies nur der Fall bei Typ-I-QPen, also einer Bandstruktur, in der beide Ladungsträgersorten in den QPen gebunden sind. Da sich in den letzten Kapiteln gezeigt hat, dass die Übergänge im untersuchten Materialsystem örtlich indirekt sein könnten, wird die Situation dadurch komplizierter. Abbildung 4.28a zeigt die berechneten Aktivierungsenergien für die relevanten Energieniveaus beider Ladungsträgersorten für einen $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QP eingebettet in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$. Während die Aktivierungsenergien für Elektronen und Löcher im QP im Bereich zwischen 300 und 500 meV liegen, ist der Einschluss von Elektronen am X-Punkt der Barriere vergleichsweise gering und liegt bei 99 meV.

Vergleicht man Abbildung 4.28a mit Abbildung 4.25b, in der die QPe in GaP eingebettet sind, so erkennt man, dass sich die Aktivierungsenergie der Löcher am Γ -Punkt fast verdreifacht hat, von 100 meV in GaP-Barrieren auf 283 meV in AlGaP-Barrieren. Auch der Einschluss der Elektronen am Γ -Punkt ist größer geworden. Bei den Elektro-

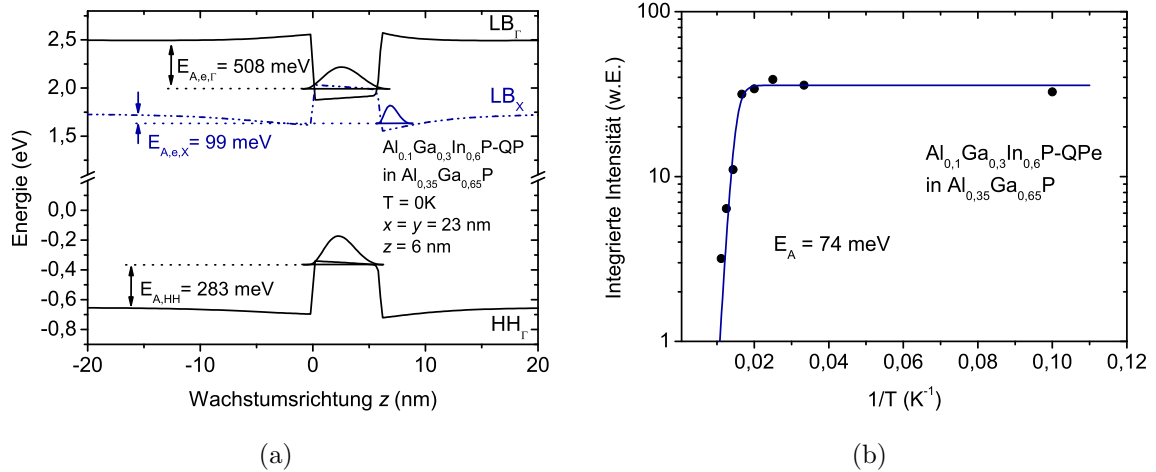


Abbildung 4.28: (a) Berechnete Aktivierungsenergien der relevanten Niveaus von Ladungsträgern bei $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$. (b) Experimentelle Bestimmung der Aktivierungsenergie.

nen am X-Punkt sind es jedoch nur 10 meV mehr, da die Tiefe dieses Potentialtopfs nur durch die etwas unterschiedliche Gitterfehlانpassung der QPe auf AlGaP im Vergleich zu GaP beeinflusst wird.

In Abbildung 4.28b ist der experimentell ermittelte Wert für die Aktivierungsenergie einer solchen Struktur gezeigt. Diese hat im Vergleich zu GaP-Barrieren (vgl. Abbildung 4.19) zwar zugenommen (um 44 meV im Vergleich zum Wert von $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen in GaP), skaliert aber nicht mit der Zunahme des Einschlusses der Ladungsträger am Γ -Punkt. Zudem ist dieser Wert weiterhin zu gering für eine effiziente Lumineszenz bei Raumtemperatur.

Gestapelte Quantenpunkte

Ein Ansatz, um eine bessere Emissionsintensität erreichen zu können, ist das Übereinanderstapeln von mehreren Schichten QPen [Sol96a]. Daraus resultieren nicht nur höhere Lumineszenzausbeuten aufgrund der größeren absoluten Anzahl von QPen. Stellt man die Wachstumsbedingungen und vor allem den Abstand der einzelnen QP-Schichten geschickt ein, so koppeln diese QP-Schichten sowohl über die Verspannung, als auch elektronisch miteinander. Die Verspannungskopplung sorgt dabei dafür, dass sich die folgende QP-Schicht direkt über der darunterliegenden anordnet [Xie95, Lit99]. Die elektronische Kopplung bewirkt, dass die Wellenfunktionen der Ladungsträger in den einzelnen QPen miteinander wechselwirken und sich so neue elektronische Eigenschaften ergeben [Sol96b]. Hier soll zunächst theoretisch untersucht werden, was eine solche gekoppelte QP-Struktur für den Bandverlauf von direkten (Al,Ga)InP-QPen bedeutet, die in eine indirekte AlGaP-Barriere eingebettet sind.

Abbildung 4.29 zeigt eine berechnete Bandstruktur von zwei $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen,

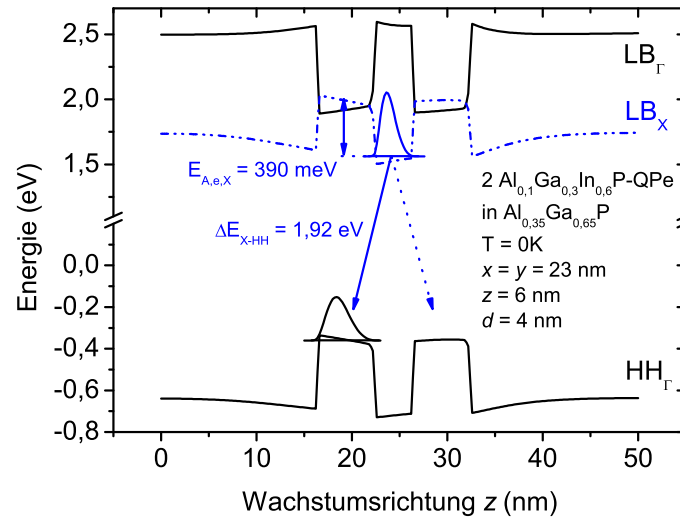


Abbildung 4.29: Stapel von zwei übereinander angeordneten $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen eingebettet in eine $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ -Matrix. Die Abmessungen der QPe betragen jeweils 23 nm als Durchmesser der Grundfläche und 6 nm in der Höhe. Der Abstand der QPe beträgt $d = 4$ nm.

die in eine $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ -Matrix eingebettet wurden. Durch das Anordnen der QPe direkt übereinander (bzw. in der Abbildung nebeneinander, da die Wachstumsrichtung nach rechts aufgetragen ist), wurde aus dem dreieckigen Potentialtopf am X-Punkt der Barriere neben den QPen ein Kastenpotential, das die Elektronen darin nun auf beiden Seiten einschließt. Die Aktivierungsenergie für Elektronen in diesem Kastenpotential beträgt in diesem Fall 390 meV, was fast einen Faktor vier größer ist als bei einzelnen QPen (vgl. Abbildung 4.28a). Zudem sollte der Überlapp der Wellenfunktionen der Elektronen am X-Punkt zwischen den QPen mit denen der Löcher im Valenzband der QPe effektiv vergrößert werden, da diese nun näher beieinander liegen. Leider konnte mit der verwendeten Version von *Nextnano++* keine Wechselwirkung und Hybridisierung von Wellenfunktionen berechnet werden. Deshalb ist in Abbildung 4.29 auch nur eine Lochwellenfunktion isoliert gezeigt.

Die Übergangsenergie vom X-Punkt zwischen den QPen und dem Grundzustand der Löcher in den QPen kann in diesem Fall mit 1,92 eV (646 nm) bestimmt werden. Dies ist ca. 80 meV geringer als bei einzelnen $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ (vgl. Abbildung 4.26), was aus der stärkeren Verspannung zwischen den QP-Schichten und der Umwandlung vom Dreiecks- in ein Kastenpotential resultiert. Würde man die elektronische Kopplung noch mit in die Berechnung einbeziehen, würde man eine weitere Verringerung der Emissionsenergie aufgrund der elektronischen Kopplung der einzelnen Wellenfunktionen aneinander erwarten. So zeigten Solomon *et al.* eine Verringerung der Übergangsenergie von 92 meV für gestapelte InAs/GaAs -QPe, verursacht durch die elektronische Kopplung [Sol96b].

Aus der Simulation geht hervor, dass die Emissionseffizienz durch das Stapeln von QP-Schichten überproportional (also um einen höheren Faktor als die bloße Anzahl der QP-Schichten) gesteigert werden kann, da der Überlapp und der Einschluss der Ladungsträger verbessert wird. Zudem sollte die Emission bis zu höheren Temperaturen als mit einzelnen Schichten möglich sein, allerdings ist auch eine Verschiebung zu geringeren Übergangsenergien zu erwarten.

Dieser Ansatz wurde im Zuge dieser Arbeit auch experimentell verfolgt. Die Ergebnisse werden im folgenden Abschnitt dargelegt.

4.6 Gestapelte Quantenpunkte in einer AlGaP-Matrix

4.6.1 Probenherstellung

Das epitaktische Wachstum dieser Proben war bis auf die Abscheidung der QPe identisch mit dem in Abschnitt 4.3.1 beschriebenen. Für die Ausbildung der gestapelten QPe wurde zunächst eine Schicht von 5,8 ML $\text{Al}_y\text{Ga}_x\text{In}_{1-x-y}\text{P}$ nach dem in Abbildung 4.12 gezeigten Zyklus abgeschieden. Nach einer Wachstumspause von 60 s unter PH_3 -Fluss zur Ausbildung der QPe wurden 20 Schichten von je 4,3 ML $\text{Al}_y\text{Ga}_x\text{In}_{1-x-y}\text{P}$ abgeschieden, die jeweils durch 4 nm $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ getrennt sind. Vor und nach dem Abscheiden des Materials für die QPe wurde jeweils eine Wachstumspause von 5 s bzw. 10 s unter PH_3 -Fluss eingelegt. Für die 20 QP-Schichten wurden bewusst nur 3/4 der Materialmenge der ersten Schicht abgeschieden, da die erste Schicht als Keimschicht agiert und durch das Verspannungsfeld die kritische Schichtdicke der folgenden Schichten herabsetzt. Auf die Probe mit den gestapelten QPen wurden keine Oberflächen-QP abgeschieden.

4.6.2 Morphologische Eigenschaften

Abbildung 4.30 zeigt TEM-Aufnahmen eines Stapels aus 21 Schichten $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen eingebettet in GaP. Die Dicke der GaP-Schicht zwischen den QP-Schichten beträgt 4 nm. Deutlich ist zu erkennen, warum diese Anordnung von QPen in der Literatur QP-Säule („quantum dot column“, engl. *column*, Säule) genannt wird [Lit99, Sol96b]: Durch das Verspannungsfeld der jeweils unten liegenden QP-Schicht ordnen sich alle weiteren QPe direkt übereinander an, so dass eine Säule aus QPen entsteht. Auch erkennt man in dieser Aufnahme, die in erster Beugungsordnung des TEM aufgenommen wurde, die heller erscheinenden In-Atome, die im Bereich der QPe zu finden sind. Die dünnen hellen horizontal verlaufenden Linien zwischen den QP-Säulen stammen von der stark verspannten In-haltigen Benetzungsschicht, welche bei der QP-Bildung als

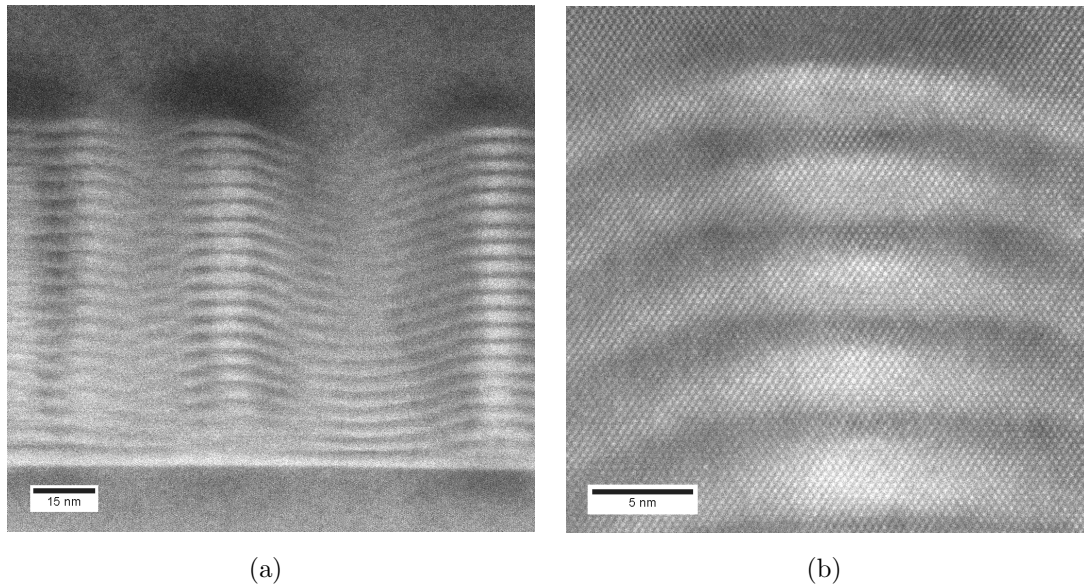


Abbildung 4.30: Querschnitt von gestapelten $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen eingebettet in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$. (a) Überblick über drei benachbarte Säulen von je 21 übereinander gewachsenen QP-Schichten. (b) Detailaufnahme der oberen drei QP-Schichten. Hier sind deutlich die heller erscheinenden In-Atome im Bereich der QPe zu erkennen.

stark verspannte Schicht zurückbleibt. Auch zu erkennen ist die Keimschicht mit größeren QPen an der Basis der Säulen.

In Abbildung 4.31 ist eine Detailaufnahme einer QP-Säule gezeigt, anhand derer die ungefähren Abmessungen der Struktur ermittelt wurden, wobei dies nur eine Einzelmessung darstellt und dementsprechend nicht unbedingt als repräsentativ gelten muss. Zudem ist es schwierig die genauen Grenzen der Strukturen festzulegen und es ist nicht sicher, dass der Schnitt durch die QPe, der im Bild zu sehen ist, tatsächlich genau durch die Mitte der QPe verläuft. Die Abmessungen der QPe in der Keimschicht an der Basis der Säulen stimmt jedoch recht gut mit den von gleichartigen Oberflächen-QPen überein, die Basislänge beträgt ca. 22 nm, die Höhe etwa 6 nm. Die darauffolgenden Schichten haben Abmessungen von etwa $14 \times 3,4$ nm, die Dicke der AlGaP-Separationsschicht zwischen den QP-Schichten lässt sich zu etwa 3 nm abschätzen.

4.6.3 Photolumineszenz

Abbildung 4.32 zeigt einen direkten Vergleich einer einzelnen $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QP-Schicht eingebettet in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ sowie 21 Schichten (20 Schichten + Keimschicht), die jeweils durch 4 nm $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ getrennt sind. Gezeigt sind PL-Spektren der Probe mit der einzelnen Schicht, sowie der Probe mit den gestapelten QPen jeweils bei 10 K und bei 60 K. Wie man deutlich erkennt, ist die Intensität der gestapelten QPe bei 10 K

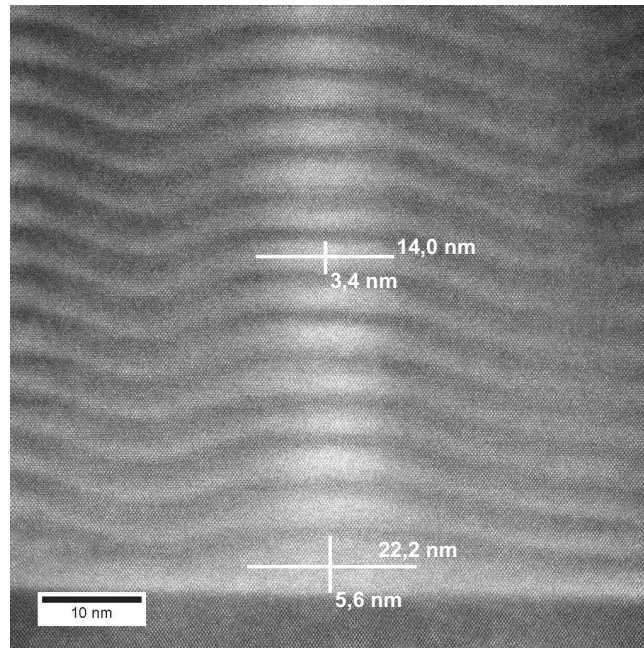


Abbildung 4.31: Detailaufnahme einer QP-Säule mit eingezeichneter Bemaßung.

und bei 60 K deutlich größer als die der einzelnen Schicht. Die maximale Intensität bei 60 K erhöht sich dabei beim Übergang zum Stapel etwa um einen Faktor 95, wobei zu beachten ist, dass die Intensität der einzelnen Schicht zur besseren Sichtbarkeit in der Abbildung bereits hochskaliert wurde. Bezieht man diese Intensitätserhöhung auf eine einzelne Schicht, so ergibt sich eine Zunahme um einen Faktor 4,5. Dies ist eine direkte Konsequenz des besseren Einschusses der Elektronen am X-Punkt zwischen den QPen und des besseren Überlapps mit den Lochzuständen im Gegensatz zum Einschuss und dem Überlapp bei einer einzelnen QP-Schicht (vgl. Abschnitt 4.5.3). Ebenso erkennt man eine deutliche Rotverschiebung der Emission um etwa 160 meV auf 1,87 eV (664 nm). Die Simulation eines zweifachen Stapels dieser QPe hat ebenfalls eine Rotverschiebung vorhergesagt, allerdings um etwa 80 meV auf etwa 1,92 eV (646 nm, Abbildung 4.29). Der Grund der Diskrepanz wird neben nicht exakt bekannten Abmessungen der QPe vor allem in der Ungenauigkeit der Simulation liegen, die (aufgrund von Speicherbeschränkungen des Computers) nur auf einem zweifachen Stapel basiert. Zudem wurde eine Kopplung der einzelnen quantenmechanischen Zustände der Ladungsträger untereinander vernachlässigt, was im InAs/GaAs-System in einer Rotverschiebung von 92 meV resultiert [Sol96b]. Nimmt man in Näherung diesen Wert auch für das hier gezeigte System an, so stimmen Berechnung und Experiment sehr gut überein.

Abbildung 4.33 zeigt die temperaturabhängige Messung der Emissionsintensität der gestapelten QPe. Im Gegensatz zu einer einzelnen Schicht ist die Dynamik der Ladungsträger etwas komplizierter, was sich durch ein langsames Abknicken der Kurve

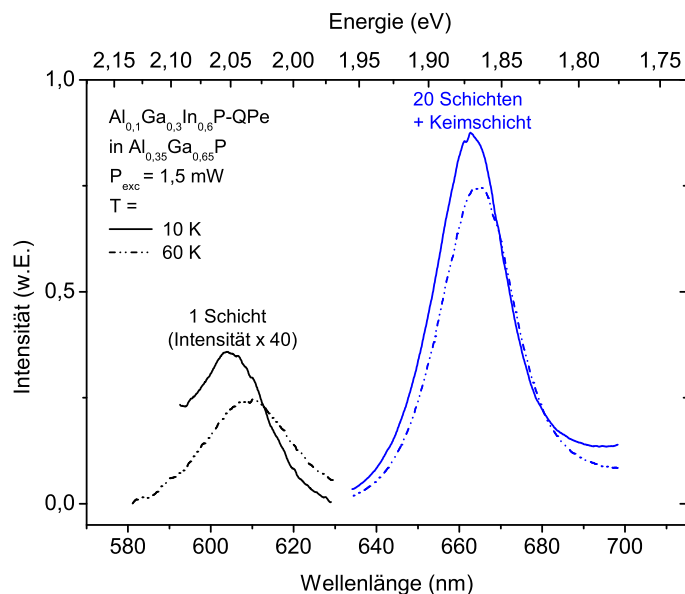


Abbildung 4.32: Vergleich von $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$ als einzelne Schicht und als 21-facher Stapel bei 10 K und bei 60 K. Die Intensität der einzelnen Schicht wurde mit einem Faktor 40 skaliert.

bei einer inversen Temperatur zwischen $0,01$ und $0,02 \text{ K}^{-1}$ zeigt. Eine Kurvenanpassung nach Gleichung (2.29) war hier schwierig, so dass die Bereiche unter $0,01 \text{ K}^{-1}$ und über $0,01 \text{ K}^{-1}$ jeweils gesondert angepasst wurden. Im stark abfallenden Bereich der Kurve ergibt sich so eine Aktivierungsenergie von 204 meV , was mehr als doppelt so viel ist wie bei einer einzelnen Schicht dieser QPe (vgl. Abbildung 4.28) und im Bereich der theoretischen Abschätzung für Elektronen am X-Punkt liegt. Dies zeigt sich auch an der maximalen Temperatur, bei der die Lumineszenz noch gemessen werden kann: Während einzelne Schichten bei 90 K schon kein auswertbares Signal mehr lieferten, kann man die Lumineszenz im Fall eines Stapels bis 180 K gut nachweisen.

Diese Beobachtungen untermauern zum einen die Ergebnisse aus Abschnitt 4.5.2, in dem die berechneten und gemessenen PL-Eigenschaften miteinander verglichen wurden. Zum anderen zeigt dies, dass der Ansatz der gestapelten QPe eine Möglichkeit darstellt, um die Lumineszenzintensität und das Temperaturverhalten von AlGaInP-QPen in AlGaP-Barrieren in Richtung des anwendungsrelevanten Bereichs zu verschieben. Auf Basis dieser Ergebnisse ist auch eine weitere Anpassung der Emission derartiger QPe hinsichtlich Wellenlänge und Aktivierungsenergie denkbar. So kann durch die Variation des Al- und In-Gehalts der QPe und der Zwischenschichten der Bandverlauf in gewissen Grenzen direkt beeinflusst werden. Durch geeignete Wahl der Materialzusammensetzung erscheint so zumindest theoretisch sogar ein örtlich direkter Übergang möglich, der zudem noch eine größere Übergangsenergie aufweist. Da diese Strukturen auf GaP-Substrat hergestellt werden können, eröffnet dies ein großes Anwendungs-

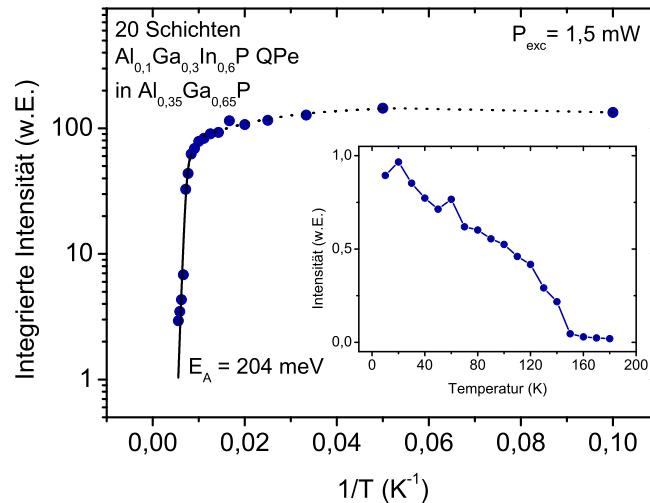


Abbildung 4.33: Temperaturabhängige Intensität und Bestimmung der Aktivierungsenergie von 21-fach gestapelten $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,3}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen eingebettet in $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{P}$. Klein ist eine lineare Auftragung über die Temperatur gezeigt.

tential nicht nur für halbleiterbasierte Beleuchtungsanwendungen, sondern auch für in Silizium integrierte Photonik.

4.7 Elektrisch gepumpte Quantenpunkte auf Galliumphosphid

4.7.1 Optimierung der Kontaktwiderstände

Zum effizienten elektrischen Betrieb von optoelektronischen Halbleiterbauelementen ist eine geeignete Dotierung des Halbleiters notwendig. Zusätzlich benötigt man aber auch niederohmige Kontakte, welche die Verbindung zwischen Zuleitung und Halbleiterbauelement herstellen. Geringe Übergangswiderstände sind dabei unabdingbar, um eine Aufwärmung des Bauteils durch die Verlustleistung an den Kontakten zu vermeiden. Für die p-Dotierung der auf GaP basierenden Strukturen wurde Beryllium verwendet. Wie schon bei den auf GaAs gitterangepassten GaInP-Strukturen war auch hier eine Aktivierung der Dotieratome durch eine ex-situ Wärmebehandlung nötig, um die Resistivität der Schichten zu vermindern. Zusätzlich zeigten sich aber für die verwendeten Titan/Platin/Gold-Kontakte, welche für den p-Kontakt verwendet wurden, enorm hohe Kontaktwiderstände von mehreren hundert Ohm. In der Literatur findet man für die p-Kontaktierung von GaP eine Mischung aus 99% Gold und 1% Beryllium [Hat05]. Da diese Mischung für die in dieser Arbeit beschriebenen Proben nicht vorlag und zudem Beryllium sehr giftig und kanzerogen ist [Sti80], sollte eine Alternative dazu gefunden

werden.

Für Untersuchungen, wie man die elektrischen Eigenschaften verbessern könnte, wurden Proben mit 250 nm p-dotiertem GaP gewachsen. Um die Schicht ausreichend vom dotierten Substrat zu isolieren, wurden davor 500 nm undotiertes Material abgeschieden. Auf der Oberfläche wurden Breitstreifenkontakte aufgedampft und mittels eines Präzisions-Ohmmeters die Widerstände gemessen. Misst man den Widerstand vom ersten Kontakt zu den nächsten und passt eine Gerade an die Daten an, so kann man über die Kontaktgeometrie und die Schichtdicke die Resistivität des Halbleitermaterials berechnen. Eine Extrapolation auf den Kontaktabstand $d = 0$ ermöglicht es, Aussagen über den Kontaktwiderstand treffen zu können.

Ein minimaler Kontaktwiderstand ließ sich letztendlich realisieren, indem man die hochdotierte GaP-Kontaktschicht mit einer dünnen (1–15 nm) GaAs-Schicht überwuchs. Durch die große Gitterfehlpassung wächst GaAs nicht pseudomorph auf GaP auf, sondern relaxiert sofort und bildet eine raue Oberfläche. Da bestimmte Bestandteile der später aufgedampften Kontakte aber auch einige Nanometer in den Halbleiter diffundieren und die GaAs-Schicht nur extrem dünn ist, sollte dies auch bei Lasern keinen Effekt auf die Verluste der Mode haben. Für spätere Anwendungen im Dauerbetrieb unter Konstantstrom muss jedoch noch geklärt werden, inwieweit eine solche Kontaktierung sich bezüglich der elektrischen und mechanischen Dauerbelastbarkeit bewähren kann. Um die GaAs-Kontaktschicht hinsichtlich der Übergangswiderstände zu optimieren, wurden mehrere Proben mit unterschiedlichen GaAs-Schichtdicken und Be-Dotierkonzentrationen hergestellt und untersucht. Auch der Einfluss eines ex-situ Temper-Prozesses (RTA, vgl. Abschnitt 3.4.1) wurde dabei beachtet. Abbildung 4.34 zeigt eine REM-Aufnahme der GaP-Probenoberfläche nach dem Überwachsen mit 1 nm bzw. 15 nm GaAs. Man erkennt, dass schon nach 1 nm die GaAs-Schicht relaxiert ist.

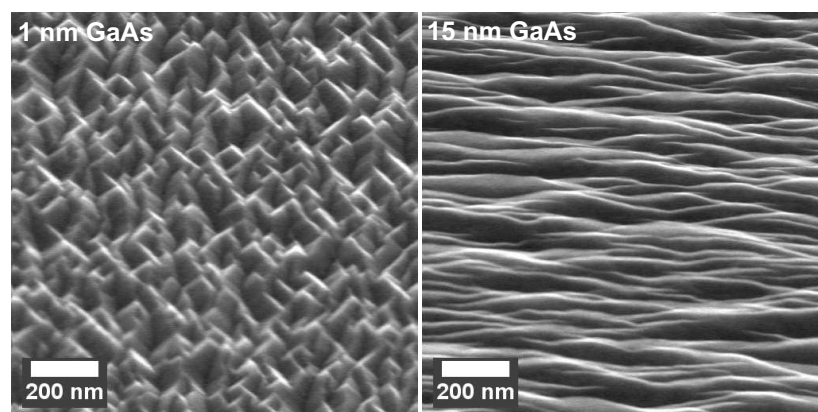


Abbildung 4.34: REM-Aufnahmen der GaP-Oberfläche nach dem Überwachsen mit 1 nm bzw. 15 nm GaAs.

Die entsprechenden Widerstandsmessungen sind in Abbildung 4.35 dargestellt. Hier

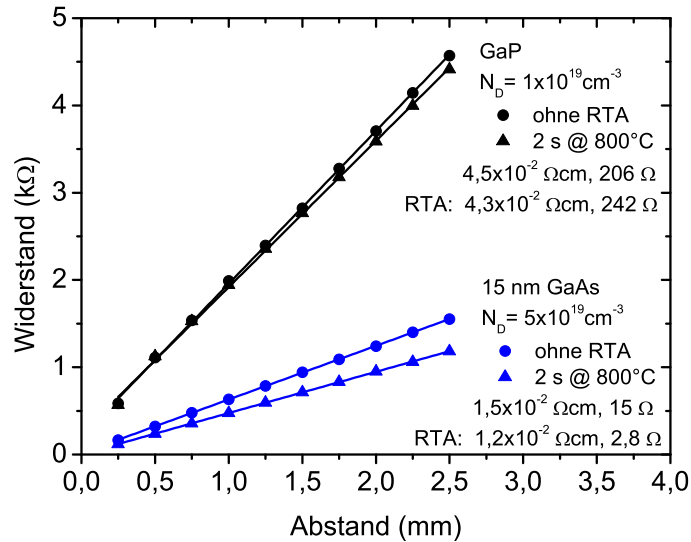


Abbildung 4.35: Widerstandsmessung von Titan/Platin/Gold-Kontakten auf p-dotiertem GaP mit und ohne GaAs-Kontaktschicht. Die gezeigten Werte geben jeweils die Resistivität und den Kontaktwiderstand an.

ist der gemessene Widerstand zwischen den Kontakten über deren Abstand aufgetragen. Deutlich sind die unterschiedlichen Steigungen der Geraden zu erkennen, aus denen man die Resistivität erhält. Der Schnittpunkt der Geraden mit der y -Achse gibt Aufschluss über den Kontaktwiderstand. Auch die so ermittelten Ergebnisse sind in Abbildung 4.35 eingetragen. Durch eine Erhöhung der Dotierkonzentration N_D von 1×10^{19} auf $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ und das Abscheiden von 15 nm hochdotiertem GaAs auf der GaP-Oberfläche konnte die Resistivität von $4,5 \times 10^{-2}$ auf $1,5 \times 10^{-2} \text{ Ωcm}$ und der Kontaktwiderstand von 206 auf 15 Ω gesenkt werden. Ein Temper-Prozess, bei dem die Probe zunächst 30 s auf 500°C vorgewärmt und anschließend bei 800°C für 2 s getempert wurde, verringert den Kontaktwiderstand nochmals auf $2,8 \text{ Ω}$. Im Vergleich zum unüberwachsenen und thermisch nicht behandelten p-GaP ergibt sich also eine Verringerung des Kontakwiderstands um etwa einen Faktor 100.

4.7.2 GaInP/GaP Laserstrukturen

Auf Basis von 21-fach gestapelten $\text{Ga}_{0,4}\text{In}_{0,6}\text{P}$ -QPen wurden Laserstrukturen auf GaP-Substrat hergestellt. Der Schichtaufbau orientierte sich dabei stark an den auf GaAs-Substrat hergestellten Laserstrukturen aus Abschnitt 3.4.1. Auch hier wurde mittels numerischer Lösung der Wellengleichung der Überlapp der optischen Mode mit der gestapelten QP-Schicht berechnet und maximiert, gleichzeitig wurde das Eindringen des elektrischen Feldes in dotierte Bereiche minimiert und so ein optimales Wellenleiterdesign gefunden. Der Schichtaufbau im Einzelnen war wie folgt: Nach einer 100 nm dicken hoch dotierten Si:GaP-Pufferschicht wurden 2×5 Perioden eines je 5 nm dicken Si:GaP/Si:Al_{0,4}Ga_{0,6}P-Übergitters zum Abfangen von Gitterfehlern

gewachsen. Nach weiteren 50 nm Si:GaP wurde die n-Mantelschicht bestehend aus 1000 nm Si:Al_{0,4}Ga_{0,6}P abgeschieden. Während dieser wurde die Dotierung in drei Schritten auf $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ verringert. Die aktive Zone, bestehend aus einer Keimschicht und danach 20 Schichten Ga_{0,4}In_{0,6}P, wurde in die Mitte eines insgesamt 160 nm dicken GaP-Wellenleiters eingebettet, welcher auf der n-Seite zu einem Drittel dotiert, auf der p-Seite undotiert war. Anschließend wurde die p-Mantelschicht bestehend aus 1000 nm Al_{0,4}Ga_{0,6}P gewachsen, wobei die ersten 120 nm undotiert gelassen wurden und die Be-Dotierung in der Mantelschicht in drei Schritten auf bis zu $2,5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ erhöht wurde. Die anschließende hochdotierte Be:GaP-Kontaktschicht wurde mit einer 20 nm Be:GaAs-Schicht zur Kontaktwiderstandsverbesserung überwachsen. Die Substrattemperatur während der GaP-, AlGaP- und GaAs-Schichten betrug 560°C, zum Wachstum der QPe wurde die Substrattemperatur auf 505°C abgesenkt.

Nach dem Tempern für 30 s bei 500°C und 2 s bei 800°C wurden wie in Abschnitt 3.4.1 beschriebene Breitstreifenlaser hergestellt und einer dieser Laser mit einer Kavitätslänge von 1 mm und einer Kontaktbreite von 100 µm mittels Indiumlot auf einen vergoldeten Kupferblock aufgelötet, der im Kryostaten des in Abschnitt 2.4.2 beschriebenen Messplatzes eingebaut und untersucht wurde.

Leider konnte bei dieser Struktur keine Laseremission gezeigt werden. Vermutlich sind die Ladungsträgerverluste durch eine noch nicht genügend hohe Kristallqualität noch höher als die erreichbare Verstärkung im aktiven Material. Zusätzlich tragen Ladungsträgerverluste aus den QPen durch die niedrige Aktivierungsenergie auch bei Tieftemperatur dazu bei. Allerdings zeigte die Struktur Elektrolumineszenz, welche mit den PL-Ergebnissen vergleichbar ist (siehe Abbildung 4.36).

Wie in diesem Abschnitt gezeigt, konnte durch den Einsatz von gestapelten QPen und verbesserten Kontaktschichten keine Laseremission in auf GaP basierten Laserstrukturen erreicht werden. Dies ist in dieser speziellen Struktur vermutlich auf nicht ausreichend hohe Kristallqualität und den weiterhin zu geringen Einschluss der Ladungsträger in die aktive Schicht zu erklären. Das epitaktische Wachstum dieser Strukturen gestaltet sich vor allem aufgrund der ungenauen Kontrolle der Substrattemperatur durch ein Thermoelement schwierig. Gerade die Kristallqualität von Laserstrukturen, bei denen über einen langen Zeitraum mehrere Temperaturrampen vorkommen leidet darunter. Allerdings existieren technische Möglichkeiten, die Substrattemperatur auch in GaP sehr genau über optische Methoden zu messen, welche die Bandkantenabsorption von GaP ausnutzen. Zudem wurde in Abschnitt 4.6 gezeigt, dass durch die geschickte Anordnung von QPen genau definierter Zusammensetzung der Bandverlauf in solchen Strukturen gezielt manipuliert werden kann. Für bestimmte Zusammensetzungen sind so eventuell sogar im Orts- oder Impulsraum direkte Übergänge möglich. Dies gibt Anlass zu der Vermutung, dass durch weitere Optimierung der QPe zusammen mit der Verwendung höherer Barrieren aus Al-haltigem Material Laseremission in auf GaP basierenden Strukturen durchaus erreicht werden kann.

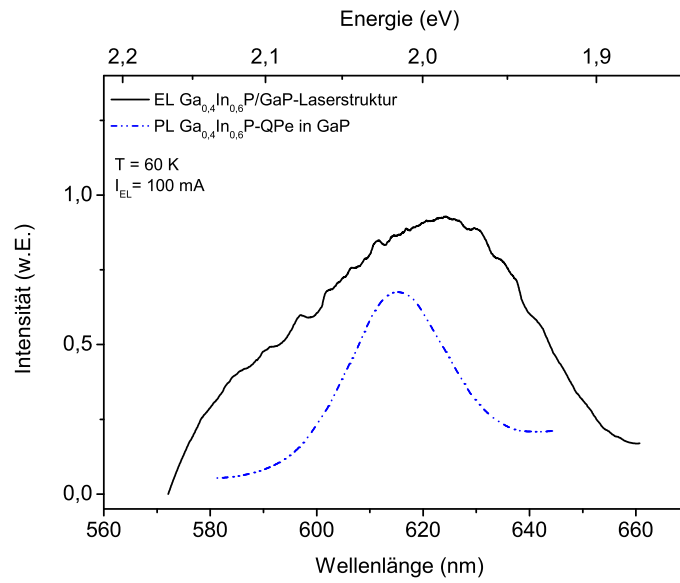


Abbildung 4.36: Elektrolumineszenzspektrum der GaInP/GaP Laserstruktur. Zum Vergleich ist ein PL-Spektrum einer einzelnen QP-Schicht mit nominell identischer Materialkonzentration gezeigt.

5 Literaturverzeichnis

- [Ala97] H. Alawadhi, R. Vogelgesang, A. K. Ramdas, T. P. Chin, J. M. Woodall. *Journal of Applied Physics*, **82** (9), 4331–4337, 1997
- [Alf63] Z. Alferov, R. Kazarinov. USSR patent, **181737**, 1963
- [Alf01] Z. Alferov. *Reviews of Modern Physics*, **73** (3), 767–782, 2001
- [Ara82] Y. Arakawa, H. Sakaki. *Applied Physics Letters*, **40** (11), 939–941, 1982
- [Asa86] M. Asada, Y. Miyamoto, Y. Suematsu. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **22** (9), 1915–1921, 1986
- [Avr10] A. Avramescu, T. Lerner, J. Müller, C. Eichler, G. Bruederl, M. Sabathil, S. Lutgen, U. Strauss. *Applied Physics Express*, **3** (6), 1003, 2010
- [Bak97] O. Baklenov, D. L. Huffaker, A. Anselm, D. G. Deppe, B. G. Streetman. *Journal of Applied Physics*, **82** (12), 6362–6364, 1997
- [Bei03] G. J. Beirne, M. Jetter, M. Rossi, J. Porsche, F. Scholz, H. Schweizer, T. J. Glynn. *Journal of Luminescence*, **102**, 1–6, 2003
- [Bim99a] D. Bimberg. *Semiconductors*, **33** (9), 951–955, 1999
- [Bim99b] D. Bimberg, M. Grundmann, N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (Wiley, 1999)
- [Bir07] S. Birner, T. Zibold, T. Andlauer, T. Kubis, M. Sabathil, A. Trellakis, P. Vogl. *IEEE Transactions on Electron Devices*, **54** (9), 2137–2142, 2007
- [Cah64] J. Cahn, R. Hanneman. *Surface Science*, **1** (4), 387–398, 1964
- [Car95] N. Carlsson, K. Georgsson, L. Montelius, L. Samuelson, W. Seifert, R. Wallenberg. *Journal of Crystal Growth*, **156** (1-2), 23–29, 1995
- [Chu95] S. Chuang, *et al.* *Physics of Optoelectronic Devices* (Wiley New York, 1995)
- [Col95] L. Coldren, S. Corzine. *Diode Lasers and Photonic Integrated Circuits* (Wiley New York, 1995)

- [Cos06] G. Costantini, A. Rastelli, C. Manzano, P. Acosta-Diaz, R. Songmuang, G. Katsaros, O. Schmidt, K. Kern. *Physical Review Letters*, **96** (22), 226106, 2006
- [Dea83] P. J. Dean, M. S. Skolnick, C. Uihlein, D. C. Herbert. *Journal of Physics C-Solid State Physics*, **16** (11), 2017–2051, 1983
- [Deb08] R. Debusmann, T. Schlereth, S. Gerhard, W. Kaiser, S. Höfling, A. Forchel. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **44** (2), 175–181, 2008
- [Dem09] A. Demir, G. Ozgur, K. Shavitranuruk, S. Freisem, D. Deppe. *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2009
- [Den94] S. DenBaars, C. Reaves, V. Bressler-Hill, S. Varma, W. Weinberg, P. Petroff. *Journal of crystal growth*, **145** (1-4), 721–727, 1994
- [Dew09] C. von Dewitz, F. Hatami, M. Millot, J. M. Broto, J. Leotin, W. T. Masselink. *Applied Physics Letters*, **95** (15), 2009
- [DL10] J. Di Liang. *Nature Photonics*, **4** (8), 511–517, 2010
- [Don03] G. Donati, R. Kaspi, K. Malloy. *Journal of Applied Physics*, **94**, 5814, 2003
- [Dut81] N. Dutta, R. Nelson. *Applied Physics Letters*, **38** (6), 407–409, 1981
- [FC88] A. Fischer-Colbrie, J. Miller, S. Laderman, S. Rosner, R. Hull. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, **6** (2), 620–624, 1988
- [Fuc10] P. Fuchs, J. Seufert, J. Koeth, J. Semmel, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel. *Applied Physics Letters*, **97**, 181111, 2010
- [Gar97] J. García, G. Medeiros-Ribeiro, K. Schmidt, T. Ngo, J. Feng, A. Lorke, J. Kotthaus, P. Petroff. *Applied Physics Letters*, **71**, 2014, 1997
- [Geo95] K. Georgsson, N. Carlsson, L. Samuelson, W. Seifert, L. Wallenberg. *Applied Physics Letters*, **67**, 2981, 1995
- [Gil86] B. Gil, J. Albert, J. Camassel, H. Mathieu, C. Benoit. *Physical Review B*, **33** (4), 2701, 1986
- [Goñ03] A. Goñi, C. Kristukat, F. Hatami, S. Dreßler, W. Masselink, C. Thomsen. *Physical Review B*, **67** (7), 075306, 2003
- [Gon04] Q. Gong, P. Offermans, R. Nötzel, P. Koenraad, J. Wolter. *Applied Physics Letters*, **85**, 5697, 2004
- [Gre10] A. Greentree, S. Praver. *Nature Photonics*, **4** (4), 202–203, 2010

- [Gu06] Y. Gu, Y. Zhang, H. Li, A. Li, C. Zhu. *Materials Science and Engineering: B*, **131** (1-3), 49–53, 2006
- [Hak10] H. Haken, H. Wolf. *Atom- und Quantenphysik: Einführung in die experimentellen und theoretischen Grundlagen* (Birkhäuser, 2010)
- [Hal62] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys, R. O. Carlson. *Physical Review Letters*, **9** (9), 366–368, 1962
- [Ham06] A. Hammack, N. Gippius, S. Yang, G. Andreev, L. Butov, M. Hanson, A. Gossard. *Journal of Applied Physics*, **99**, 066104, 2006
- [Har05] P. Harrison. *Quantum Wells, Wires and Dots* (Wiley Online Library, 2005)
- [Hat95] F. Hatami, N. Ledentsov, M. Grundmann, J. Böhrer, F. Heinrichsdorff, M. Beer, D. Bimberg, S. Ruvimov, P. Werner, U. Gösele, *et al.* *Applied Physics Letters*, **67**, 656, 1995
- [Hat01] F. Hatami, W. T. Masselink, L. Schrottke. *Applied Physics Letters*, **78** (15), 2163–2165, 2001
- [Hat03] F. Hatami, W. T. Masselink, L. Schrottke, J. W. Tomm, V. Talalaev, C. Kristukat, A. R. Goni. *Physical Review B*, **67** (8), 2003
- [Hat05] F. Hatami, V. Lordi, J. Harris, H. Kostial, W. Masselink. *Journal of Applied Physics*, **97** (9), 096106–096106, 2005
- [Her89] M. Herman, H. Sitter. *Molecular Beam Epitaxy: Fundamentals and Current Status* (Springer-Verlag, 1989)
- [Hir94] H. Hirayama, K. Matsunaga, M. Asada, Y. Suematsu. *Electronics Letters*, **30** (2), 142–143, 1994
- [Hor07] I. Horcas, R. Fernandez, J. Gomez-Rodriguez, J. Colchero, J. Gómez-Herrero, A. Baro. *Review of Scientific Instruments*, **78**, 013705, 2007
- [Iba08] H. Ibach, H. Lüth. *Festkörperphysik: Einführung in die Grundlagen* (Springer, 2008)
- [Ing03] A. Ingale, S. Datta, A. Bhattacharya, M. R. Ghokale, B. M. Arora. *Materials Science & Engineering C-Biomimetic and Supramolecular Systems*, **23** (6-8), 1115–1121, 2003
- [Joy01] P. Joyce, T. Krzyzewski, P. Steans, G. Bell, J. Neave, T. Jones. *Surface Science*, **492** (3), 345–353, 2001
- [Jun09] S. Jungthawan, S. Limpijumnong, R. Collins, K. Kim, P. Graf, J. Turner. *Journal of Applied Physics*, **105** (12), 123531–123531, 2009

- [Kat94] H. Kato, S. Adachi, H. Nakanishi, K. Ohtsuka. Japanese Journal of Applied Physics, **33**, 186, 1994
- [Kei00] G. Keiser. *Optical Fiber Communications* (Wiley Online Library, 2000)
- [Kim00] Y. Kim, U. Lee, D. Lee, S. Rhee, Y. Leem, H. Ko, D. Kim, J. Woo. Journal of Applied Physics, **87**, 241, 2000
- [Kir94] N. Kirstaedter, N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. Ustinov, S. Ruvimov, M. Maximov, P. Kop'ev, Z. Alferov, U. Richter, *et al.* Electronics Letters, **30** (17), 1416–1417, 1994
- [Kir96] N. Kirstaedter, O. Schmidt, N. Ledentsov, D. Bimberg, V. Ustinov, A. Egorov, A. Zhukov, M. Maximov, P. Kop'ev, Z. Alferov. Applied Physics Letters, **69**, 1226, 1996
- [Kit05] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik* (Oldenbourg Wissenschaftsverlag, 2005)
- [Klo02] F. Klopff, S. Deubert, J. Reithmaier, A. Forchel. Applied Physics Letters, **81**, 217, 2002
- [Kro01] H. Kroemer. Proc. IEEE, **51** (12), 1782–1783, 2001
- [LB88] S. Landolt-Börnstein. *Physics of Group IV Elements and III-V Compounds, New Series III/17a* (Springer, Berlin, 1988)
- [Led00] N. Ledentsov, M. Grundmann, F. Heinrichsdorff, D. Bimberg, V. Ustinov, A. Zhukov, M. Maximov, Z. Alferov, J. Lott. Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of, **6** (3), 439–451, 2000
- [Lee97] J. W. Lee, A. T. Schremer, D. Fekete, J. R. Shealy, J. M. Ballantyne. Journal of Electronic Materials, **26** (10), 1199–1204, 1997
- [Leh08] T. Lehnhardt, M. Hümmer, K. Rössner, M. Müller, S. Höfling, A. Forchel. Applied Physics Letters, **92** (18), 183508, 2008
- [Lit99] B. Lita, R. Goldman, J. Phillips, P. Bhattacharya. Applied Physics Letters, **74**, 2824, 1999
- [Mai60] T. Maiman. Nature, **187**, 493, 1960
- [Man03] Y. Manz. *Vergleich von MBE-gewachsenen Quantenpunkten und Quantenfilmen für Laseranwendungen im Materialsystem GaInP*. Dissertation, Universitätsbibliothek Stuttgart, 2003
- [Mas83] W. T. Masselink, Y.-C. Chang. Phys. Rev. Lett., **51** (6), 509–512, 1983

- [Mas01] W. T. Masselink, F. Hatami, G. Mussler, L. Schrottke. *Materials Science in Semiconductor Processing*, **4** (6), 497–501, 2001
- [Mes04] D. Meschede. *Gehrtsen: Physik* (Springer Verlag, 2004)
- [Mic03] P. Michler. *Single quantum dots: fundamentals, applications, and new concepts*, Bd. 90 (Springer, 2003)
- [Muk00] K. Mukai, Y. Nakata, K. Otsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, H. Ishikawa. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **36** (4), 472–478, 2000
- [Nak88] W. Nakwaski. *Journal of Applied Physics*, **64** (1), 159–166, 1988
- [Nat62] M. I. Nathan, W. P. Dumke, G. Burns, J. Frederick H. Dill, G. Lasher. *Applied Physics Letters*, **1** (3), 62–64, 1962
- [Niz99] V. Niziev, A. Nesterov. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **32**, 1455, 1999
- [Ola98] L. Olafsen, E. Aifer, I. Vurgaftman, W. Bewley, C. Felix, J. Meyer, D. Zhang, C. Lin, S. Pei. *Applied Physics Letters*, **72** (19), 2370–2372, 1998
- [Ott08] E. Otten. *Repetitorium Experimentalphysik* (Springer, 2008). ISBN 3540857877
- [Ozg09] G. Ozgur, A. Demir, D. Deppe. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **45** (10), 1265–1272, 2009
- [Pan71] J. Pankove. *Optical Processes in Semiconductors* (Dover Publications, 1971)
- [Peh97] E. Pehlke, N. Moll, A. Kley, M. Scheffler. *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, **65** (6), 525–534, 1997
- [Peo85] R. People, J. Bean. *Applied Physics Letters*, **47** (3), 322–324, 1985
- [Pet79] K. Petermann. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **15** (7), 566–570, 1979
- [Poo01] P. Poole, J. McCaffrey, R. Williams, J. Lefebvre, D. Chithrani. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, **19**, 1467, 2001
- [Por00] J. Porsche, F. Scholz. *Journal of Crystal Growth*, **221**, 571–575, 2000
- [Pri91] G. Price. *Physical Review Letters*, **66** (4), 469–472, 1991
- [Rie02] T. Riedl. *Rot emittierende InP/GaInP Quantenpunktlaser*. Dissertation, Universitätsbibliothek Braunschweig, 2002

- [Rot07] K. Roth. *Chemie in unserer Zeit*, **41** (4), 334–345, 2007
- [Roy03] I. Roy, T. Ohulchanskyy, H. Pudavar, E. Bergey, A. Oseroff, J. Morgan, T. Dougherty, P. Prasad. *Journal of the American Chemical Society*, **125** (26), 7860–7865, 2003
- [Sch98] F. Schäfer, B. Mayer, J. Reithmaier, A. Forchel. *Applied Physics Letters*, **73**, 2863, 1998
- [Sch07] T. Schlereth, C. Schneider, W. Kaiser, S. Höfling, A. Forchel. *Applied physics letters*, **90**, 221113, 2007
- [Sch09] T. W. Schlereth, C. Schneider, S. Gerhard, S. Höfling, A. Forchel. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, **15** (3), 792–798, 2009
- [Sch11] U. Schwarz, F. Scholz. *Physik Journal*, **02**, 21, 2011
- [Sco79] G. B. Scott, J. S. Roberts. *Institute of Physics Conference Series*, **45**, 181–189, 1979
- [Sco80] G. Scott, J. Roberts, R. Lee. *Applied Physics Letters*, **37** (1), 30–32, 1980
- [Sol96a] G. Solomon, M. Larson, J. Harris Jr. *Applied Physics Letters*, **69**, 1897, 1996
- [Sol96b] G. Solomon, J. Trezza, A. Marshall, J. Harris, Jr. *Physical Review Letters*, **76** (6), 952–955, 1996
- [Spr90] A. J. Springthorpe, A. Majeed. *Journal of Vacuum Science & Technology B*, **8** (2), 266–270, 1990
- [Sti80] T. Stiefel, K. Schulze, H. Zorn, G. Tölg. *Archives of Toxicology*, **45** (2), 81–92, 1980
- [Str99] G. Stringfellow. *Organometallic Vapor-Phase Epitaxy: Theory and Practice* (Academic Press, 1999)
- [Sug05] M. Sugawara, N. Hatori, H. Ebe, M. Ishida, Y. Arakawa, T. Akiyama, K. Otsubo, Y. Nakata. *Journal of Applied Physics*, **97** (4), 043523–043523, 2005
- [Sun96] C. Sun, G. Wang, J. Bowers, B. Brar, H. Blank, H. Kroemer, M. Pilkuhn. *Applied physics letters*, **68**, 1543, 1996
- [Sun09] Y. Sun, S. Thompson, T. Nishida. *Strain Effect in Semiconductors: Theory and Device Applications* (Springer Verlag, 2009)
- [Suz99] K. Suzuki, R. Hogg, Y. Arakawa. *Journal of Applied Physics*, **85**, 8349, 1999

- [Sze07] S. Sze, K. Ng. *Physics of Semiconductor Devices* (Wiley-Blackwell, 2007). ISBN 0471143235
- [Tho64] D. Thomas, M. Gershenson, F. Trumbore. *Physics Review*, **133**, A269, 1964
- [Ust03] V. Ustinov. *Quantum Dot Lasers*, Bd. 1 (Oxford University Press, USA, 2003)
- [Veg21] L. Vegard. *Zeitschrift für Physik A, Hadronen und Nuclei*, **5** (1), 17–26, 1921
- [Vur01] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, L. R. Ram-Mohan. *Journal of Applied Physics*, **89** (11), 5815–5875, 2001
- [VV70] J. A. Van Vechten, T. K. Bergstresser. *Physical Review B*, **1** (8), 3351–3358, 1970
- [Wal89] C. Van de Walle. *Physical Review B*, **39** (3), 1871, 1989
- [Wan92] S. Wang, T. Andersson, M. Ekenstedt. *Applied Physics Letters*, **61** (26), 3139–3141, 1992
- [Wei91] C. Weisbuch, B. Vinter. *Quantum Semiconductor Structures: Fundamentals and Applications* (Academic Press, 1991)
- [Wil98] A. Williamson, A. Zunger, A. Canning. *Physical Review B*, **57** (8), 4253–4256, 1998
- [Xie95] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, N. Kobayashi. *Physical Review Letters*, **75** (13), 2542–2545, 1995
- [Zie75] J. P. van der Ziel, R. Dingle, R. C. Miller, W. Wiegmann, J. W. A. Nordland. *Applied Physics Letters*, **26** (8), 463–465, 1975

Abkürzungen und Symbole

Akronyme

AFM	Atomic Force Microscope, Rasterkraftmikroskop
BA	Broad Area, Breitstreifen
BCB	Benzocyclobuten
DA	Donor-Akzeptor
ECR	Electron-Cyclotron Resonance, Elektron-Zyklotron-Resonanz
EL	Elektrolumineszenz
FWHM	Full Width at Half Maximum, Halbwertsbreite
GS-MBE	Gas-Source-MBE, Gasquellen-MBE
HH	Heavy-Hole, Schwerloch
LB	Leitungsband
LH	Leichtloch
LED	Light Emitting Diode, Leuchtdiode
MBE	Molecular Beam Epitaxy, Molekularstrahlepitaxie
ML	Monolage
MOCVD	Metallorganische Gasphasenepitaxie
PDT	Photodynamische Therapie
PL	Photolumineszenz
QP	Quantenpunkt
REM	Rasterelektronenmikroskop
RIE	Reactive Ion Etching, Reaktives Ionenätzen
RTA	Rapid Thermal Annealing, schnelles Tempern
RWG	Ridge Waveguide, Stegwellenleiter
TC	Thermocouple, Thermoelement
TEM	Transmissionselektronenmikroskop
VB	Valenzband
VBO	Valenzbandoffset
XRD	X-Ray Diffraction, Röntgenbeugung

Symbole

a	Gitterkonstante, unverspannt
a_c	Hydrostat. Deformationspotential im Leitungsband
a_v	Hydrostat. Deformationspotential im Valenzband
α_m	Spiegelverluste
α_i	Interne Verluste
b_Γ	Scherdeformationspotential am Gamma-Punkt
β	Beta-Faktor
C_{11}	Elastische Konstante
C_{12}	Elastische Konstante
d_{krit}	kritische Schichtdicke
δ	Delta-Funktion
ΔE_C^{hyd}	Hydrostatische Energieänderung im Leitungsband
ΔE_V^{hyd}	Hydrostatische Energieänderung im Valenzband
Δ_{SO}	Spin-Bahn-Aufspaltung
$\Delta E_X^{001,100,010}$	Energieaufspaltung am X-Punkt in den entsprechenden Richtungen
ΔE_{HH}^{scher}	Scherkraftinduzierte Energieänderung im Schwerlochband
ΔE_{LH}^{scher}	Scherkraftinduzierte Energieänderung im Leichtlochband
ΔE_{SO}^{scher}	Scherkraftinduzierte Energieänderung im Split-Off-band
E	Energie
e	Elementarladung
E_A	Aktivierungsenergie
E_{Acc}	Akzeptor-Niveau
E_D	Donator-Niveau
E_F	Fermienergie
$E_{F,L}$	Quasi-Fermienergie, Leitungsband
$E_{F,V}$	Quasi-Fermienergie, Valenzband
E_{gap}	Bandlücke
ϵ	Verspannung
η_d	externe differentielle Effizienz
η_i	interne Effizienz
f	Frequenz

g	Verstärkung
g_0	Verstärkungskoeffizient
Γ	Mittelpunkt der Brillouinzone bzw. Confinement-Faktor beim Laser
g_{th}	Schwellverstärkung
h	Planck'sches Wirkungsquantum
\hbar	reduziertes Planck'sches Wirkungsquantum, $h/2\pi$
I	Stromstärke
I_{lum}	Lumineszenzintensität
I_{th}	Schwellstrom
J	Stromdichte
J_{th}	Schwellstromdichte
J_{tr}	Transparenzstromdichte
k	Wellenvektor
k_B	Boltzmann-Konstante
L	Punkt hoher Symmetrie in der Brillouinzone bzw. Kavitätslänge bei Lasern
λ	Wellenlänge
m^*	Effektive Masse
N	Anzahldichte
N_{tr}	Transparenzladungsträgerdichte
ν	Poisson-Verhältnis bzw. Frequenz
p	Impuls
Φ_X	Deformationspotential am X-Punkt
ψ	Wellenfunktion
R	Intensitätsreflektivität
r	Amplitudenreflektivität
R_{gen}	Generationsrate
R_{ns}	Nichtstrahlende Rekombinationsrate
R_{rek}	Rekombinationsrate
R_{spon}	Spontane Rekombinationsrate
R_{stim}	Stimulierte Rekombinationsrate
T	Temperatur
t	Zeit
T_0	Charakteristische Temperatur
τ	Zeitkonstante
Θ	Heaviside Funktion
U	Spannung
V	Volumen
v_g	Gruppengeschwindigkeit
X	Punkt hoher Symmetrie in der Brillouinzone

Veröffentlichungen des Autors

Veröffentlichungen in Fachzeitschriften

S. Gerhard, S. Kremling, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel:

Short wavelength emission of AlGaInP quantum dots grown on GaP substrate

Nanotechnology, zur Veröffentlichung akzeptiert am 19. August 2011

S. Gerhard, V. Baumann, S. Höfling, A. Forchel:

The structural and optical characterization of high areal density $Ga_xIn_{1-x}P$ quantum dots on GaP

Nanotechnology 20, 434016, (2009)

T.W. Schlereth, C. Schneider, S. Gerhard, S. Höfling, A. Forchel:

Short-wavelength (760 - 920 nm) AlGaInAs quantum-dot lasers

IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics 15, 792, (2009)

S. Gerhard, C. Schilling, F. Gerschütz, M. Fischer, J. Koeth, I. Krestnikov, A. Kovsh, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel:

Frequency dependent linewidth enhancement factor of quantum dot lasers

IEEE Photonics Technology Letters 20, 1736, (2008)

R. Debusmann, T.W. Schlereth, S. Gerhard, W. Kaiser, S. Höfling, A. Forchel:

Gain studies on quantum-dot lasers with temperature-stable emission wavelength

IEEE Journal of Quantum Electronics 44, 175, (2008)

T.W. Schlereth, S. Gerhard, W. Kaiser, S. Höfling, A. Forchel:

Short-wavelength (≈ 760 nm) AlGaInAs quantum-dot lasers

IEEE Photonics Technology Letters 19, 1380, (2007)

Tagungsbeiträge

S. Gerhard, M. Heidemann, S. Höfling, M. Kamp, A. Forchel:

AllInP quantum-dots for short wavelength laser applications

International Nano-Optoelectronics Workshop iNOW, Würzburg, 2011

S. Gerhard, V. Baumann, S. Höfling, A. Forchel:

Short wavelength photoluminescence of (Al)GaInP quantum dots grown on GaP substrate by gas-source MBE

16th International Conference on MBE, Berlin, 2010

S. Gerhard, V. Baumann, S. Höfling, A. Forchel:

High areal density $Ga_xIn_{1-x}P$ quantum dots on GaP substrate emitting in the visible spectral region

Deutscher MBE Workshop, Bochum, 2009

S. Gerhard, V. Baumann, S. Höfling, A. Forchel:

High areal density $Ga_xIn_{1-x}P$ quantum dots on GaP substrate emitting in the visible spectral region

International Nano-Optoelectronics Workshop iNOW, Stockholm, Schweden und Berlin, 2009

S. Gerhard, V. Baumann, S. Höfling, A. Forchel:

Growth and properties of high areal density $Ga_xIn_{1-x}P$ quantum dots on GaP substrate

IEEE LEOS Annual Meeting Conference, Antalya, Türkei, 2009

S. Gerhard, C. Schilling, F. Gerschütz, M. Fischer, J. Koeth, I. Krestnikov, A. Kovsh, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel:

Frequency dependent Henry-factor measurements of quantum-dot distributed-feedback lasers

International Nano-Optoelectronics Workshop iNOW, Tokyo und Shonan, Japan, 2008

S. Gerhard, T.W. Schlereth, W. Kaiser, S. Höfling, A. Forchel:

High performance AlGaInAs quantum-dot lasers in the visible wavelength region ($\lambda = 760$ nm)

DPG Frühjahrstagung, Berlin, 2008

S. Gerhard, T.W. Schlereth, S. Höfling, A. Forchel:

Herstellung und Charakterisierung von AlGaInAs/AlGaAs Quantenpunktlasern mit einer Emissionswellenlänge um 760 nm

VDI Nanofair, Dresden, 2008

T.W. Schlereth, C. Schneider, S. Gerhard, W. Kaiser, S. Höfling, A. Forchel:
Red emitting, high-performance AlGaInAs quantum dot lasers
International Nano-Optoelectronics Workshop iNOW, Peking und Lanzhou, China,
2007

S. Höfling, T.W. Schlereth, S. Gerhard, C. Schneider, W. Kaiser, A. Forchel:
High performance red and near-infrared emitting AlGaInAs quantum dot lasers
International Workshop on Quantum Dots and Laser Applications, Wroclaw, Polen,
2007

T.W. Schlereth, S. Gerhard, C. Schneider, W. Kaiser, S. Höfling, A. Forchel:
Red and near-infrared emitting AlGaInAs quantum dot lasers
European Semiconductor Laser Workshop, Berlin, 2007

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all jenen danken, die zum Gelingen dieser Doktorarbeit beigetragen und mich dabei unterstützt haben:

Prof. Dr. Alfred Forchel, Prof. Dr. Lukas Worschech und Prof. Dr. Martin Kamp für die Möglichkeit diese Arbeit am Lehrstuhl für Technische Physik durchführen zu können.

Sven Höfling für die gute Betreuung und die stetige Motivation.

Meinen Diplomanden Vasilij Baumann und Matthias Heidemann für unermüdliches Messen und die aufschlussreichen Diskussionen.

Den Assistentinnen und Assistenten der Technischen Physik:

Vor allem Margit Wagenbrenner für das Anfertigen unzähliger REM-Bilder, das Hochfahren der Anlagen in tiefster Nacht und die kompetente Unterstützung beim schmutzigsten Job der MBEler, den Öffnungen, sowie Gerhard Heller für die Hilfe bei der Bewältigung logistischer und technischer Probleme an der MBE

Stefan Kremling für die Unterstützung bei PL-Messungen.

André Thiem-Riebe und Stephan Braxmeier vom Lehrstuhl EPVI bzw. ZAE für das unkomplizierte Aushelfen, als unsere Messeinrichtungen nicht wollten.

Den Kollegen von Nanoplus für die Benutzung der Messplätze.

Allen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern der TeP, allen voran den Besatzungen von AU44, 42 und dem Automatenbüro für die freundschaftliche Atmosphäre und die vielen „extracurricular activities“, die die Promotionszeit zu einem tollen Lebensabschnitt gemacht haben.

Besonders danke ich an dieser Stelle meiner ganzen Familie und all meinen Freunden, die mich immer tatkräftig unterstützt haben und zu vielen stressigen Zeiten alles möglich gemacht haben, um mir die Arbeit zu erleichtern und die Freizeit zu verschönern. Besonders danke ich Theresa Noisser, für das Übernehmen der zeitintensiven Aufgabe Tippfehler in dieser Arbeit zu suchen!

Lebenslauf

Persönliche Angaben

Name	Sven Gerhard
	Diplomingenieur (univ.)
Geburtsdatum, -ort	29. April 1981, Würzburg

Berufserfahrung

10/2007 – 09/2011	Promotion im Fach Physik Wissenschaftlicher Mitarbeiter mit Gelegenheit zur Promotion, Lehrstuhl für Technische Physik, Universität Würzburg
09/2005 – 01/2006	Wissenschaftliche Hilfskraft Fraunhofer ISC, Würzburg
02/2004 – 04/2004	Praktikum Adam Opel AG, Rüsselsheim
11/2001 – 09/2001	Zivildienst Blindeninstitutsstiftung, Würzburg

Ausbildung

10/2001 – 08/2007	Studium der Nanostrukturtechnik Universität Würzburg
08/2006 – 08/2007	Diplomarbeit <i>“Herstellung und Charakterisierung von AlGaInAs/AlGaAs Quantenpunktlasern mit einer Emissionswellenlänge um 760 nm”</i> Lehrstuhl für Technische Physik, Universität Würzburg
09/1991 – 06/2000	Abitur Friedrich Koenig Gymnasium Würzburg

Versicherung an Eides statt

Gemäß §5 Abs. 2 Ziff. 2 der Promotionsordnung der Fakultät für Physik und Astronomie der Julius-Maximilians-Universität Würzburg

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Dissertation eigenständig und ohne Hilfe eines Promotionsberaters angefertigt und keine anderen Hilfsmittel oder Quellen als die angegebenen verwendet habe.

Diese Dissertation wurde bisher weder teilweise noch vollständig einer anderen Hochschule oder in einem anderen Prüfungsfach mit dem Ziel des Erwerbs eines akademischen Grades vorgelegt.

Am 19. November 2007 wurde mir von der Universität Würzburg der akademische Grad „Dipl.-Ing (Univ)“ verliehen. Weitere akademische Grade habe ich weder erworben noch versucht zu erwerben.

Würzburg, den

Sven Gerhard