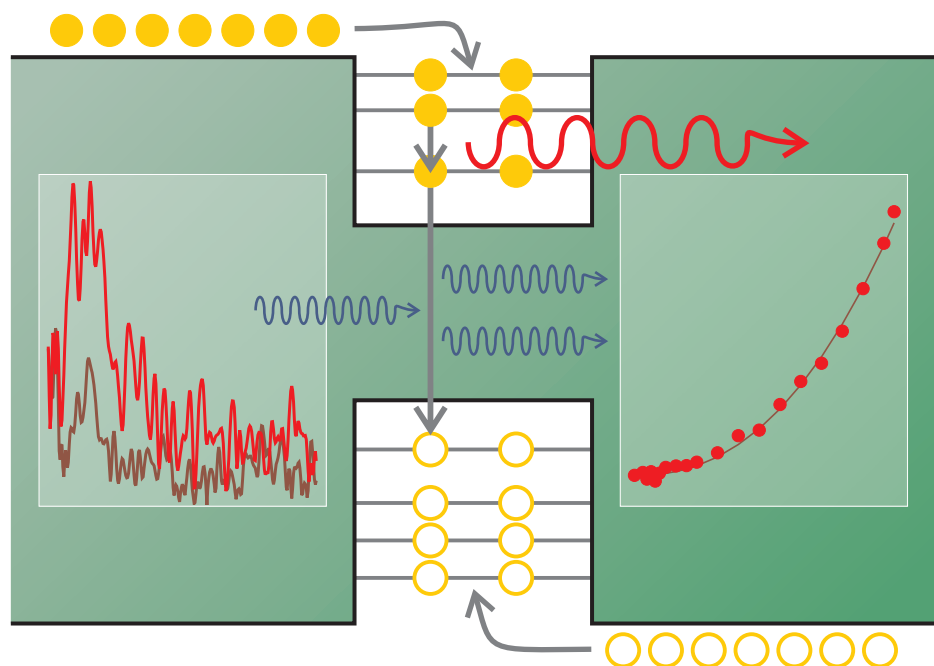


Alexander Weber

Optische Untersuchungen von Intersubniveau-Übergängen in selbstorganisierten InGaAs/GaAs-Quantenpunkten





Studies in Solid State Physics

Herausgeber:

C. Thomsen, D. Bimberg, M. Dähne, W. Richter

Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Berlin



Mensch & Buch Verlag

OPTISCHE UNTERSUCHUNGEN VON
INTERSUBNIVEAU-ÜBERGÄNGEN
IN SELBSTORGANISIERTEN
IN_GAA_S/GA_AS-QUANTENPUNKTEN

vorgelegt von
Diplom-Physiker
Alexander Weber
aus Frankfurt am Main

von der Fakultät II
– Mathematik und Naturwissenschaften –
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften
– Dr. rer. nat. –

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. Thomas Möller

Berichter: Prof. Dr. Dieter Bimberg

Prof. Dr. Marius Grundmann

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 13. Juli 2005

Berlin 2005

D 83

Reihentitel: TU Berlin Studies in Solid State Physics

Reihennummer: 16

Herausgeber:

C. Thomsen, D. Bimberg, M. Dähne, W. Richter

Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Berlin

ISSN 1613-6411

ISBN 3-89820-985-7

Dissertation, Technische Universität Berlin, 2005

D83

Bibliografische Information Der Deutschen Bibliothek

Die Deutsche Bibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <<http://dnb.ddb.de>> abrufbar.

Dieses Werk ist urheberrechtlich geschützt.

Alle Rechte, auch die der Übersetzung, des Nachdruckes und der Vervielfältigung des Buches, oder Teilen daraus, vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf ohne schriftliche Genehmigung des Verlages in irgendeiner Form reproduziert oder unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

This document is protected by copyright.

No part of this document may be reproduced in any form by any means without prior written authorization of Mensch & Buch Verlag.

© **MENSCH & BUCH VERLAG**, Berlin 2005

Nordendstr. 75, 13156 Berlin • ☎ 030 - 45 49 48 66

<http://www.menschundbuch.de> • info@menschundbuch.de

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit werden Intersubniveau-Übergänge in selbstorganisierten InGaAs/GaAs-Quantenpunkten mit spektroskopischen Methoden untersucht. Dabei wird einerseits das ladungsabhängige Absorptionsverhalten der Nanostrukturen im Mittelinfrarot mit einer neuen Kombination aus Fourierspektroskopie und kalorimetrischer Absorptionsspektroskopie erforscht. Andererseits wird mittelinfrarote Intersubniveau-Emission aus Quantenpunkten spektroskopisch untersucht. Die prinzipielle Machbarkeit eines bipolaren zweifarbigem Lasers, der im Nah- und im Mittelinfrarot emittiert, kann durch Simulationen gezeigt werden.

Mit Hilfe der genannten Absorptions-Technik ist es möglich, Phononen erzeugende, nichtstrahlende Intersubniveau-Übergänge in Quantenpunkten direkt nachzuweisen, indem die Erwärmung der Probe durch Ladungsträgerrelaxationen nach Absorption in den Quantenpunkten gemessen wird. Deshalb kann man den Aufbau auch als mittelinfrarotes Quantenpunktbolometer bezeichnen. Es wird experimentell eine ladungsabhängige Absorption in den Quantenpunkten nachgewiesen. Deren Intensität und Wellenlänge hängt von der Ladung der Quantenpunkte, die sich durch Anlegen einer externen Spannung verändern lässt, ab. Die beobachteten Effekte können durch unterschiedliche Ladungsträgerbesetzung, Pauli-Blockade und Mehrteilcheneffekte in den Quantenpunkten erklärt werden. Der Intersubniveau-Absorptionsquerschnitt für Quantenpunkte, die mit einem Elektron besetzt sind, wird mit $\sim 10^{-13} \text{ cm}^2$ bestimmt.

Undotierte, optisch gepumpte Quantenpunktproben ohne Wellenleiter zeigen mittelinfrarote Emissionspeaks. Die Intensität wächst dabei unterlinear mit der optischen Anregungsleistung und sättigt schließlich. Aus dem beobachteten Sättigungsverhalten lässt sich die Art der Ladungsträgerrelaxation bestimmen – bei den untersuchten Proben liegt in der Hauptsache eine rein kaskadische Relaxation vor.

Nahinfrarote Laserproben ergeben bei optischer oder elektrischer Anregung ebenfalls mittelinfrarote Emissionspeaks im Bereich von 50–115 meV. Je nach Zustand und Größe des Wellenleiters weicht hier aber die Abhängigkeit der mittelinfraroten Intensität von der Anregungsleistung deutlich vom erwarteten Verhalten ab, indem sie einen signifikant überlinearen Anstieg aufweist. Simulationen eines nahinfraroten Quantenpunktlasers, die auch die mittelinfrarote Emission berücksichtigen, zeigen, dass der beobachtete überlineare Anstieg durch Intersubniveau-Emission im Lasermode erklärt werden kann. Diese mittelinfrarote Emission ist zwar noch weit unterhalb der Schwelle für einen mittelinfraroten Laser, aber ein wichtiger experimenteller Schritt hin zu einem solchen.

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	1
2	Grundlagen	5
2.1	Allgemeine Eigenschaften von Quantenpunkten	5
2.1.1	Confinement	5
2.1.2	Zustandsdichte	7
2.1.3	Einteilchenzustände	7
2.2	Ladungsträger-Wechselwirkungen im Quantenpunkt	10
2.2.1	Coulomb-Wechselwirkung	10
2.2.2	Mehrteilchenzustände	11
2.3	Übergänge von Ladungsträgern	12
2.3.1	Interband-Übergänge	12
2.3.2	Intersubniveau-Übergänge	14
	Relaxationsmechanismen	14
2.3.3	Inhomogene Verbreiterung	15
2.3.4	Absorption durch freie Ladungsträger	16
3	Experimentelle Techniken	17
3.1	Arbeitsweise eines Fourierspektrometers	17
3.1.1	Michelson-Interferometer	19
3.1.2	Messmodi	20
3.2	Kalorimetrische Absorptionsspektroskopie	21
3.2.1	Experimenteller Aufbau	22
3.3	Emissionsspektroskopie	25
3.3.1	Experimenteller Aufbau	25
3.4	Phasensprung in Interferogrammen	27
3.5	Aufbau eines Strahlkondensors	32
4	Wachstum und Proben	35
4.1	Selbstorganisiertes Wachstum	35
4.2	Probenübersicht	36

4.2.1	FT-CAS Proben	37
4.2.2	Emittierende Proben	39
	Proben für optische Anregung	39
	Proben für elektrische Anregung	42
5	Intersubniveau-Absorption in Quantenpunkten	45
5.1	Kalorimetrische Absorptionsspektroskopie	45
5.1.1	Experimentelle Ergebnisse	46
	FT-CAS Spektren	47
	Spektren bei verschiedenen Ladungszuständen der QDs	49
5.1.2	Diskussion der FT-CAS Spektren	52
	Intensitätsveränderung durch Pauli-Blockade	53
	Rotverschiebung durch Mehrteilcheneffekte	54
5.1.3	Intersubniveau-Absorptionsquerschnitt	59
5.2	Zusammenfassung	61
6	Intersubniveau-Emission von Quantenpunkten	63
6.1	Zweifarbige Quantenpunktlaser	64
6.2	Optisch gepumpte Emission	67
6.2.1	Experimentelle Ergebnisse	67
	Flacher Wellenleiter	67
	Dickerer Wellenleiter	71
6.2.2	Diskussion der Messungen	77
6.2.3	Diskussion des Sättigungsverhaltens der MIR Kennlinien	78
6.3	Elektrisch gepumpte Emission	82
6.3.1	Experimentelle Ergebnisse	82
	Flacher Wellenleiter	83
	LOC-Struktur	85
6.4	Theoretisches Modell eines Intersubniveau-Quantenpunktlasers	87
6.4.1	Annahmen für das Modell	88
6.4.2	Ergebnisse der Simulation	91
	Nahinfrarote Laserschwelle	91
	Nahinfrarotes Lasen auf dem angeregten Zustand	92
	Mittelinfrarotes Lasen	92
	Mittelinfrarote Emission unterhalb der Laserschwelle	93
7	Zusammenfassung	95
A	Wellenlängenbereiche	99

B Probenprozessierung	101
Literaturverzeichnis	103
Veröffentlichungen	115
Danksagung	119

1 Einführung

Halbleiterbasierte Quantenpunkte [Bim98] sind derzeit ein wichtiges Forschungsgebiet in der Festkörperphysik. Die Schwerpunkte liegen sowohl in der Grundlagenforschung der elektronischen und optischen Eigenschaften der Quantenpunkte, als auch in der Entwicklung von optoelektronischen Bauelementen [Gru02]. Möglich geworden ist dieser Prozess durch die Weiterentwicklung der Herstellungsverfahren von Halbleiterstrukturen, wie der heute weit verbreiteten metallorganischen Gasphasenepitaxie oder der Molekularstrahlepitaxie, mit deren Hilfe sich ein nahezu defektfreies Abscheiden von unterschiedlichen Halbleitermaterialien auf eine Atomlage genau realisieren lässt. Die anfänglich hergestellten Strukturen waren in der Mehrzahl Quantenfilme (eingebettete zweidimensionale dünne Schichten), an denen Grundlagenforschung betrieben wurde und aus welchen optoelektronische Bauelemente wie Halbleiterlaser entwickelt wurden. Theoretische Betrachtungen zeigten schon frühzeitig, dass die Einschränkung der Ladungsträgerbeweglichkeit durch eine weitere Reduzierung auf Nulldimensionalität, wie es bei Quantenpunkten der Fall ist, bei Halbleiterlasern hervorragende Eigenschaften zur Folge haben müsste [Ara82]. 1994 konnte das erste Exemplar eines elektrisch gepumpten InAs/GaAs-Quantenpunktlasers präsentiert werden [Kir94]. Fünf Jahre später erfolgte der experimentelle Nachweis der vorhergesagten Überlegenheit von Quantenpunkten für Laseranwendungen – die Schwellstromdichte war erstmals geringer als die niedrigste eines Quantenfilmlasers [Liu99]. Einem industriellen Siegeszug der Quantenpunktlaser steht damit aus physikalischer Sicht nur noch wenig im Wege [Gru00, Rib02, Bim05a, Bim05b].

Parallel zur Erforschung der nahinfraroten Eigenschaften von niederdimensionalen Halbleiterstrukturen und der Entwicklung von optoelektronischen Bauelementen im Nahinfrarot wird auch intensiv im mittelinfraroten Spektralbereich¹ geforscht. Um ein vollständiges Bild der optoelektronischen Eigenschaften einer Halbleiterstruktur zu erhalten und eine Korrelation zwischen den Wachstumseigenschaften und den elektronischen Eigenschaften herzustellen, müssen neben den Interband-Übergängen von Ladungsträgern auch die Intraband-Übergänge (also Übergänge innerhalb des Leitungsbands oder innerhalb des Valenzbands) erkundet werden. Zusätzlich besteht Bedarf an Bauelementen für den mittelinfraroten

¹Die Benennung der Wellenlängenbereiche der optischen Strahlung wird in Anhang A aufgeführt.

Spektralbereich, so dass an der Entwicklung entsprechender Komponenten gearbeitet wird.

Mittelinfrarote Absorption in Halbleiterquantenfilmen wurde erstmals in [Wes85] nachgewiesen. Kurz darauf konnten die ersten Quantenfilm-Infrarot-Detektoren (QWIP²) realisiert werden [Lev87, Lev93]. Anwendungen für solche Mittelinfrarot-Detektoren bestehen z. B. bei der Gasdetektion oder in Wärmebildkameras. Es vergingen einige Jahre, bis vorgeschlagen wurde, die Quantenfilme in den Bauelementen durch Quantenpunkte als aktives Medium zu ersetzen [Ryz96], um bessere Eigenschaften der Detektoren zu erzielen. Seitdem konnten solche Quantenpunkt-Infrarot-Detektoren (QDIP³) realisiert werden und ihre Entwicklung ist bis heute weit fortgeschritten [Ber97, Pan98, Sti01b, Cha05, Kri05].

In dieser Arbeit werden nichtstrahlende Relaxationsprozesse in InGaAs/GaAs-Quantenpunkten direkt untersucht und interpretiert. Die Übergänge kommen zustande, wenn durch Absorption von mittelinfrarotem Licht in den Nanostrukturen Ladungsträger in einen höheren Zustand angeregt werden, von welchem sie anschließend wieder nichtstrahlend relaxieren. Obwohl diese Art von Übergängen bei der Ladungsträgerrelaxation eine entscheidende Rolle spielt, wurde sie bisher nur indirekt über optische Untersuchungen nachgewiesen [Sch96, Ham99]. Untersuchungen der Absorption von Licht in Quantenpunkten sind mittels ladungsabhängiger Transmissionsspektroskopie schon sowohl im nahinfraroten Spektralbereich für Interband-Übergänge [War97] als auch im Mittelinfrarot für Intersubniveau-Übergänge [Dre94, Sau97a] durchgeführt worden.

Weitaus weniger Ergebnisse konnten bei der direkten Beobachtung von Phononen erzeugenden Intersubniveau-Übergängen in Quantenpunkten erzielt werden. Der Vergleich von Spektren, welche auf nichtstrahlenden Übergängen beruhen, mit solchen, die von optischen Übergängen stammen, kann ein detaillierteres Verständnis der elektronischen Struktur der Quantenpunkte vermitteln. Das relative Verhältnis von strahlenden zu nichtstrahlenden Relaxationspfaden kann so bestimmt werden. Die Erzeugung von Phononen nach einer Interband-Anregung wurde in [Gru95a] mit Hilfe der kalorimetrischen Absorptionsspektroskopie (CAS⁴) nachgewiesen. Phononen erzeugende Relaxation nach Interband-Anregung wurde schon mit der Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie festgestellt [Hei97, Ste96]. Der Nachweis einer durch Intersubniveau-Übergänge verursachten Phononenemission in InAs/GaAs-Quantenpunkten ist in [Haw99] mit einem zeitaufgelösten Experiment

²Von *Quantum Well Infrared Photodetector*.

³Von *Quantum Dot Infrared Photodetector*.

⁴Von *Calorimetric Absorption Spectroscopy*.

erbracht worden – allerdings ohne eine spektrale Auflösung der Übergänge.

In dieser Arbeit werden Experimente vorgestellt, die mittelinfrarote Absorptionsspektren von Intersubniveau-Übergängen in InGaAs/GaAs-Quantenpunkten aufzeichnen, wobei direkt die Phononen erzeugende Relaxation aufgenommen wird. Zusätzlich wird das Intersubniveau-Absorptionsvermögen in Abhängigkeit von der Anzahl der im Quantenpunkt vorhandenen Ladungsträger untersucht. So wird die ladungsabhängige Verschiebung der Intersubniveau-Energien in den Quantenpunkten bestimmt. Diese Experimente werden mit einer neuartigen experimentellen Technik durchgeführt, welche die kalorimetrische Absorptionsspektroskopie [Bim81] mit der Fourier-spektroskopie vereint. Bei der FT-CAS⁵ wird ein Interferogramm der Probenerwärmung, welche durch Phononen hervorgerufen wird, aufgenommen und anschließend in ein Spektrum umgerechnet.

Die mittelinfrarote Emission aus niederdimensionalen Halbleiterstrukturen wurde ebenfalls zunächst von Quantenfilmen geprägt. So wurde schon 1971 ein Quantenkaskadenlaser vorgeschlagen [Kaz71], die Realisierung erfolgte über zwei Jahrzehnte später [Fai94a, Fai94b]. Zusammen mit dem so genannten Quantenfontänenlaser⁶ [GL97] stellen diese auf Quantenfilmen basierenden unipolaren Laser die bis heute einzigen verfügbaren kohärenten, auf GaAs basierenden, mittelinfraroten Lichtquellen dar.

Quantenpunkte sind allerdings ein vielversprechendes System für verbesserte mittelinfrarote optoelektronische Bauelemente. Im Vergleich zu Quantenfilmen erwartet man bei ihnen reduzierte Phononenstreuzeiten zwischen den Zuständen, was auf den *phonon bottleneck effect* zurückzuführen ist [Ben91, Ura01, Hei01]. Die Emission von In(Ga)As-Quantenpunkten wurde schon in [Vor98b, Sau99b, Kri00, Kri01] untersucht. Für die Entwicklung von mittelinfraroten Halbleiterlasern auf Quantenpunktbasis gibt es zwei alternative Ansätze, die beide bisher noch keinen funktionierenden mittelinfraroten Laser hervorgebracht haben: Zum einen wird das Prinzip des unipolaren Quantenkaskadenlasers beibehalten und es wird versucht, die optisch aktiven Quantenfilme durch Quantenpunkte zu ersetzen [Win97, Bot99, Hsu00, Apa01, And03, Ulb03]. Zum anderen gibt es die Idee des bipolaren zweifarbigem Lasers [Sin96, Vor98a, Kas01], bei dem es sich im Wesentlichen um einen modifizierten Interband-Laser handelt, der neben der nahinfraroten Strahlung auch mittelinfrarotes Licht emittiert. Sein Prinzip beruht auf der Notwendigkeit, bei einem Laserübergang die Besetzung des unteren Laserniveaus möglichst gering zu halten, um eine Besetzungsinversion zu ermöglichen.

⁵Die Abkürzung steht für *Fourier-Transform Calorimetric Absorption Spectroscopy*.

⁶Englisch: *quantum fountain laser*.

Dies wird durch Interband-Lasen auf dem Grundzustand erreicht, welches die Besetzung des Grundzustands (der gleichzeitig das untere Niveau des Intersubniveau-Lasers darstellt) unabhängig vom Injektionsstrom auf einen Wert festsetzt.

Im Rahmen dieser Arbeit wird untersucht, inwieweit sich ein derartiger zweifarbiger Laser auf InGaAs/GaAs-Basis realisieren lässt. Dazu werden Experimente an verschiedenen Quantenpunkte enthaltenden Probenstrukturen vorgestellt. Die Untersuchungen stellen wichtige Schritte auf dem Weg zur Entwicklung eines solchen Lasers dar. So wird die mittelinfrarote Emission von Quantenpunkten spektral aufgelöst untersucht und die Abhängigkeit ihrer Intensität von der jeweiligen Pumpleistung bestimmt. Die Experimente werden sowohl mit elektrisch als auch mit optisch gepumpten Proben durchgeführt, die mit verschiedenen Wellenleitern ausgestattet sind. Die experimentellen Ergebnisse werden mit einem Modell eines bipolaren zweifarbigen Halbleiterlasers verglichen. Anhand des Modells, welches auf den Mastergleichungen für Quantenpunktmikrozustände beruht [Gru97b, Gru97c], werden zusätzlich Aussagen bezüglich der generellen Realisierbarkeit eines solchen Lasers gewonnen.

Die vorliegende Arbeit ist in sieben Kapitel gegliedert. Nach dieser Einleitung folgt in Kapitel 2 ein Überblick über die für das Verständnis dieser Arbeit wichtigen Eigenschaften von Quantenpunkten. Kapitel 3 beschreibt die verwendeten experimentellen Techniken sowie Punkte, die für die Auswertung der Messungen von Bedeutung sind. In Kapitel 4 werden, nachdem kurz auf die Herstellung von InGaAs/GaAs-Quantenpunkten eingegangen wird, die in dieser Arbeit untersuchten Probenstrukturen vorgestellt. Kapitel 5 präsentiert dann die Untersuchungen der Intersubniveau-Relaxation von Ladungsträgern in Quantenpunkten mit Hilfe der kalorimetrischen Absorptionsspektroskopie, sowie deren Auswertung und Interpretation. Die Experimente zur Intersubniveau-Emission aus Quantenpunkten werden in Kapitel 6 vorgestellt, ebenso wie deren Interpretation und theoretische Betrachtungen zur Machbarkeit eines zweifarbigen (d. h. im Mittel- und im Nahinfrarot emittierenden) Quantenpunktlasers. Kapitel 7 fasst schließlich die vorliegende Arbeit kurz zusammen.

2 Grundlagen

In diesem Kapitel werden grundlegende elektronische und optische Eigenschaften von Halbleiterquantenpunkten vorgestellt, die für das weitere Verständnis in dieser Arbeit dienlich sind. Zunächst werden allgemeine Eigenschaften wie das Confinement und Einteilchenzustände angesprochen. Anschließend werden die auftretenden Wechselwirkungsenergien diskutiert, wenn mehrere gleichartige Ladungsträger sich zusammen in einem Quantenpunkt befinden. Schließlich werden die verschiedenen Arten von Ladungsträgerübergängen in Quantenpunkten vorgestellt und kurz diskutiert.

2.1 Allgemeine Eigenschaften von Quantenpunkten

2.1.1 Confinement

Wird die Beweglichkeit von Ladungsträgern in Halbleitern in einer oder mehreren Raumrichtungen eingeschränkt, so ändern sich dabei die elektronischen Eigenschaften des Materials. Man unterscheidet, je nach Dimensionalität der Einschränkung,¹ zwischen Volumenmaterial (kein Confinement, 3D-Beweglichkeit), Quantenfilmen (Confinement in einer Richtung, 2D-Beweglichkeit), Quantendrähten (Confinement in zwei Richtungen, 1D-Beweglichkeit) und Quantenpunkten, bei welchen die Ladungsträger in allen drei Raumrichtungen eingeschränkt sind und sich in einer so genannten nulldimensionalen Struktur befinden (Abbildung 2.1).

Von Confinement in einer Raumrichtung spricht man, wenn die Ausbreitung der Ladungsträger auf die Größenordnung der de-Broglie-Wellenlänge

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{1,22 \text{ nm}}{\sqrt{E_{\text{kin}}/\text{eV}}} \quad (2.1)$$

begrenzt ist. Dabei ist h das Plancksche Wirkungsquantum, p der Impuls und E_{kin} die kinetische Energie des Teilchens.

¹Für *Einschränkung* wird auch der aus dem Englischen stammende Ausdruck *Confinement* verwendet.

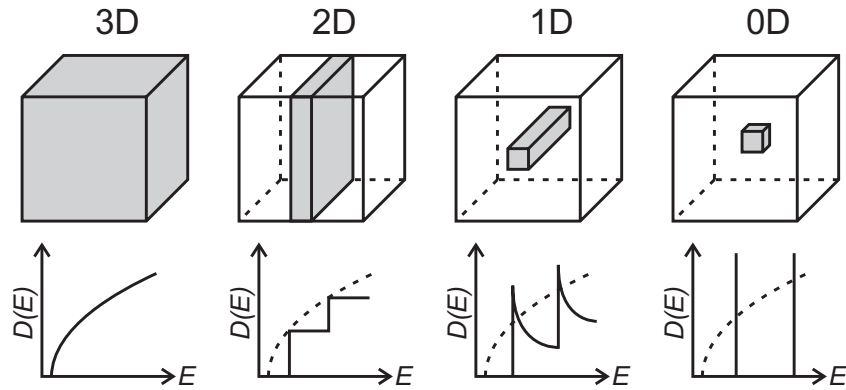


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Einschränkung der Ladungsträger und der sich daraus ergebenden Zustandsdichte $D(E)$ für Volumenmaterial, einen Quantenfilm, einen Quantendraht und einen Quantenpunkt.

InGaAs/GaAs-Quantenpunkte sind ein Beispiel für solch nulldimensionale Strukturen, obwohl sie eine endliche Ausdehnung von wenigen Nanometern besitzen und aus einigen tausend Atomen bestehen. Die Dimensionen eines InGaAs-Quantenpunkts sind allerdings kleiner als die de-Broglie-Wellenlänge der eingeschlossenen Elektronen bzw. Löcher, so dass die Ladungsträger das Confinement nur dann überwinden können, wenn sie unter Aufbringen einer größeren Energiedifferenz den Quantenpunkt zum umgebenden GaAs-Volumenmaterial hin verlassen (siehe Abbildung 2.4).

Sind sowohl Elektronen als auch Löcher in den Quantenpunkten lokalisiert, so spricht man von Typ-I-Quantenpunkten, im Fall der Lokalisierung nur einer Ladungsträgerart von Typ-II-Quantenpunkten. In dieser Arbeit werden ausschließlich Typ-I-Quantenpunkte betrachtet.

Man unterscheidet im Allgemeinen bei Halbleiterquantenpunkten zwischen starkem, intermediärem und schwachem Confinement. Als Vergleichsmaßstab [Kli97] dient der effektive Exzitonen-Bohr-Radius

$$a_B^X = a_B^H \cdot \frac{\varepsilon}{\mu}, \quad (2.2)$$

wobei a_B^H der Bohr-Radius des Wasserstoffatoms, ε die relative Dielektrizitätskonstante des Halbleitermaterials und μ die reduzierte effektive Masse des Exzitons ist. Wenn die räumlichen Abmessungen der Quantenstruktur deutlich kleiner als a_B^X sind, dann spricht man von starkem Confinement, bei deutlich größeren Maßen von schwachem und im Übergangsbereich von intermediärem Confinement. Die Bezeichnungen *stark* und *schwach* beziehen sich auf die Größe der Confinementenergie im Vergleich zur Energie der Coulomb-Wechselwirkung der eingeschlosse-

nen Ladungsträger. Die in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkte besitzen, je nach Raumrichtung, starkes (in Wachstumsrichtung) bzw. intermediäres Confinement (senkrecht zur Wachstumsrichtung).

2.1.2 Zustandsdichte

Das Confinement der Ladungsträger hat einen wesentlichen Einfluss auf die elektronischen Eigenschaften der Nanostrukturen. So verändert sich die Zustandsdichte $D(E)$ entscheidend mit der Erhöhung des Confinements. Ist die Zustandsdichte im Volumenmaterial noch wurzelförmig von der Energie abhängig:

$$D_{3D}(E) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m^*}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot \sqrt{E}, \quad (2.3)$$

so reduziert sie sich bei Verringerung der Dimensionalität (Abbildung 2.1) über einen treppenförmigen Verlauf bei Quantenfilmen und einer $1/\sqrt{E}$ -förmigen Abhängigkeit mit Singularitäten bei Quantendrähten zu einer komplett deltaförmigen Verteilung bei Quantenpunkten:

$$D_{0D}(E) = \frac{1}{L_x L_y L_z} \cdot \sum_{i=0}^n \delta(E - E_i). \quad (2.4)$$

Dabei stellt m^* die effektive Masse der Ladungsträger, \hbar die Planckkonstante und L_x, L_y, L_z die Strukturgröße dar. E_i sind die Energien der diskreten Niveaus im Quantenpunkt.

2.1.3 Einteilchenzustände

Die Einteilchenzustände von selbstorganisierten Halbleiterquantenpunkten werden zum einen von strukturellen Eigenschaften der Quantenpunkte bestimmt, zum anderen haben Verzerrungen durch Gitterfehlanpassung einen erheblichen Einfluss. Zu den strukturellen Eigenschaften zählen Größe, Form und das Mischungsverhältnis. Diese werden von dem eingesetzten Wachstumsverfahren (z. B. Molekularstrahlepitaxie oder metall-organische Gasphasenepitaxie) und den verwendeten Wachstumsparametern geprägt.

Die Größe der Quantenpunkte trägt wesentlich zur Lage der diskreten Energieniveaus der Ladungsträger und dem Subniveau-Abstand bei: große Quantenpunkte besitzen eine kleinere Quantisierungsenergie, eine größere Anzahl von gebundenen Zuständen und niedrigere Subniveau-Abstände – bei kleinen Nanostrukturen trifft

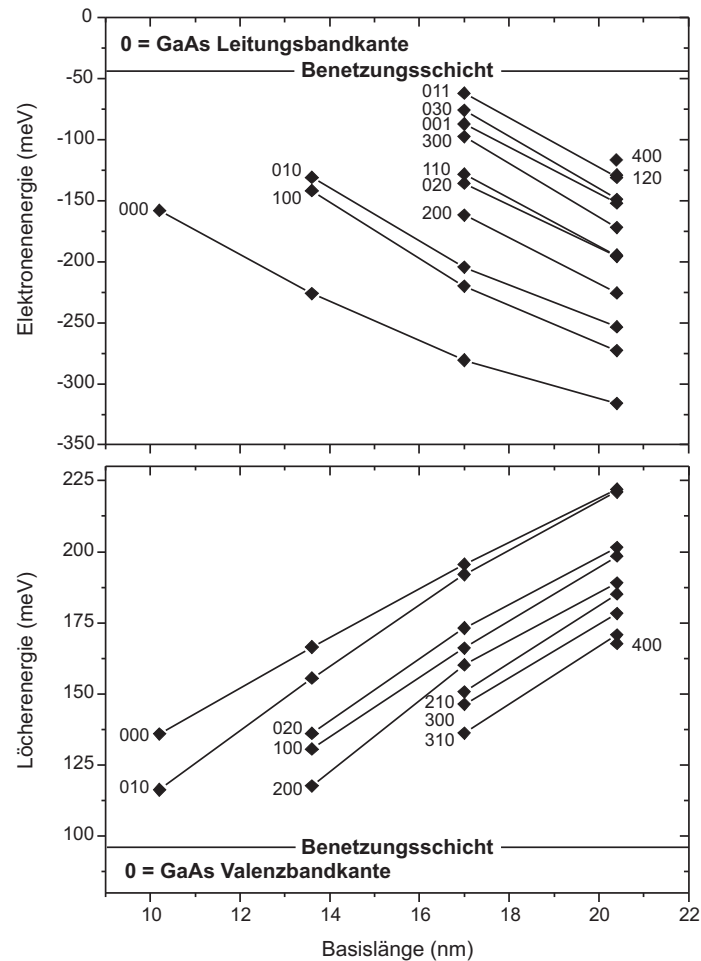


Abbildung 2.2: Berechnete Elektronen- und Löcher-Energien in pyramidenförmigen InAs/GaAs-Quantenpunkten für verschiedene Größen. Aus [Sti01a].

das Gegenteil zu (Abbildung 2.2). Die Form von In(Ga)As/GaAs-Quantenpunkten kann von linsenförmig über pyramidenstumpfförmig bis zu pyramidenförmig ausfallen – dies bestimmt unter anderem die Ladungsträgerdynamik und die Übergangswahrscheinlichkeiten [Hei03]. Bei $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Quantenpunkten spielt nicht nur das durchschnittliche Mischungsverhältnis x im Quantenpunkt eine Rolle, sondern auch lokale Verteilungsinhomogenitäten, wie sie z. B. durch Diffusion der Atome an den Grenzflächen der Strukturen entstehen [She01].

Bei im Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus hergestellten selbstorganisierten Quantenpunkten (Abschnitt 4.1), wie sie hier betrachtet werden, spielen Verzerrungen² ebenfalls eine bedeutende Rolle. Die größere Gitterkonstante von In(Ga)As im

²Im Englischen als *strain* bezeichnet.

Vergleich zu GaAs (bis zu $\sim 7\%$) führt zu einer inhomogenen Verzerrungsverteilung [Bim98]. Abhängig von der Materialkomposition liegt der energetische Einfluss auf das Quantenpunktpotential in der Größenordnung von 300–550 meV und hat somit deutliche Auswirkungen auf die Quantenpunktzustände.

Man unterscheidet drei Arten von Verzerrungen: zum einen gibt es die hydrostatische Verzerrung, die zu einer Komprimierung oder Ausdehnung der Einheitszelle führt und in allen drei Raumrichtungen gleichmäßig wirkt. Bei In(Ga)As/GaAs-Quantenpunkten dominiert die kompressive Verzerrung, die eine Vergrößerung der Bandlücke im Vergleich zu unverspanntem Volumenmaterial bewirkt. Zweitens gibt es die biaxiale Verzerrung, welche einer Streckung der Einheitszelle in einer der drei Raumrichtungen ähnelt. Aus ihr folgt eine Beeinflussung der energetischen Lage der Leicht- und Schwerlochbänder zueinander. Drittens ist die Scherverzerrung zu nennen, welche in polaren Halbleitern (wie InAs und GaAs es sind) für ein piezoelektrisches Potential verantwortlich ist.

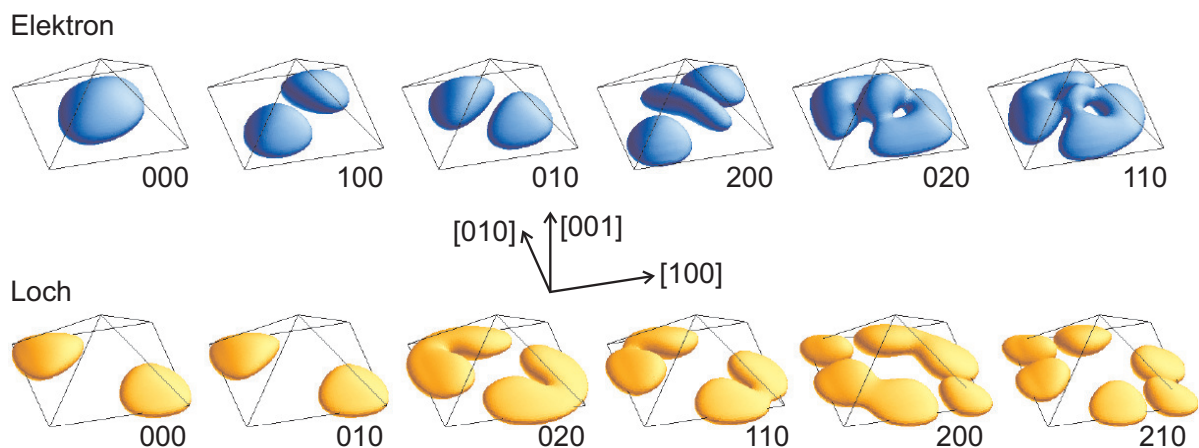


Abbildung 2.3: Wellenfunktionen (Isoflächen für 65% integrierte Aufenthaltswahrscheinlichkeit) der Elektronen- und Lochzustände für einen InAs/GaAs-Quantenpunkt mit pyramidaler Form (Basislänge 20,4 nm), mittels 8-Band $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Theorie berechnet. Die „Quantenzahlen“ beschreiben die Form der Wellenfunktionen graphisch und zählen die Knotenflächen tangential zu (110) , $(1\bar{1}0)$ und (001) . Aus [Sti99].

Die Einteilchenwellenfunktionen lassen sich mit der 8-Band $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Theorie berechnen [Jia98, Sti99, Sti01a]. Dabei werden die elektronischen Quantenpunkteigenschaften ausgehend von den Volumeneigenschaften der beteiligten Materialien, den strukturellen Eigenschaften der Quantenpunkte und der Verzerrungsverteilung [Gru95b] modelliert. Berücksichtigt werden bei dieser Methode das Leitungsband und die drei Valenzbänder (Schwerloch-, Leichtloch- sowie Split-Off-Band) mit ihrer Kopplung untereinander. Unter Einbeziehung des Spins kommen so die acht

Bänder des Modells zustande. Abbildung 2.3 zeigt beispielhaft die in [Sti99] berechneten Wellenfunktionen der untersten Elektronen- und Lochzustände für einen pyramidalen InAs/GaAs-Quantenpunkt. Ebenso wurden die in Abbildung 2.2 dargestellten Energieniveaus für Elektronen und Löcher in verschieden großen Quantenpunkten berechnet.

Alternativ zur 8-Band $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Theorie wird auch die empirische Pseudopotentialtheorie [Kim98, Wan99, Wil99] als leistungsfähige Modellierungsmethode angesehen. Diese geht – im Gegensatz zur Erstgenannten – von den atomaren Eigenschaften der beteiligten Materialien in der zu berechnenden Nanostruktur aus und benötigt deshalb für die Berechnung von größeren Strukturen deutlich leistungsfähigere Rechnersysteme.

Häufig werden jedoch auch vereinfachende Modelle wie effektive Masse-Näherungen, kastenförmige Potentiale oder zweidimensionale harmonische Oszillatoren herangezogen, die in vielen Fällen eine erste Näherung zur Beschreibung der beobachteten optoelektronischen Eigenschaften erlauben. Für eine genaue Modellierung, wie sie z. B. zur Ermittlung von strukturellen Details der Quantenpunkte anhand von spektroskopischen Experimenten herangezogen wird [Hei05], sind diese Modelle aber aufgrund ihrer Vereinfachungen ungeeignet.

2.2 Ladungsträger-Wechselwirkungen im Quantenpunkt

Befindet sich nicht nur ein einzelner, sondern mehrere Ladungsträger in einem Quantenpunkt, so treten diese miteinander in Wechselwirkung. Bei den in Kapitel 5 vorgestellten Experimenten der kalorimetrischen Absorptionsspektroskopie lässt sich der Beladungszustand der Quantenpunkte gezielt von außen verändern. Es können durch diese Technik bis zu mindestens drei Elektronen in einen Quantenpunkt eingebracht werden. Die Coulomb-Wechselwirkung, welche zwischen den Ladungsträgern in Erscheinung tritt und die Übergangsenergien von Intersubniveau-Übergängen verändert, wird im Folgenden kurz betrachtet und das Zustandekommen von Mehrteilchenzustände damit erläutert.

2.2.1 Coulomb-Wechselwirkung

Befinden sich zwei Ladungsträger mit dem gleichen Vorzeichen in einem Quantenpunkt, bewirkt die Coulomb-Wechselwirkung durch statische Abstoßung eine Er-

höhung der Teilchenenergien in der Größenordnung von 10 meV [Fon98, Nag99]. Der Hamiltonoperator der Coulomb-Wechselwirkung zwischen ihnen ist:

$$H_{\text{Cou}} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \cdot \frac{1}{|r_i - r_j|}. \quad (2.5)$$

Die Coulomb-Wechselwirkung kann man zur besseren Anschauung in die direkte Coulomb-Wechselwirkung, die Korrelation und den Austausch zerlegen. Dabei versteht man unter der *direkten Coulomb-Wechselwirkung* die Wechselwirkung der Ladungsträgerdichteverteilung der ungestörten Einteilchenwellenfunktionen von im Quantenpunkt befindlichen Ladungsträgern. Die *Korrelation* beschreibt anschaulich die Anpassung der Wellenfunktionen von den Ladungsträgern an das begrenzte Potential der Quantenpunktstruktur aufgrund der zusätzlichen Ladungsträger und die daraus resultierende Veränderung der Energie der Zustände. Der *Austausch* als Teil der Coulomb-Wechselwirkung berücksichtigt schließlich den Fermionencharakter der beteiligten Ladungsträger, also das Pauli-Prinzip [Guf03].

Natürlich findet auch eine Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern statt, welche die Zustände der Ladungsträger ebenfalls verändert. Auf diese wird in der vorliegenden Arbeit allerdings nicht näher eingegangen (siehe dazu z. B. [Hei00b, Sti01a, Guf03]).

2.2.2 Mehrteilchenzustände

Die gesamte Elektron-Elektron-Wechselwirkungsenergie $E_{ee}(N)$ für N Elektronen in einem Quantenpunkt (ein Fall, der in Kapitel 5 diskutiert wird) setzt sich zusammen aus der abstoßenden direkten Coulomb-Wechselwirkung $E_{\text{Cou}}(N)$ und der anziehenden Austausch- und Korrelationsenergie $E_{\text{AK}}(N)$ [Nag99]:

$$E_{ee}(N) = E_{\text{Cou}}(N) + E_{\text{AK}}(N). \quad (2.6)$$

Im Einteilchenbild beinhaltet $E_{ee}(N)$ also die Summe der Wechselwirkungen zwischen Paaren von Elektronen in verschiedenen Einteilchenzuständen. So ist z. B. die Wechselwirkung $E_{ee}(2)$ zwischen zwei Elektronen, welche den s-artigen Grundzustand in einem Quantenpunkt besetzen, die Coulomb-Energie für $N = 2$ und wird im Folgenden E_{ss} genannt. Da die beiden Elektronen gegensätzliche Spins haben müssen, ist in diesem Fall die Austauschwechselwirkung nicht vorhanden.

Für $N = 3$ besitzt die Mehrteilchengrundzustandskonfiguration zwei Elektronen im unteren s-Zustand und eines im angeregten p_x - oder p_y -Zustand. $E_{ee}(3)$ kann deshalb als

$$E_{ee}(3) = E_{ss} + E_{ps}^A + E_{ps}^P \quad (2.7)$$

geschrieben werden, wobei E_{ps}^A und E_{ps}^P die Wechselwirkungen zwischen den p- und s-Elektronen mit antiparallelen bzw. parallelen Spins bezeichnen. Daraus lässt sich die durchschnittliche p–s-Wechselwirkung $E_{ps} = (E_{ps}^A + E_{ps}^P)/2$ berechnen, wenn man annimmt, dass die Wechselwirkung E_{ss} in erster Näherung nicht von N abhängt. Diese Annahme ist gerechtfertigt in selbstorganisierten Quantenpunkten, weil das starke Confinement-Potential und die Symmetrie des s-Zustands jede Deformation der s-Wellenfunktion verhindern würden. Die durchschnittliche p–s-Wechselwirkung kann man also auch so ausdrücken als:

$$E_{ps} = [E_{ee}(3) - E_{ss}]/2. \quad (2.8)$$

Geht man sinngemäß weiter vor, so erhält man für die durchschnittlichen Wechselwirkungen E_{pp}^P und E_{pp}^A zwischen zwei p-Orbitalen mit parallelen bzw. antiparallelen Spins

$$E_{pp}^P = E_{ee}(4) - E_{ss} - 4E_{ps}, \quad (2.9)$$

$$E_{pp}^A = [E_{ee}(5) - E_{ss} - 6E_{ps} - E_{pp}^P]/2. \quad (2.10)$$

In Abschnitt 5.1.2 werden, ausgehend von diesem Modell, die beobachteten Verschiebungen der Übergangsenergien von Intersubniveau-Übergängen bei unterschiedlichen Beladungen der Quantenpunkte als Folge von Mehrteilcheneffekten erklärt.

2.3 Übergänge von Ladungsträgern

Im Folgenden werden die verschiedenen Übergänge von Ladungsträgern vorgestellt, welche in einem Quantenpunkt auftreten können. Zunächst werden Interband-Übergänge besprochen, dann Intersubniveau-Übergänge und Relaxationsprozesse in den Quantenpunkten. Schließlich wird auf die inhomogene Linienbreite und Absorption durch freie Ladungsträger kurz eingegangen.

2.3.1 Interband-Übergänge

Übergänge zwischen dem Leitungs- und Valenzband bezeichnet man als Interband-Übergänge (siehe auch das Schema in Abbildung 2.4). Ihre Übergangsenergien liegen bei dem in dieser Arbeit betrachteten Materialsystem im Bereich der nahinfraroten Strahlung.

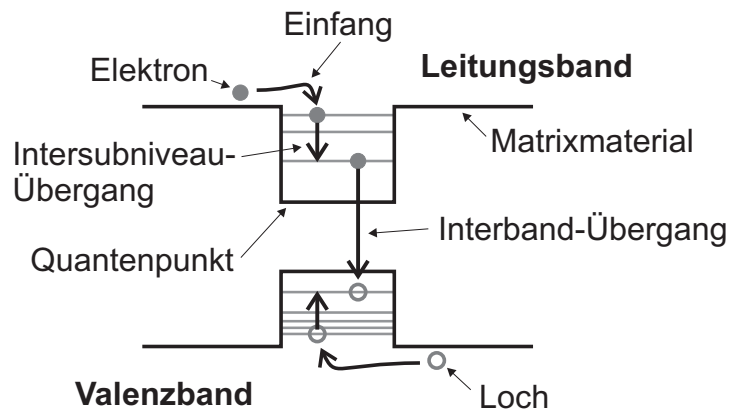


Abbildung 2.4: Schema der Energieniveaus und Ladungsträgerübergänge in einem Quantenpunkt.

Bei der Interband-Emission aus Quantenpunkten, wie sie in Kapitel 6 auch beobachtet wird (z. B. Abbildung 6.3), werden die Ladungsträger durch optische oder elektrische Anregung im Volumenmaterial erzeugt. Die Elektronen und Löcher müssen dann zunächst von den Quantenpunkten eingefangen werden. Dies erfolgt zumeist durch einen schnellen Einfang an der Bandkante des Barrierenmaterials. Aber auch der langsame Einfang von Ladungsträgern aus lokalisierten Zuständen unterhalb der Bandkante durch phononenassistierte Tunnelprozesse ist möglich [Ser95].

Bei geringer Anregungsdichte erfolgt die strahlende Interband-Rekombination in den meisten Halbleiter-Quantenpunktsystemen aus dem Grundzustand. Dies kommt daher, dass die Relaxation, also die Prozesse, welche die Ladungsträger von angeregten Zuständen in den Grundzustand gelangen lassen, deutlich schneller abläuft als der strahlende Zerfall eines angeregten Zustands. Die strahlende Rekombination aus angeregten Zuständen lässt sich erst beobachten, wenn aufgrund von hohen Anregungsdichten der Grundzustand im zeitlichen Mittel gefüllt ist, d. h., wenn mehr Ladungsträger eingefangen werden als rekombinieren können. Strahlende Rekombination aus dem angeregten Zustand kann – aber muss nicht – z. B. in Quantenpunktlasern bei hohen Anregungsleistungen auftreten [Rib02].

Die Lebensdauern von strahlenden Interband-Übergängen für selbstorganisierte In(Ga)As/GaAs-Quantenpunkte variieren deutlich und liegen im Bereich von 100 ps bis zu ~ 2 ns [Hei02].

2.3.2 Intersubniveau-Übergänge

Intersubniveau-Übergänge in Quantenpunkten stellen Übergänge zwischen den gebundenen diskreten Energieniveaus im Quantenpunkt innerhalb des Leitungsbands oder innerhalb des Valenzbands dar. Im Fall der Relaxation (also bei Übergängen von angeregten Zuständen zu Zuständen mit niedrigerer Energie) können sie strahlend (unter Emission eines mittelinfraroten Photons) ablaufen oder nichtstrahlend unter Aussendung von Phononen (d. h. Gitterschwingungen).

In Kapitel 5 werden Ladungsträger, die durch Dotierung schon in den Quantenpunkten vorhanden sind, durch Absorption von mittelinfrarotem Licht resonant in höhere Zustände angeregt. Anschließend wird der nichtstrahlende Anteil der ablaufenden Relaxationsprozesse (also die bei der Relaxation erzeugten Phononen) mit der verwendeten Messtechnik FT-CAS (Abschnitt 3.2) direkt nachgewiesen.

Emission von strahlenden Intersubniveau-Übergängen wird in Kapitel 6 beobachtet. Da die Lebensdauern der strahlenden Übergänge mit $\sim 10 \mu\text{s}$ [Sau99b] um mehrere Größenordnungen über denen der nichtstrahlenden Relaxationen liegen, bedeutet ihre Beobachtung eine besondere experimentelle Herausforderung.

Relaxationsmechanismen

Die nichtstrahlenden Relaxationen von Ladungsträgern erfolgen in Volumenhalbleitern durch die Emission von Phononen, wobei die Erzeugung longitudinal-optischer (LO-) Phononen ein effizienter Weg ist, in kurzer Zeit viel Energie abzugeben. Erste theoretische Betrachtungen zum Ablauf dieses Prozesses in Quantenpunkten durch [Ben91] ergaben, dass dieser Prozess nur dann ablaufen kann, wenn der Abstand der an einer Relaxation beteiligten diskreten Energieniveaus einem ganzen Vielfachen der LO-Phononenenergie entspricht. Ist dies nicht der Fall, dann müsste der Theorie zufolge durch den Wegfall der Hauptrelaxationsart die Relaxationseffizienz stark eingeschränkt werden. Diesen Effekt bezeichnet man als *phonon bottleneck effect*.

Interessanterweise wird über höchst unterschiedliche Ergebnisse berichtet, wenn versucht wurde, seine Existenz experimentell zu bestätigen. So wurde in [Hei97] keine Reduzierung der Relaxationsgeschwindigkeit beobachtet, [Ura01, Hei01] konnten hingegen die Existenz des *phonon bottleneck effects* bestätigen. In [Hei02] wurde festgestellt, dass das Auftreten von deutlich verlangsamten Relaxationsprozessen von der Form der untersuchten Quantenpunkte abhängt. So konnten in flachen pyramidenstumpf-förmigen InGaAs-Quantenpunkten erheblich langsamere Relaxationsgeschwindigkeiten beobachtet werden, als dies in pyramidalen Quan-

tenpunkten der Fall ist.

Neben der Ladungsträgerrelaxation durch Erzeugung von LO-Phononen existieren noch weitere Relaxationsmechanismen wie z. B. Augerprozesse [Boc92, Fer00] oder Multiphonon-Relaxation [Ino92], die ebenfalls die Lebensdauern der angeregten Zustände verkürzen können, wenn die LO-Phonon-Relaxation ausfällt.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass die nichtstrahlenden Intersubniveau-Relaxationszeiten von Ladungsträgern in Quantenpunkten höchst unterschiedlich sein können und von ~ 6 ps bis hin zu $\sim 8,5$ ns betragen können [Sau99a, Hei02].

2.3.3 Inhomogene Verbreiterung

Die einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkte in einer realen Probe unterscheiden sich geringfügig untereinander in ihrer Größe, Form und Materialzusammensetzung [Eis99, Fry00]. Da durch diese Fluktuationen der strukturellen Eigenschaften die diskreten Energieniveaus der einzelnen Quantenpunkte ebenfalls variieren, verbreitern sich auch Emissions- und Absorptionslinien, wenn diese durch Beobachtung eines Quantenpunktensembles zustande kommen. Bei Interband-Photolumineszenzexperimenten beträgt diese *inhomogene Verbreiterung* der Grundzustandsübergangsenergie typischerweise zwischen 20 meV und 100 meV (die Abhängigkeit der Übergangsenergie von der Größe eines einzelnen pyramidalen Quantenpunkts kann beispielhaft aus Abbildung 2.2 abgelesen werden). Die Halbwertsbreite der beobachteten Peaks hängt dabei wesentlich von den verwendeten Wachstumsbedingungen und der Wachstumsmethode der Probe ab, welche die Homogenität der strukturellen Eigenschaften der Quantenpunkte beeinflussen.

Für Emissionslinien einzelner Quantenpunkte könnte man aufgrund ihrer deltaförmigen Zustandsdichte unendlich kleine Halbwertsbreiten erwarten. Die endliche Lebensdauer der Ladungsträger im Quantenpunkt bewirkt allerdings aufgrund der Energie-Zeit-Unschärfe $\Delta E_{\text{hom}} \propto 1/\tau$ eine *homogene* Linienbreite im Bereich von wenigen μeV bei tiefen Temperaturen [Bay02]. Die Lebensdauer τ wird bestimmt durch die strahlende Zerfallszeit, bei welcher der emittierende Ladungsträger seine Energie ändert, und durch phasenzerstörende Prozesse, die hauptsächlich durch die Ankopplung von Phononen verursacht werden [Rud90, Bor01a]. Letzteres bewirkt, dass sich die homogene Linienbreite bei Raumtemperatur durch die größere Anzahl von Phononen bis in den meV-Bereich erhöht [Bor01b, Mat01].

Die inhomogene Verbreiterung zeigt sich auch bei der Beobachtung von Intersubniveau-Übergängen in selbstorganisierten Quantenpunkten. Allerdings sind hier die Halbwertsbreiten im Allgemeinen kleiner als bei den Interband-Übergängen, weil

die Energieabstände zwischen zwei gebundenen Zuständen im Quantenpunkt nur wenig von dessen strukturellen Eigenschaften abhängen (siehe für die Größenabhängigkeit Abbildung 2.2). Typische inhomogene Verbreiterungen von Übergängen zwischen gebundenen Zuständen im selben Band liegen im Bereich von 10–20 meV [Sau99b]. Für Übergänge zwischen gebundenen Quantenpunktzuständen und der Benetzungsschicht oder dem Kontinuum des Volumenmaterials nehmen die inhomogenen Verbreiterungen mittlere Größen um die 50 meV an [Sau98a]. Auch diese etwa halb so großen Werte im Vergleich zu Interband-Übergängen erscheinen anhand der Größenabhängigkeit der Energieniveaus in Abbildung 2.2 einleuchtend.

2.3.4 Absorption durch freie Ladungsträger

Das zeitabhängige elektrische Feld von langwelliger Strahlung beschleunigt freie Ladungsträger im Halbleiter, wenn dieser von der Strahlung durchleuchtet wird. Die Schwingungen der Ladungsträger werden ihrerseits auf das Kristallgitter durch Phononenstreuung übertragen. Somit gibt die Lichtwelle Energie an den Halbleiter ab und wird deshalb abgeschwächt. Der zugehörige Absorptionskoeffizient α_{fL} für die Absorption durch freie Ladungsträger ergibt sich zu [Gru05]:

$$\alpha_{\text{fL}} = \frac{ne^2}{\varepsilon_0 c n_r m^* \tau} \cdot \frac{1}{\omega^2}, \quad (\omega\tau \gg 1). \quad (2.11)$$

Hier ist n die Ladungsträgerdichte, e die Elementarladung, ε_0 die Dielektrizitätskonstante, c die Lichtgeschwindigkeit, n_r der Brechungsindex des Halbleiters, m^* die effektive Masse der Ladungsträger, τ die Impulsrelaxationszeit und ω die Kreisfrequenz der Strahlung.

Die Absorption durch freie Ladungsträger nimmt also für große Wellenlängen quadratisch zu. Dies macht sie zu einem potentiellen Problem bei mittel- und ferninfraroter Spektroskopie an Halbleitern. Denn wenn aufgrund von Dotierung oder thermischer Anregung Ladungsträger in der Probe vorhanden sind, machen sie die Proben intransparent für langwelliges Licht und verhindern somit das eigentliche Ziel der spektroskopischen Messungen.

Insbesondere bei mittelinfraroten Absorptions- und Emissionsexperimenten, wie sie in dieser Arbeit vorgestellt werden, ist darauf zu achten, die Nanostrukturen auf undotierten Substraten zu wachsen und in der Probe benötigte Dotierungen so niedrig und von der räumlichen Ausdehnung her so klein wie möglich zu halten.

3 Experimentelle Techniken

In diesem Kapitel werden die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Messtechniken vorgestellt. Für die in den Kapiteln 5 und 6 besprochenen Absorptions- und Emissionsexperimente im mittelinfraroten Wellenlängenbereich wurde als zentrales Messinstrument ein Fourierspektrometer (oder FTIR¹-Spektrometer) zur wellenlängenabhängigen Messung der Intensität des Lichts verwendet. Sein grundlegendes Funktionsschema sowie die verwendeten Versuchsaufbauten werden im Folgenden beschrieben.

3.1 Arbeitsweise eines Fourierspektrometers

Für die Infrarot-Spektroskopie eignen sich Fourierspektrometer besonders gut [Gri86, Kuz98]. Ihr Hauptbestandteil ist neben einer Lichtquelle, einem Detektor sowie einem Datenverarbeitungssystem das Michelson-Interferometer.

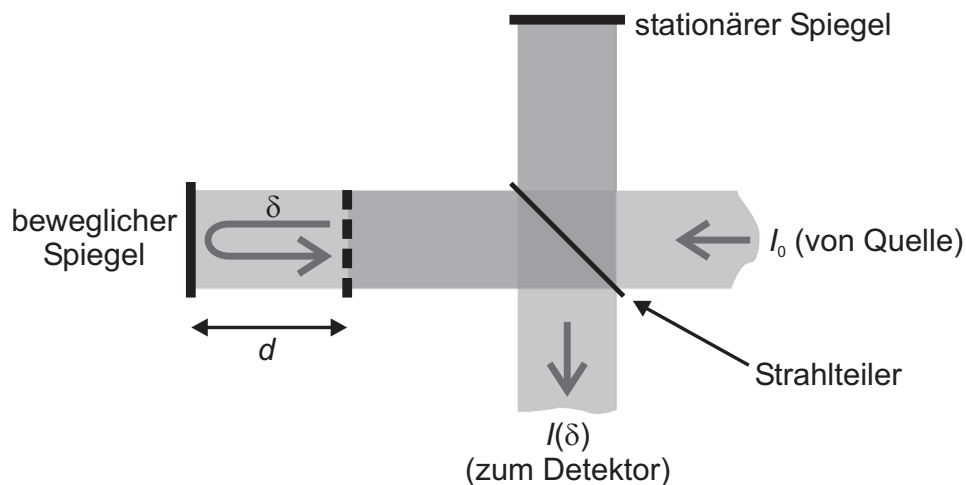


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Strahlengangs in einem Michelson-Interferometer.

Das Michelson-Interferometer ist aus einem beweglichen sowie einem stationären Spiegel und dem Strahlteiler aufgebaut (Abbildung 3.1). Das einfallende

¹Von Fourier-Transform-Infra-Red.

Licht der Intensität I_0 wird vom Strahlteiler in zwei möglichst gleich intensive Strahlen aufgeteilt, die sich dann jeweils zu den beiden Spiegeln und wieder zurück ausbreiten, um schließlich am Strahlteiler miteinander in Interferenz zu treten.

Die Intensität $I(\delta)$ der auf den Detektor abgebildeten Strahlung wird in Abhängigkeit von der Position $d = \delta/2$ des in Strahlrichtung mechanisch bewegten Spiegels aufgezeichnet (das *Interferogramm*). Mit Hilfe eines Computerprogramms wird dann die Fourier-Transformation des Interferogramms berechnet und man erhält schließlich das Messspektrum $S(\bar{\nu})$, welches die gemessene Intensität in Abhängigkeit der Wellenzahl $\bar{\nu}$ wiedergibt.

Das grundlegend unterschiedliche Arbeitsprinzip eines FTIR-Spektrometers – es verwendet keine dispersiven Elemente für die Zerlegung des Lichts – bringt im Gegensatz zu den (in der sichtbaren und nahinfraroten Optik) weit verbreiteten Prismen- oder Gittermonochromatoren einige Vorteile mit sich:

- Der erste Vorteil ist der höhere Lichtdurchsatz (auch *Jacquinot-* oder *Durchsatz-Vorteil* genannt), der daher kommt, dass aufgrund der zweidimensionalen kreisrunden Blenden (im Gegensatz zu eindimensionalen Spaltblenden bei der dispersiven Technik) bei gleicher Auflösung höhere Lichtintensitäten zum Detektor gelangen und damit eine höhere Empfindlichkeit ermöglichen [Jac48].
- Zweitens verbessert sich das Signal-Rauschverhältnis zusätzlich dadurch, dass jeder Messpunkt des Interferogramms sämtliche spektralen Informationen aller Wellenzahlen enthält, während bei der dispersiven Methode pro Messpunkt nur ein sehr kleiner Wellenzahlbereich ausgewertet wird. Dadurch trägt stets das gesamte Spektrum zum Signal bei, wodurch sich das Rauschen des Detektors auf sämtliche Spektralinkremente verteilt und das Signal-Rauschverhältnis erheblich verbessert wird (*Fellgett-* oder *Multiplex-Vorteil*) [Fel51].
- Außerdem besitzt das Fourierspektrometer durch den eingebauten frequenzstabilen HeNe-Referenzlaser eine sehr hohe Wellenzahlgenauigkeit und muss – im Gegensatz zu dispersiven Geräten – nicht extern nachkalibriert werden (*Connes-Vorteil*).
- Ein weiterer Vorteil, der besonders im Fern- bis Mittelinfrarot gegenüber Gittermonochromatoren ins Gewicht fällt, ist die einfachere Abschirmung von (unerwünschten) Signalen höherer Gitterordnungen.

3.1.1 Michelson-Interferometer

Um das Prinzip eines Michelson-Interferometers besser verstehen zu können, wird zunächst der idealisierte Fall betrachtet, bei dem eine monochromatische Lichtquelle einen unendlich schmalen kollimierten Strahl aussendet. Wenn die Wellenlänge dieser Strahlung λ ist, so ist ihre Wellenzahl $\bar{\nu}$ definiert als

$$\bar{\nu} = \frac{1}{\lambda}. \quad (3.1)$$

Wird angenommen, dass der Strahlteiler kein Licht absorbiert und die bei ihm durchgelassene Intensität gleich der Reflektierten ist, dann findet bei gleicher optischer Länge der beiden Äste eine maximale positive Interferenz statt. Bewegt sich aber der verschiebbare Spiegel um die Strecke d , so wird die optische Weglänge des einen Teilstrahls um $\delta = 2d$ modifiziert. Deshalb ändert sich die Intensität der beiden interferierenden Strahlen, da eine Phasendifferenz von $2\pi\bar{\nu}\delta$ auftritt. Es ergibt sich für die Intensität am Detektor für monochromatische Strahlung mit der Wellenzahl $\bar{\nu}$ in Abhängigkeit der Stellung des beweglichen Spiegels

$$I(\delta) = \frac{I_0}{2} [1 + \cos(2\pi\bar{\nu}\delta)]. \quad (3.2)$$

Das Interferogramm $I(\delta)$ einer einfarbigen Lichtquelle der Wellenlänge λ besteht also aus einer Sinusfunktion mit der Periode $\lambda = 1/\bar{\nu}$.

Wenn der einfallende Strahl aber – wie bei den meisten Messungen – nicht monochromatisch ist, sondern eine spektrale Funktion $S(\bar{\nu})$ besitzt, dann beträgt die Intensität am Detektor

$$I(\delta) = \frac{1}{2} \int S(\bar{\nu}) [1 + \cos(2\pi\bar{\nu}\delta)] d\bar{\nu}. \quad (3.3)$$

Vernachlässigt man den konstanten Teil des Signals, der unabhängig von der Spiegelposition ist, so lässt sich das Spektrum $S(\bar{\nu})$ der Quelle durch eine inverse Kosinus-Transformation aus einem gemessenen Interferogramm $I(\delta)$ zurückberechnen:

$$S(\bar{\nu}) = \int I(\delta) \cos(2\pi\bar{\nu}\delta) d\delta. \quad (3.4)$$

Es wird betont, dass diese Betrachtung für einen idealisierten Fall gilt und dass in der Wirklichkeit weitere Effekte, wie z. B. das Abtasten der Messwerte an diskreten Punkten, eine endliche Auflösung der Messung oder eine nicht perfekte Kompensation des Strahlteilers, dazu führen, dass das Interferogramm Asymmetrien aufweist und eine detailliertere mathematische Betrachtung nötig macht. Deshalb wird zur

Berechnung des Spektrums aus einem Interferogramm in der Praxis die Anwendung einer Apodisationsfunktion, die Durchführung einer Phasenkorrektur sowie das Verwenden der Fourier-Transformation notwendig. Für den speziellen Fall, dass in einem Spektrum sowohl Emission als auch Absorption (bei verschiedenen Wellenzahlen) auftritt, wird eine besondere Phasenkorrektur angewendet, welche in Abschnitt 3.4 erläutert wird.

Die bestenfalls erzielbare Auflösung $\Delta\bar{\nu}$ des gemessenen Spektrums hängt von der maximalen Weglängendifferenz δ_{\max} der beiden Teilstrahlen ab [Tho99]:

$$\Delta\bar{\nu} = \frac{1}{2\delta_{\max}}. \quad (3.5)$$

Je weiter sich also der Spiegel von der maximalen Interferenz (dem *Centerburst*) entfernt, desto höher ist erzielbare Auflösung.

3.1.2 Messmodi

Man kann Fourierspektrometer prinzipiell in zwei Messmodi betreiben: *Rapid-Scan* oder *Step-Scan*. Im *Rapid-Scan-Modus* fährt der bewegliche Spiegel zwischen den beiden Endpunkten mit konstanter Geschwindigkeit hin und her. Ein Interferogramm mit all seinen Messpunkten kann mit einem einzigen schnell ausgeführten Scan aufgenommen werden – die dafür benötigte Zeit hängt von der Spiegelgeschwindigkeit und der Auflösung, also der zurückgelegten Wegstrecke des Spiegels, ab. Aufgrund der relativ kurzen Messzeit für jeden einzelnen Interferogrammpunkt ergibt sich allerdings ein verhältnismäßig großes Rauschen in der Messung. Um das Signal-Rauschverhältnis zu verbessern wird deshalb meistens über mehrere hintereinander aufgenommene Interferogramme gemittelt. Bei der Aufnahme von Standardspektren wird häufig der *Rapid-Scan-Modus* verwendet, weil, zumindest theoretisch, schon nach dem ersten Scan ein (teilweise verrauschtes) Spektrum angezeigt werden kann und weil sich niederfrequentes Rauschen (wie z. B. Fluktuationen der Quelle, des Detektors oder der Elektronik) durch Mittelung mehrerer aufeinander folgenden Messungen gut unterdrücken lässt.

Im *Step-Scan-Modus* wird der bewegliche Spiegel an jedem Messpunkt angehalten, bis die entsprechenden Messwerte vom Detektor erfasst wurden. Anschließend wird er zur nächsten Position verschoben, wo dann erneut gemessen wird, usw. Dieser Modus stellt hohe Anforderungen an die mechanische Qualität des Spektrometers, da der Spiegel auf einen Bruchteil der kürzesten zu messenden Wellenlänge exakt platziert werden muss. Der Hauptvorteil des *Step-Scan-Modus* ist, dass sich an jedem Interferogrammpunkt auch modulierte Messungen durchführen lassen,

ohne dass die Gefahr besteht, dass die Modulation des Signals mit der Bewegung des Spiegels interferiert. So kann man z. B. bei Emissionsmessungen die Anregung der Probe an jedem Messpunkt mittels eines Choppers modulieren und einen Lock-In-Verstärker einsetzen, der aus dieser Modulation das Messsignal herausfiltert und so einerseits ein extrem hohes Signal-Rauschverhältnis erzeugt sowie andererseits die (störende) Messung der thermischen Hintergrundstrahlung im Mittelinfrarot effektiv unterdrückt.

3.2 Kalorimetrische Absorptionsspektroskopie

Die kalorimetrische Absorptionsspektroskopie ist eine experimentelle Messmethode, mit der sich nichtstrahlende Übergänge in Proben detektieren lassen. Dabei misst man in der Probe die Erwärmung, welche durch die Absorption von eingestrahlttem Licht entsteht. So lassen sich Rückschlüsse auf die in der Probe ablaufenden Prozesse ziehen.

Bei den untersuchten Proben wird ein Teil der Anregungsstrahlung in den Quantenpunkten absorbiert. Dort regen die eingestrahnten Lichtquanten Ladungsträger in einen energetisch höheren Zustand an. Wenn die angeregten Ladungsträger wieder relaxieren, können sowohl Photonen (optische Übergänge) als auch Phononen (nichtstrahlende Übergänge) entstehen. Da Intersubniveau-Übergänge in Quantenpunkten zu einem großen Teil nichtstrahlend ablaufen [Ben91, Ino92], bietet sich die kalorimetrische Absorptionsspektroskopie als experimentelle Methode zur direkten Untersuchung der nichtstrahlenden Übergänge an.

Obwohl die Wechselwirkung zwischen Licht und Halbleiterquantenpunkten in der Vergangenheit schon intensiv studiert wurde [Bim98, Zre00, Gru02], fehlte lange Zeit ein wichtiger experimenteller Schritt: der direkte Nachweis der emittierten Phononen bei nichtstrahlender Intersubniveau-Relaxation. Bisher waren die entstehenden Phononen nur indirekt durch optische Untersuchungen nachgewiesen worden [Sch96, Hei97, Ham99].

In der vorliegenden Arbeit werden mittelinfrarote Absorptionsspektren von Intersubniveau-Übergängen in Quantenpunkten gemessen, wobei die entstandenen Phononen direkt detektiert werden. Zusätzlich finden Untersuchungen der Abhängigkeit der Intersubniveau-Absorption von der Anzahl der in den Quantenpunkten befindlichen Ladungsträger statt. Die Untersuchungen werden durch eine neuartige Technik ermöglicht, die zwei Messtechniken – die kalorimetrische Absorptionsspektroskopie [Bim81] und die Fourierspektroskopie – miteinander kombiniert. Verglichen mit Transmissionsmessungen mit einem externen Detektor ist die FT-

CAS potentiell sensitiver, weil sie das durch die Quantenpunkte generierte Signal direkt misst. In [Juh88] wurde gezeigt, dass die kalorimetrische Absorptionsspektroskopie eine sehr sensitive Methode bei niedriger Temperatur ist.

3.2.1 Experimenteller Aufbau

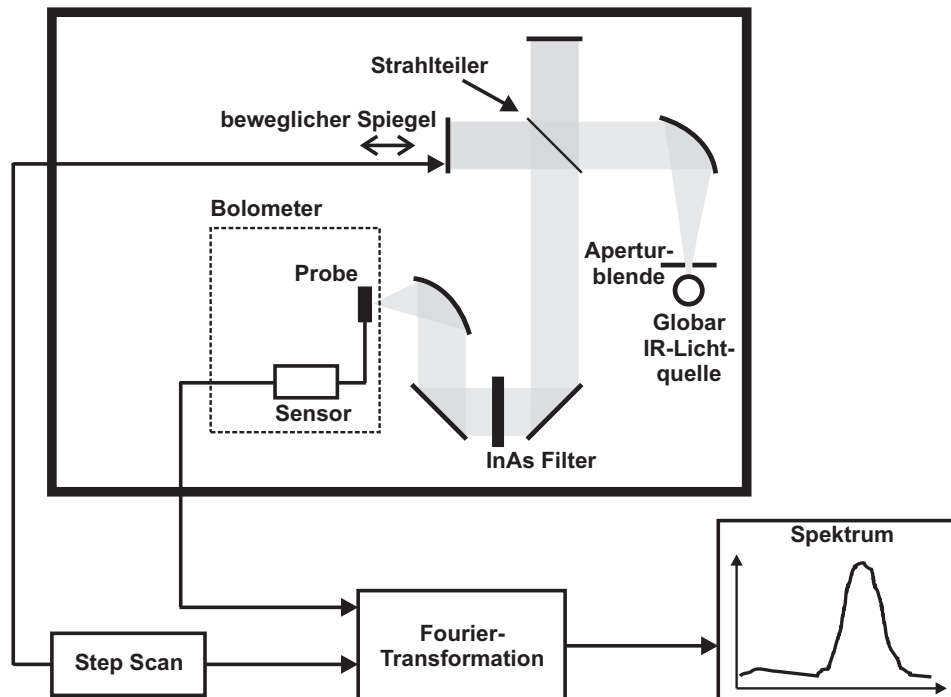


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur Analyse von mittelinfraroter Absorption mittels FT-CAS. Das Bolometer mit der eingebauten Quantenpunktprobe ist in Abbildung 3.3 genauer dargestellt.

Der experimentelle Aufbau für die durchgeführten FT-CAS-Experimente ist in Abbildung 3.2 schematisch dargestellt. Die Messungen finden in einem BRUKER IFS 66v/S Fourierspektrometer statt. Das innere des Geräts lässt sich evakuieren (Restdruck im Gerät ~ 10 mbar), um die (besonders im mittelinfraroten Spektralbereich auftretende) störende Absorption durch die Umgebungsluft zu unterdrücken. Als Lichtquelle für die infrarote Anregung der Proben dient der eingebaute Globar-Stab. Seine Emission wird nach dem Durchgang durch eine variable Aperturblende mit Spiegeln durch das Michelson-Interferometer (Ge/KBr-Strahlteiler) geleitet und schließlich mit einem Strahlkondensor (siehe Abschnitt 3.5) auf die Probe fokussiert. Ein InAs-Filter kann in den Strahlengang eingefügt werden, um Wellenlängen, die kürzer als seine Bandlücke von 330 meV sind, auszublenden, wenn

die entsprechende Messung bei längeren Wellenlängen durchgeführt wird. So lässt sich die thermische Belastung der Probe reduzieren und damit die Messgenauigkeit erhöhen.

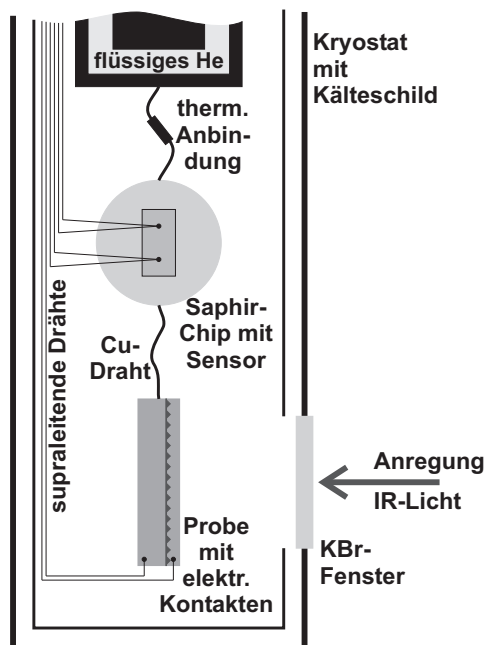


Abbildung 3.3: Schematischer Aufbau des Bolometers im Kaltfinger des Kryostaten für die kalorimetrische Absorptionsspektroskopie an Quantenpunkten.

Der Aufbau des Bolometers im Kryostat² ist in Abbildung 3.3 gezeigt. Die Probe befindet sich hinter einem KBr-Fenster und ist an einem Kupferdraht befestigt. Dieser Draht ist gleichzeitig die einzige thermische Verbindung von der Probe weg zu einem Saphirchip, auf dem ein Cernox-Temperatursensor CX-1070 befestigt ist. Um an die Probe, welche eine Diodenstruktur besitzt (siehe Abschnitt 4.2.1), eine Spannung anlegen zu können, ist sie mit dünnen, (bei den Messtemperaturen) supraleitenden Niob-Titan-Drähten kontaktiert. Durch die Supraleitung wird erreicht, dass die Drähte keine Wärme übertragen.

Wird die Probe mit mittelinfrarotem Licht angeregt, so erwärmt sie sich durch Absorption. Über den Kupferdraht wird die Wärme auf den Saphirchip übertragen und somit auch dessen Temperatur erhöht. Der auf dem Saphirchip angebrachte Temperatursensor ermöglicht die Messung dieser Erwärmung. Die Erfassung der Temperatur erfolgt über eine Vierpunktmessung des elektrischen Widerstands des Sensors. Dabei ist der Sensor ebenfalls mit supraleitenden Drähten kontaktiert, um Wärmeleitung auszuschließen. Der Sensor wird mit einem Lake Shore 340 Tempe-

²Ein Janis ST-100 Durchflusskryostat für flüssiges Helium, bei dem der Probenraum evakuiert ist.

raturkontroller ausgelesen. Die Messgenauigkeit der Temperatur liegt nominell bei 0,1 mK.

Die thermische Anbindung des ansonsten isolierten Systems Probe/Saphirchip an den Kaltfinger des Kryostaten erfolgt über dünne Schrauben, deren Spitzen den Saphirchip berühren. Zusätzlich ist noch etwas (schwach thermisch leitender) Tieftemperaturkleber (GE-Varnish 7031) auf der Schraubenspitze angebracht, um die Kontaktfläche zu erhöhen. So stellt sich nach Erreichen des thermischen Gleichgewichts für eine Kaltfingertemperatur des Kryostaten von 4,25 K eine Sensortemperatur von typischerweise ~ 7 K ein.

Die eigentliche Messung eines Interferogramms erfolgt dann im Step-Scan-Modus des Fourierspektrometers. Für jeden Interferogrammpunkt wird zunächst eine Zeit von ~ 10 s abgewartet [Goe00], bis sich ein thermisches Gleichgewicht eingestellt hat. Dann erfolgt die Auslesung der Temperatur aus dem Temperaturkontroller (das Ergebnis wird in das Spektrometer eingespeist), und der Spektrometerspiegel fährt den nächsten Messpunkt an. Schließlich wird mit Hilfe der Spektrometersoftware aus dem Interferogramm das Messspektrum berechnet.

Die Sensitivität des Aufbaus lässt sich abschätzen, indem verschiedene elektrische Heizleistungen über die Verkabelung des Temperatursensors auf den Saphirchip aufgebracht werden. So liegt für eine Kaltfingertemperatur von 4,25 K die ermittelte Sensitivität bei $\sim 100 \Omega/\mu\text{W}$. Für höhere Temperaturen nimmt dieser Wert ab, so dass damit das Signal-Rauschverhältnis sinkt. Bei der Aufnahme eines Interferogramms beträgt die typische von der Probe absorbierte Leistung etwa $3,5 \mu\text{W}$.

Durch eine Abschätzung der minimalen detektierbaren Leistung kann man die Detektivität des Aufbaus charakterisieren. So beträgt die äquivalente Rauschleistung NEP³ für einen Schwarzkörper

$$\text{NEP} = \frac{P}{\sqrt{\Delta B}} \approx 2 \times 10^{-10} \frac{\text{W}}{\sqrt{\text{Hz}}}, \quad (3.6)$$

wobei $P \approx 1$ nW die geschätzte, von einer Schwarzkörperoberfläche absorbierte Leistung der Global-Quelle bei einem Signal-Rauschverhältnis von $S/N = 1$ und einer elektrischen Detektionsbandbreite von $\Delta B = 20$ Hz ist. Dies führt zu einer Detektivität D^* von

$$D^* = \frac{\sqrt{A}}{\text{NEP}} \approx 5 \times 10^8 \frac{\text{cm} \sqrt{\text{Hz}}}{\text{W}}, \quad (3.7)$$

wobei D^* über dem gesamten Anregungsbereich einer Schwarzkörperquelle bei

³Von Noise Equivalent Power.

$T = 580\text{ K}$ gemittelt wird und $A \approx 1\text{ mm}^2$ die effektiv beleuchtete Probenfläche darstellt.

3.3 Emissionsspektroskopie

Experimente zur Detektion der mittelinfraroten Emission von Quantenpunkten sind aus zwei Gründen von besonderem Interesse. Zum einen, weil sich, komplementär zur oben vorgestellten FT-CAS-Technik, die Übergangsenergien und Relaxationspfade der strahlenden Inter-subniveau-Übergänge erforschen lassen. Zum anderen leisten sie einen Beitrag zur Entwicklung von mittelinfraroten Lichtquellen, wie sie in der optischen Infrarot-Spektroskopie und der Gasdetektion zum Beispiel gebraucht werden.

Bei den hier vorgestellten Experimenten werden die Quantenpunkte in den Proben entweder elektrisch oder optisch angeregt, so dass ihre Emission im Mittelinfrarot untersucht werden kann. Die nahinfraroten Emissionsspektren, welche zur zusätzlichen Charakterisierung der Proben notwendig sind, können (nach dem Wechsel zu einem dafür geeigneten Strahlteiler im Spektrometer) ebenfalls aufgenommen werden.

3.3.1 Experimenteller Aufbau

Abbildung 3.4 zeigt den experimentellen Aufbau, wie er sowohl für die optisch als auch für die elektrisch gepumpten Untersuchungen verwendet wird. Die Quantenpunktprobe befindet sich in einem kleinen Dewargefäß, welches mit flüssigem Stickstoff gefüllt wird und die Probe somit auf eine Temperatur von annähernd 77 K kühlt. Der evakuierte Probenraum des Dewargefäßes besitzt zwei Fenster. Durch das nach vorne zeigende Fenster aus KBr (oder Diamant, je nach dem Spektralbereich der Messung) verlässt die Probenemission das Gefäß. Durch das zweite, seitlich angeordnete Glasfenster kann die Probenoberfläche mit einem Laserstrahl optisch angeregt werden. Dazu wird entweder ein gepulster Argon-Ionenlaser oder ein diodengepumpter Festkörperlaser im Pulsbetrieb (Coherent VECTOR 532-1000-20) verwendet. Beide Laser regen die Probe im grünen Spektralbereich an, also deutlich oberhalb der GaAs-Bandkante. Ein Schema für die optische Anregung einer Probe über ihre Oberfläche und die entstehende Kantenemission ist in Abbildung 3.5 gezeigt.

Alternativ kann die Probe elektrisch angeregt werden. Dazu steht eine Konstantstromquelle (Rohde&Schwarz NGRU 35) zur Verfügung, deren Ausgangsstrom mit

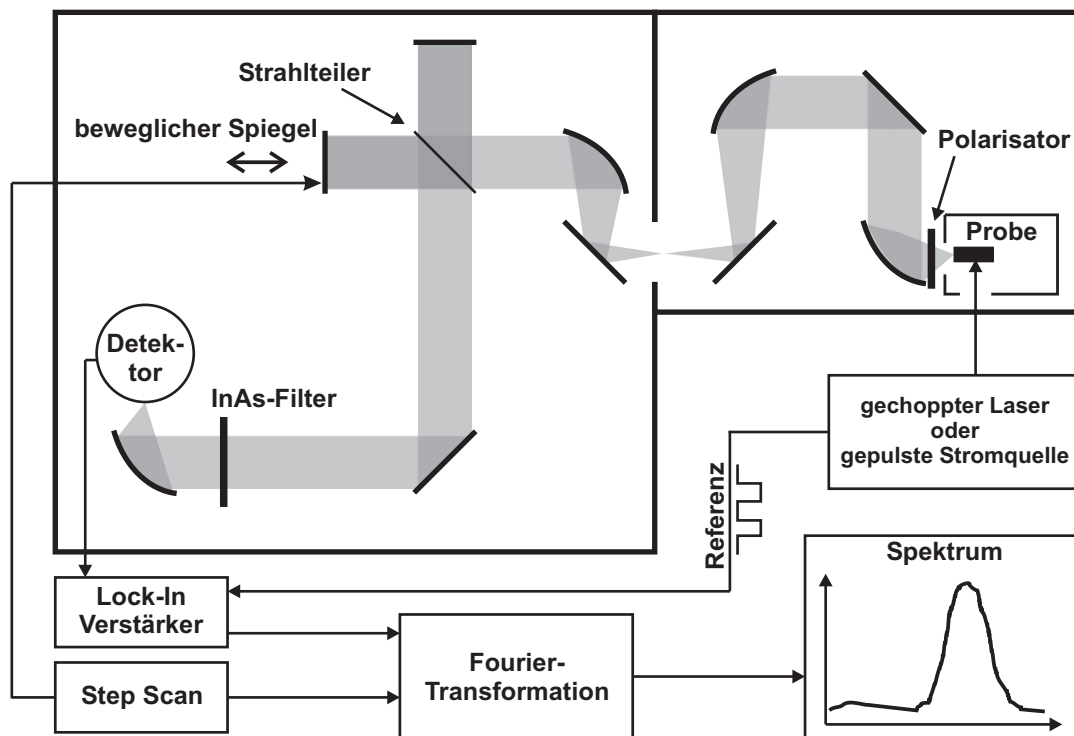


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung eines typischen experimentellen Aufbaus zur Analyse von mittelinfraroter Emission mit Hilfe eines FTIR Spektrometers.

einem Leistungstransistor moduliert wird. Der Transistor wird von einem Signalgenerator angesteuert. So sind Messungen im quasi-cw-Betrieb möglich (typische Parameter sind Ströme bis über 1 A und Wiederholungsraten von 20 kHz bei einem Tastverhältnis von 1:1).

Das Dewargefäß mit der Probe ist in einer eigens angefertigten Erweiterungskammer zum Spektrometer eingebaut. Diese Stahlkammer ist direkt an das BRUKER-Gerät angeflanscht und wird gleichzeitig mit dem Spektrometer vor den Messungen evakuiert, um störende Absorptionslinien der Luft zu unterdrücken. Direkt vor dem Austrittsfenster des Dewargefäßes lässt sich ein Polarisationsfilter anbringen, so dass polarisationsabhängige Messungen durchgeführt werden können. Der im Mittelinfrarot verwendete Polarisationsfilter besteht aus einem dünnen Aluminiumgitter, welches auf KRS-5 Trägermaterial aufgedampft ist. Weil das von der Probe ausgehende Licht mit möglichst großer Apertur aufgefangen und in das Spektrometer geleitet werden soll, findet mit einer Spiegeloptik eine Anpassung der Apertur an die Eintrittsapertur des verwendeten BRUKER IFS 66v/S Fourierspektrometers statt.

In der (ansonsten leeren) Probenkammer der Spektrometers kann ein InAs-Filter

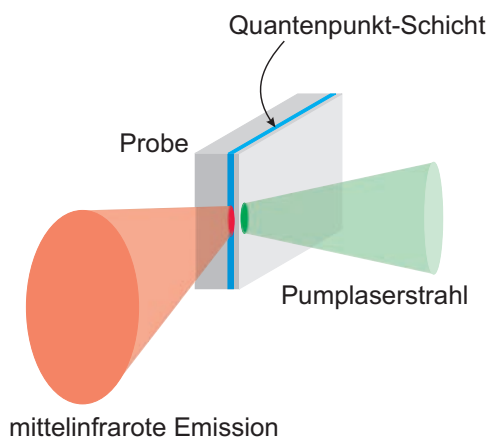


Abbildung 3.5: Schematische Ansicht der Kantenemission einer Probe unter optischer Anregung auf die Oberfläche.

platziert werden, um nahinfrarote Emission der Probe herauszufiltern. Für die Detektion der Strahlung werden zwei verschiedene Detektoren verwendet: entweder ein MCT⁴-Detektor oder ein Silizium-Bolometer. Der MCT-Detektor wird bei der Temperatur von flüssigem Stickstoff betrieben und ist empfindlich für Strahlung vom sichtbaren Bereich bis hinunter zu 53 meV. Für Messungen mit noch längeren Wellenlängen steht ein Silizium-Bolometer⁵ zur Verfügung, welches mit flüssigem Helium gekühlt wird.

Bei den im Step-Scan-Modus durchgeführten Messungen wird das Detektorsignal von einem externen Lock-In-Verstärker⁶ verstärkt. Das Ausgangssignal des Lock-In-Verstärkers wird dann wieder in einen Eingang des Fourierspektrometers geleitet, um dort die Messwerte zu erfassen und das zum Interferogramm gehörende Spektrum zu berechnen.

Allerdings erfolgt in einigen Fällen die Berechnung der Fourier-Transformation auch mittels eines eigenen Mathematica-Programms – wie im folgenden Abschnitt beschrieben.

3.4 Phasensprung in Interferogrammen

Besonders bei Experimenten zur Detektion von mittelinfraroter Emission aus Halbleiterproben kann es vorkommen, dass die Probe in einem Spektralbereich emittiert

⁴Von *Mercury Cadmium Telluride* (HgCdTe).

⁵Der Messbereich des BRUKER-Bolometers liegt zwischen 50 cm^{-1} und 700 cm^{-1} .

⁶Stanford Research Systems SR830.

und in einem anderen absorbiert. Die Emission stammt in diesem Fall von strahlend in niedrigere Zustände relaxierenden Ladungsträgern, die durch das optische Pumpen erzeugt werden. Absorption kann von schon relaxierten Ladungsträgern herrühren, welche sich im Grundzustand befinden und die mittelinfrarote Hintergrundstrahlung absorbieren, wobei sie in einen angeregten Zustand angehoben werden (siehe Abbildung 6.12). Das gemessene Lock-In-Signal ist dann positiv für die Emission, während die Absorption negative Signale erzeugt.

Der Übergang von Emission zu Absorption (oder umgekehrt) in einem Spektrum erzeugt einen Phasensprung von π am Nulldurchgang des spektralen Signals [Mer65]. Dieser Phasensprung macht bei der Berechnung des Spektrums aus dem Interferogramm eine besondere Vorgehensweise notwendig. Denn die gebräuchlichen Algorithmen zur Spektrenberechnung enthalten eine Phasenkorrektur, welche Fluktuationen der Phase im Phasenspektrum herauskorrigieren, also auch die Phasensprünge von π . Somit würde man bei einer Standard-Phasenkorrektur (z. B. jener nach Mertz [Cha82], wie sie von der BRUKER-Steuersoftware zum Gerät verwendet wird) nur den Betrag des tatsächlichen Spektrums erhalten und somit fälschlicherweise z. B. einen Absorptionspeak als Emissionspeak darstellen.

Es wird im Folgenden gezeigt, wie die Phasenkorrektur angepasst werden muss, um das gewünschte Spektrum zu erhalten. Dazu werden zunächst die in Abschnitt 3.1.1 vorgestellten Betrachtungen ein wenig erweitert.

In der Praxis ist ein Interferogramm meist nicht vollständig symmetrisch zu $\delta = 0$, so dass das Spektrum mit einer Kosinus-Transformation nicht genau wiederhergestellt werden kann. Die Asymmetrie kommt z. B. daher, dass die Messpunkte des Interferogramms nicht exakt $\delta = 0$ einschließen, sondern ein klein wenig dazu verschoben sind, der Strahlteiler nicht vollständig kompensiert ist, und dass die signalverarbeitende Elektronik frequenzabhängige Verzögerungen hat. All dies führt zu einer zusätzlichen, wellenlängenabhängigen Wegdifferenz $\epsilon(\bar{\nu})$, welche auch als Phasenwinkel

$$\phi(\bar{\nu}) = 2\pi\bar{\nu}\epsilon(\bar{\nu}) \quad (3.8)$$

ausgedrückt werden kann, so dass Gleichung (3.3) zu

$$I(\delta) = \frac{1}{2} \int S(\bar{\nu}) \left[1 + \cos(2\pi\bar{\nu}\delta + \phi(\bar{\nu})) \right] d\bar{\nu} \quad (3.9)$$

erweitert wird.

Um die gesamten spektralen Informationen zu erhalten ist nun eine vollständige (komplexe) Fourier-Transformation notwendig. Das sich ergebende Spektrum ist

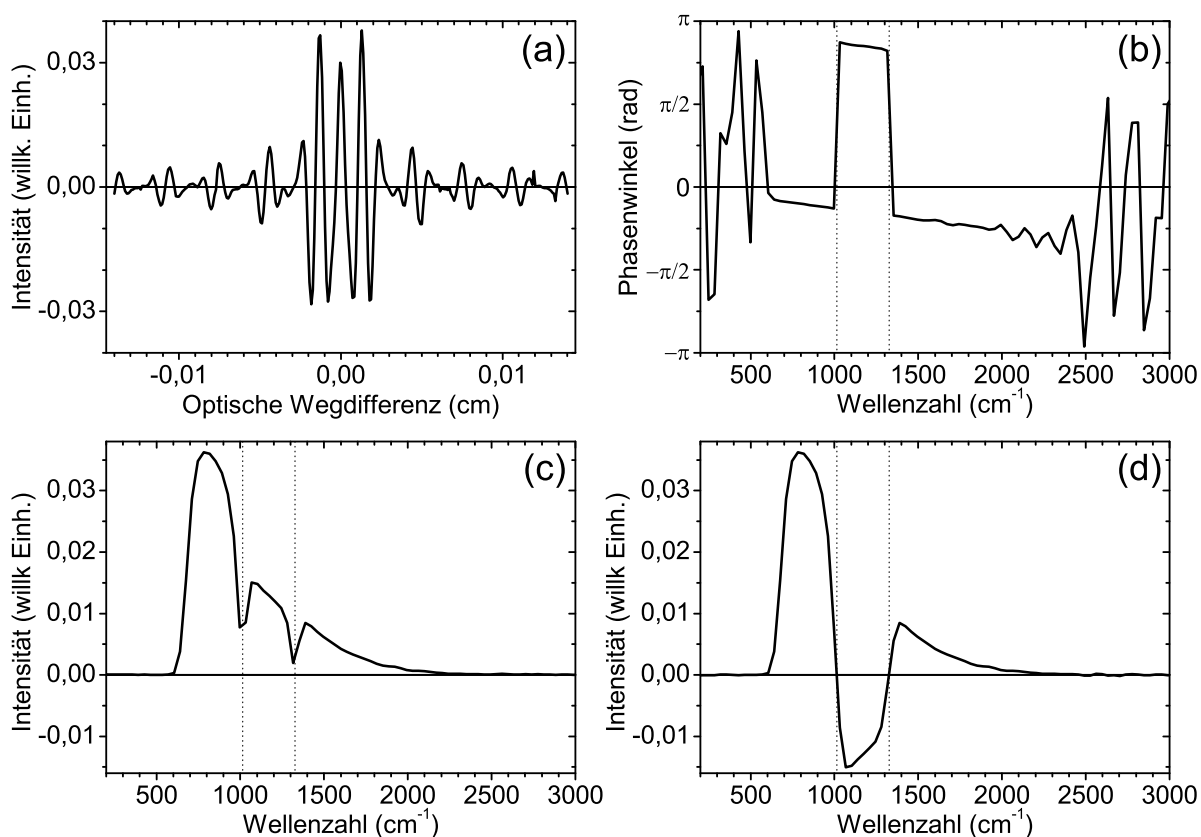


Abbildung 3.6: Beispiel für ein Spektrum, welches sowohl Emission als auch Absorption enthält. (a) Interferogramm der (für das Beispiel simulierten) Messung (Auflösung 35 cm^{-1}). (b) Aus dem Interferogramm berechnetes Phasenspektrum $\phi(\bar{\nu})$. (c) Absolutwert des vom Interferogramm berechneten Spektrums (die Absorption wird hier falsch als Emission dargestellt). (d) Realteil des vom Interferogramm berechneten Spektrums, wobei zuvor eine geeignete Phasenkorrektur durchgeführt wurde und dadurch die Absorption und Emission korrekt aufgelöst werden (der Imaginärteil des Spektrums ist Null). Positive Intensitäten bedeuten Emission, negative Absorption. Ein Phasensprung um π im Phasenspektrum kennzeichnet einen Übergang von Emission zu Absorption (oder umgekehrt) im Spektrum.

die komplexe Größe $\Xi(\bar{\nu})$, welche durch

$$\Xi(\bar{\nu}) = \int I(\delta) \exp(-2\pi i \bar{\nu} \delta) d\delta = S(\bar{\nu}) e^{i\phi(\bar{\nu})} \quad (3.10)$$

bestimmt wird.

Das reale Messspektrum berechnet sich durch

$$S(\bar{\nu}) = \Xi(\bar{\nu}) e^{-i\phi(\bar{\nu})}, \quad (3.11)$$

wobei

$$\phi(\bar{\nu}) = \arctan \frac{\operatorname{Im}[\mathfrak{S}(\bar{\nu})]}{\operatorname{Re}[\mathfrak{S}(\bar{\nu})]} \quad (3.12)$$

als *Phasenspektrum* bezeichnet wird. Um das Rauschen zu reduzieren (indem man es teilweise in der komplexen Ebene verbleiben lässt), wird $\phi(\bar{\nu})$ nach Mertz von einem Spektrum mit niedriger Auflösung berechnet (für dessen Berechnung man nur den zentralen Teil des Interferogramms nutzt).

Abbildung 3.6 zeigt ein simuliertes Beispiel eines Spektrums, bei welchem sowohl Emission als auch Absorption auftreten. In Abbildung 3.6(a) ist das zugrunde liegende Interferogramm gezeigt. Abbildung 3.6(b) zeigt das Phasenspektrum $\phi(\bar{\nu})$, welches nach Gleichung 3.12 auf den Bereich $[-\pi, \pi]$ abbildet wird (die Vorzeichen werden also beim Ziehen des Arkustangens berücksichtigt). Wenn man davon ausgehend die Phasenkorrektur durchführt, erhält man ein Spektrum [Abbildung 3.6(c)], welches fälschlicherweise die Absorption als Emission darstellt. Dies ist verständlich, da jeder Punkt des komplexen Spektrums $\mathfrak{S}(\bar{\nu})$ durch die vollständige Phasenkorrektur in die positive, reelle Ebene gedreht wird. Will man das *richtige* Spektrum erhalten [Abbildung 3.6(d)], so müssen Phasensprünge von π erhalten bleiben, die einen Vorzeichenwechsel im Spektrum bewirken.

Um das korrekte Spektrum bei einer solchen Messung zu berechnen, wird ein eigener Algorithmus verwendet, bei dem die Phasenkorrektur nur im Bereich $[-\pi/2, \pi/2]$ erfolgt. Dieser beinhaltet, dass beim Ziehen des Arkustangens das Vorzeichen nicht berücksichtigt wird (so wie es z. B. meistens bei Taschenrechnern der Fall ist). Häufig ist die wellenlängenabhängige Wegdifferenz $\epsilon(\bar{\nu})$ allerdings nicht so ideal klein wie im Phasenspektrum des Beispiels [Abbildung 3.6(b)], sondern $\epsilon(\bar{\nu})$ ist so groß, dass die Bereichsgrenzen von $[-\pi/2, \pi/2]$ überschritten werden und die Darstellung des Phasenwinkels eine sägezahnartige Struktur annimmt, die durch den Überlauf des Phasenwinkels von $\pi/2$ nach $-\pi/2$ (oder umgekehrt) hervorgerufen wird. Damit diese Überläufe des Phasenwinkels nicht zu (falschen, weil physikalisch nicht existierenden) Vorzeichenwechseln im Spektrum führen, muss das komplexe Spektrum $\mathfrak{S}(\bar{\nu})$ durch hinzuaddieren eines vom Benutzer manuell gewählten Korrekturterms $\theta(\bar{\nu})$ so gedreht werden, dass sein Phasenspektrum $\phi_\theta(\bar{\nu})$ möglichst entlang der Abszissenachse verläuft und damit kein sägezahnartiges Verhalten mehr aufweist:

$$\mathfrak{S}_\theta(\bar{\nu}) = S(\bar{\nu}) e^{i\phi(\bar{\nu})\theta(\bar{\nu})} = S(\bar{\nu}) e^{i\phi_\theta(\bar{\nu})}. \quad (3.13)$$

Abbildung 3.7 stellt den Ablauf einer derartigen Phasenkorrektur dar. Es wurde für dieses Beispiel das gleiche simulierte Ergebnisspektrum wie in Abbildung 3.6

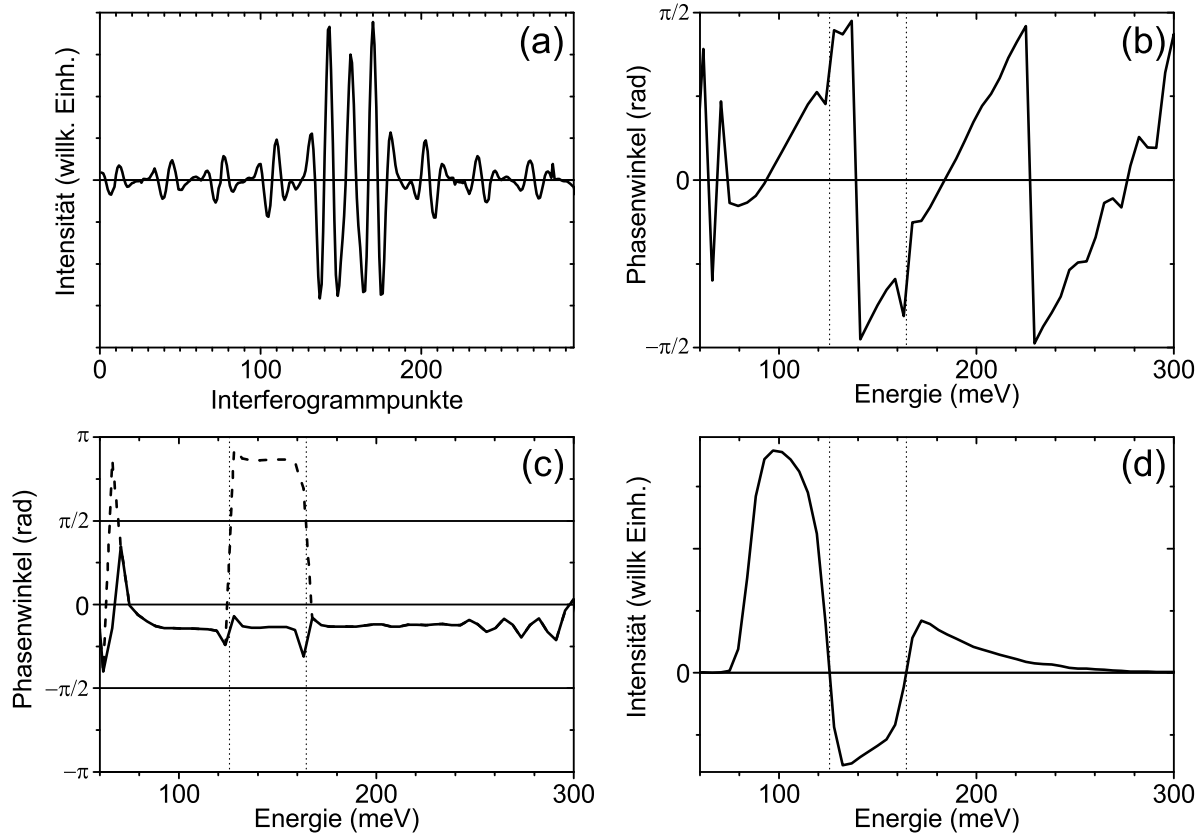


Abbildung 3.7: Ablauf der Phasenkorrektur eines Spektrums, welches sowohl Emission als auch Absorption beinhaltet. (a) Interferogramm der (für das Beispiel simulierte) Messung. (b) Aus dem Interferogramm berechnetes Phasenspektrum $\phi(\bar{\nu})$ (dargestellt im Bereich $[-\pi/2, \pi/2]$). Es sind deutlich Überläufe des Phasenwinkels von $\pi/2$ nach $-\pi/2$ zu erkennen. (c) Phasenspektrum, nachdem eine vom Benutzer gewählte Korrekturphase $\theta(\bar{\nu})$ hinzuaddiert wurde, so dass das Resultat $\phi_\theta(\bar{\nu})$ um die Nulllinie herum verläuft. Die durchgezogene Linie zeigt die Darstellung im Bereich $[-\pi/2, \pi/2]$, die gestrichelte im Bereich $[-\pi, \pi]$, wo der Phasensprung um π beim Übergang von Emission zu Absorption erhalten ist. (d) Fertig berechnetes Emissionsspektrum, wobei eine Phasenkorrektur mit der $[-\pi/2, \pi/2]$ -Phase $\phi_\theta(\bar{\nu})$ aus (c) durchgeführt wurde. Positive Intensitäten bedeuten Emission, negative Absorption.

zugrunde gelegt, jedoch ist $\epsilon(\bar{\nu})$ nun größer, weshalb das Interferogramm [Abbildung 3.7(a)] nicht mehr mittig erscheint – dies entspricht mehr den Zuständen bei einer realen Messung. Der Phasenwinkel $\phi(\bar{\nu})$ weist in der Darstellung $[-\pi/2, \pi/2]$ nun ein sägezahnartiges Verhalten auf [Abbildung 3.7(b)]. Durch manuelle Auswahl eines Korrekturwinkels $\theta(\bar{\nu}) = \theta_0 + \theta_1 \cdot \bar{\nu}$ lässt sich die Phase so drehen, dass sie wieder nahezu an der Abszissenachse verläuft [Abbildung 3.7(c)] und somit keine unerwünschten Phasenüberläufe mehr auftreten. Mit Hilfe dieser Phasen-

funktion $\phi_\theta(\bar{\nu})$ wird dann entsprechend Gleichung 3.13 das korrekte Spektrum $S(\bar{\nu})$ berechnet [Abbildung 3.7(d)].

Es muss noch erwähnt werden, dass diese manuelle Phasenkorrektur nicht ganz eindeutig ist, weil ein an der Abszissenachse gespiegeltes Spektrum ebenfalls ein mögliches Ergebnis dieses Prozesses sein kann. Um das Vorzeichen des erhaltenen Spektrums zu bestimmen, muss man das Vorzeichen des Integrals über das Spektrum mit dem integralen Messwert am Lock-In-Verstärker (also einem Messwert weit entfernt vom Centerburst) vergleichen. Die beiden Vorzeichen müssen gleich sein – entsprechend ist also eventuell das Vorzeichen des Ergebnisspektrums zu invertieren.

Für den beschriebenen Arbeitsablauf zur Phasenkorrektur unter Beibehaltung des Vorzeichens wurde ein kleines Programm in Mathematica erstellt, welches dem Benutzer eine graphische Hilfestellung leistet bei der Auswahl der geeigneten Korrekturfunktion $\theta(\bar{\nu})$ und welches auch das Ergebnisspektrum berechnet.

3.5 Aufbau eines Strahlkondensors

Bei der kalorimetrischen Absorptionsspektroskopie (Abschnitt 3.2) ist es von Vorteil, wenn man eine große Intensität der anregenden mittelinfraroten Strahlung auf die meist kleine Probe abbilden kann, weil man so möglichst große Messsignale erzeugt. Da die zur Verfügung stehende Intensität des im Spektrometer eingebauten Global-Stabs nicht besonders hoch ist und nicht ohne weiteres erhöht werden kann, bleibt als Optimierungsmöglichkeit lediglich, bei möglichst großer Aperturblende des Spektrometers soviel Licht wie möglich auf die Probe abzubilden. In der Standardkonfiguration bildet die Optik des BRUKER IFS 66v/S die Aperturblende mit 1,17-facher Vergrößerung im Zentrum der Probenkammer ab. Die Probengröße beträgt aber meistens nur wenige Quadratmillimeter, so dass ein großer Teil des Lichts bei größeren Aperturblenden (möglich sind Durchmesser bis zu 12 mm) die Probe gar nicht erreicht, sondern an ihr vorbeigeht.

Deshalb war es notwendig, eine fokussierende Spiegeloptik (Linsen kommen wegen des geforderten Wellenlängenbereichs nicht in Frage) zu entwerfen und zu bauen, welche möglichst viel Licht auf eine kleine Probe abbildet. Dabei waren jedoch mehrere Zusatzbedingungen einzuhalten:

- Die Optik soll nicht nur das Licht auf die Probe fokussieren (wie es für FT-CAS- oder Photostrom-Experimente ausreicht), sondern auch die Probe auf den Detektor des Spektrometers abbilden, damit die Optik sich ebenfalls für Transmissionsexperimente verwenden lässt.

- Die Optik muss den vorhanden Platz in der Probenkammer ($25 \times 25 \text{ cm}^2$) optimal ausnutzen und so viel Raum übrig lassen, dass sich die Probe entweder in einen Stickstoff-Dewar einbauen lässt, der ebenfalls in der Probenkammer unterzubringen ist, oder in einen He-Kryostaten, der von oben in die Probenkammer hineinreicht und für dessen Halterung eine Einbaumöglichkeit zur Verfügung stehen muss.
- Die Verkleinerung des Fokus durch die Optik soll möglichst stark sein. Außerdem soll die Apertur möglichst groß sein.
- Die verwendeten Spiegel sollen Standardmaßen entsprechen, so dass keine teuren Sonderanfertigungen notwendig sind.

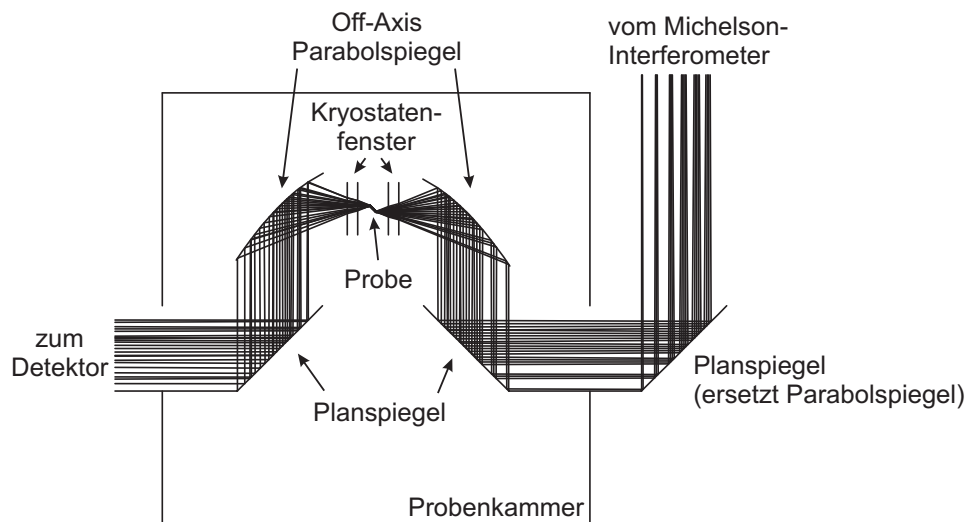


Abbildung 3.8: Berechneter Strahlengang im Strahlkondensator.

Um während der Planungsphase verschiedene Realisierungsmöglichkeiten der Spiegeloptik besser beurteilen zu können, wurde in Mathematica ein Programm geschrieben, welches zweidimensional (in Höhe der Strahlachse) den Strahlverlauf simulieren kann. So konnten einfache Vergleiche der Effizienzen verschiedener Anordnungen des Strahlkondensators gezogen werden. Abbildung 3.8 zeigt das Ergebnis der Simulation für die letztendlich gewählte Anordnung. Dabei wird der vor der Probenkammer gelegene originale Parabolspiegel (90° , Brennweite 180 mm) durch einen Planspiegel ersetzt, welcher einen Parallelstrahl in die Probenkammer hineinleitet. Dort ist der aus vier Spiegeln zusammengesetzte Strahlkondensator mit zwei Spiegeln vor der Probe und zwei dahinter untergebracht. Die beiden um die Probe herum platzierten 90° -Parabolspiegel besitzen einen Abstand Strahlachse–Brennpunkt von 50,8 mm. Somit lässt sich mit Hilfe dieses Strahlkondensators der

Aperturblendendurchmesser mit einem Faktor 3,0 verkleinert auf die Probe abbilden, was einen erheblichen Gewinn an Intensität ($\times 12,6$) gegenüber der ursprünglichen Konfiguration bringt.

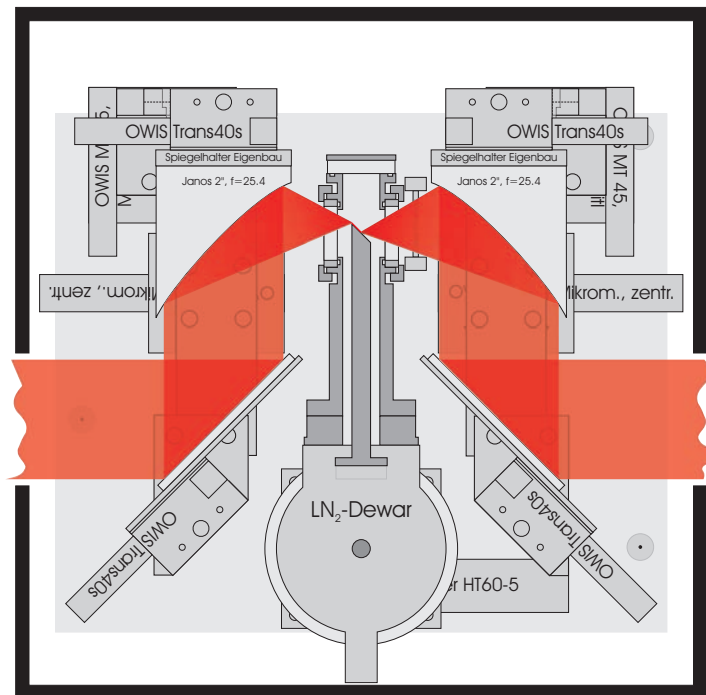


Abbildung 3.9: Schematische Darstellung des Strahlengangs im Strahlkondensator mit seinen Bauelementen und dem Stickstoff-Dewar mit verlängertem Kaltfinger zur Probenhalterung.

Eine Skizze des in dieser Form gebauten Strahlkondensators mit allen Verschiebe- und Kipptischen ist in Abbildung 3.9 dargestellt. Dort ist auch der ebenfalls konstruierte verlängerte Kaltfinger für die Probenhalterung bei mit dem Strahlkondensator möglichen Transmissionsmessungen im Stickstoff-Dewar zu sehen.

4 Wachstum und Proben

Die in dieser Arbeit vorgestellten Proben stammen aus zwei unterschiedlichen Arbeitsgruppen und wurden auch mit unterschiedlichen Wachstumsverfahren hergestellt. Die an der Technischen Universität Berlin hergestellten Proben wurden mittels der metall-organischen Gasphasenepitaxie (MOCVD¹) an einer AIX200 Anlage gezüchtet. Jene Proben vom Ioffe-Institut in St. Petersburg sind mit der Molekularstrahlepitaxie (MBE²) gewachsen worden.

Im folgenden Abschnitt wird zunächst das selbstorganisierte Wachstum kurz vorgestellt. Anschließend werden in der Probenübersicht die in dieser Arbeit diskutierten Proben beschrieben.

4.1 Selbstorganisiertes Wachstum

Die Quantenpunkte in den Proben bestehen aus einem Halbleitermaterial [In(Ga)As], welches in einem Matrixmaterial (GaAs) eingebettet ist. Da der Bandverlauf von InAs im Vergleich zu GaAs zu einem bindenden Potential sowohl im Leitungsband als auch im Valenzband führt, spricht man von einer Typ-I-Heterostruktur [Bim98]. Wenn die räumliche Ausdehnung des Quantenpunktmaterials [In(Ga)As] in allen drei Raumrichtungen im Bereich der de-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger liegt, so führt dies zu diskreten Energiezuständen innerhalb der Quantenpunkte.

Bei der Entstehung von halbleiterbasierten Quantenpunktstrukturen können drei verschiedene Wachstumsmodi unterscheiden werden. Der *Frank-Van-der-Merve-Wachstumsmodus* [Fra49] kann auftreten, wenn man ein Material A auf ein Substrat eines anderen Materials B abscheidet. Dabei bildet sich eine plane Materialschicht in Form eines Filmes. Je nach Abhängigkeit von dem Verhältnis der Grenzflächenenergien (γ_{AB}) und der Oberflächenenergien (γ_A, γ_B) der beiden verwendeten Materialien kann sich statt des Frank-Van-der-Merve-Wachstums ($\gamma_B + \gamma_{AB} < \gamma_A$) auch der *Volmer-Weber-Wachstumsmodus* [Vol26] einstellen ($\gamma_B + \gamma_{AB} > \gamma_A$), bei welchem

¹Von *Metal Organic Chemical Vapor Deposition*.

²Von *Molecular Beam Epitaxy*.

ein Inselwachstum auftritt, da so eine minimale Benetzung der Oberfläche erreicht wird.

Entscheidend für die in dieser Arbeit untersuchten Proben ist aber eine Gitterfehl-anpassung von InAs (Gitterkonstante $a_{\text{InAs}} = 6,06 \text{ \AA}$) und GaAs ($a_{\text{GaAs}} = 5,65 \text{ \AA}$), die etwa $\Delta a/a \approx 7\%$ beträgt, und die zu einer Verspannung der aufgewachsenen In(Ga)As-Schicht führt. Diese Verspannung nimmt mit zunehmender abgechiedener Schichtdicke zu. Sobald ein bestimmter Wert erreicht ist, die *kritische Schichtdicke*, ist es für die energetische Gesamtbilanz günstiger, die Verspannungen innerhalb der Struktur abzubauen, indem Inseln gebildet werden. Diese Inseln besitzen im Vergleich zu einem abgechiedenen Film aber eine vergrößerte Oberfläche, was eine Energiezunahme bedeutet. Es wird sich deshalb ein Gleichgewicht einstellen, bei dem sowohl die Verspannungen als auch die Energie möglichst gering bleiben. Dieses Gleichgewicht resultiert in den entstehenden Quantenpunkten, die sich im *Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus* ausbilden [Str37]. Praktisch bildet sich dabei zuerst eine ein bis zwei Monolagen dicke zweidimensionale Benetzungsschicht, aus der bei weiterer Materialabscheidung die Quantenpunkte heraus entstehen. Die Benetzungsschicht bleibt aber unterhalb der Quantenpunkte bestehen.

Die strukturellen Eigenschaften der Quantenpunkte wie z. B. deren Form, Größe, Zusammensetzung oder die Oberflächendichte hängen neben den eingesetzten Materialien sehr stark von den verwendeten Parametern während des Wachstumsprozesses ab. Wichtige Wachstumsparameter sind u. a. die Wachstumstemperatur, die Materialflüsse und das III/V-Verhältnis. Außerdem hat eine eventuelle Wachstumspause nach dem Abscheiden des Quantenpunktmaterials einen wichtigen Einfluss auf die strukturellen Parameter der Quantenpunkte. Die eingelegte Pause beträgt typischerweise zwischen einigen Sekunden und wenigen Minuten. In dieser Zeit können sich die Quantenpunkte entwickeln bzw. reifen [Min98, Hei00a, Wan00, Pöt04]. Theoretische Betrachtungen des Entstehungsprozesses der Quantenpunkte beschreiben diesen Prozess mit wachstumskinetischen [Bar97] oder thermodynamischen Methoden [Shc99, Mei01].

4.2 Probenübersicht

In diesem Abschnitt werden die in dieser Arbeit untersuchten Proben vorgestellt. Der besseren Übersicht halber sind die Proben in Tabelle 4.1 alle aufgelistet und mit einem Namen versehen.

Tabelle 4.1: Übersicht der in Kapitel 5 und 6 untersuchten und hier besprochenen Proben.

Probenname	Kapitel	Struktur	Wellenleiter	Dotierung	Herstellungsverfahren
QDpn	5.1	Abb. 4.1	–	ja	MOCVD
QDPL	6.2	Abb. 4.3	0,15 μm	–	MOCVD
QDWGa	6.2	Abb. 4.5	1,24 μm	ja	MBE
QDWGb	6.2	Abb. 4.5	1,24 μm	ja	MBE
QDL1	6.3	Abb. 4.6	0,65 μm	ja	MBE
QDL2	6.3	Abb. 4.7	0,7 μm	ja	MBE

4.2.1 FT-CAS Proben

Für die in Kapitel 5 präsentierten Experimente mit der kalorimetrischen Absorptionsspektroskopie wurden Proben verwendet, bei welchen die Quantenpunkte nahe der Raumladungszone einer Diode eingebaut sind. So lässt sich der Ladungszustand der Quantenpunkte kontrolliert verändern, indem Vorspannungen an die Probe angelegt werden.

Der schematische Aufbau der Probe QDpn ist in Abbildung 4.1(a) dargestellt. Die Probe wurde mittels metall-organischer Gasphasenepitaxie auf semiisolierendem (001) GaAs-Substrat hergestellt. Die Quantenpunkte bildeten sich im Stran-ski-Krastanow-Wachstumsmodus. Es wurde ein fünffacher Stapel von nominellen $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ -Quantenpunkten mit einer Oberflächendichte von $1\text{--}1,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ gewachsen, bei dem die einzelnen Schichten durch 20 nm GaAs-Matrixmaterial getrennt sind. Nähere Details zum Wachstumsprozess der Quantenpunkte sind in [Hei00a] zu finden. Ein von einem Transmissions-Elektronen-Mikroskop (TEM) aufgenommenes Bild einer ähnlichen Probe mit nominell gleichen Quantenpunkten ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Die Quantenpunktschichten befinden sich im n-dotierten Gebiet der Diode, in 380 nm Entfernung von der np-Grenzschicht. Die p-Schicht wurde mit Zn-Atomen mit einer nominellen Konzentration von $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ dotiert. Oberste Schicht ist eine p^+ -Kontaktschicht. Die Quantenpunkte sind partiell mit Elektronen gefüllt, weil sie sich in der Umgebung der n-dotierten Schichten befinden (Si-Dotierung mit einer nominellen Dichte von $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ in der Nähe der Quantenpunktschichten; $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ in der unteren Kontaktschicht). Der partielle Ladungszustand wurde durch C–V-Messungen bestätigt (Abbildung 5.4). Die n-Dotierung ermöglicht Intersubniveau-Absorption in den Quantenpunkten, weil die dort lokalisierten Elektronen durch mittelinfrarote Strahlung in höhere Subniveaus oder die Benetzungsschicht angeregt werden können.

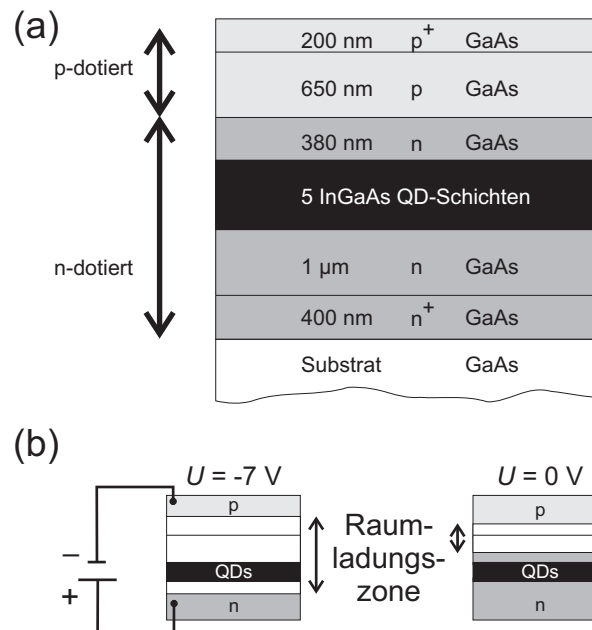


Abbildung 4.1: (a) Schematische Darstellung des Aufbaus der für die FT-CAS-Experimente verwendeten Probe QDpn. (b) Schematische Darstellung der Raumladungszone (weiß) in der Probe um die pn-Grenzfläche. Links: bei hoher negativer Vorspannung (Quantenpunkte liegen in der Raumladungszone und sind ungeladen). Rechts: ohne Vorspannung (Quantenpunkte liegen außerhalb der Raumladungszone und sind maximal geladen).

Ein kontrolliertes Entladen der Quantenpunkte ist möglich, indem man eine negative Vorspannung an die Probe anlegt. Dies wird schematisch in Abbildung 4.1(b) gezeigt. Bei höheren negativen Vorspannungen erzeugt die sich ausweitende Raumladungszone eine partielle Entleerung der Elektronen aus den Quantenpunkten, bis hin zur vollständigen Entladung ab einer bestimmten hohen negativen Vorspannung.

Die Proben wurden im Reinraum der Technischen Universität Berlin prozessiert und kontaktiert, so dass ihr Einsatz im Experiment möglich war. Dazu wurden Standardverfahren angewendet, wie sie auch bei der Laserprozessierung verwendet werden. Die durchgeführten Arbeitsschritte waren insbesondere: Reinigen der Proben; Auftragen einer Ätzmaske mit den Mitteln der Photolithographie (eine geeignete Maske wurde entsprechend der benötigten Kontaktgeometrie entwickelt); Ätzen der Probe, so dass die unteren Kontakte in die n⁺-Schicht eingesetzt werden konnten; nach erneutem Reinigen das Auftragen einer Maske, unter der die ohmschen Kontakte aufgedampft werden konnten, sowie der Aufdampfprozess selber (dieser Schritt musste jeweils für die oberen und unteren Kontakte durchgeführt werden). Eine detailliertere Beschreibung des gesamten Prozesses ist in Anhang B zu finden.

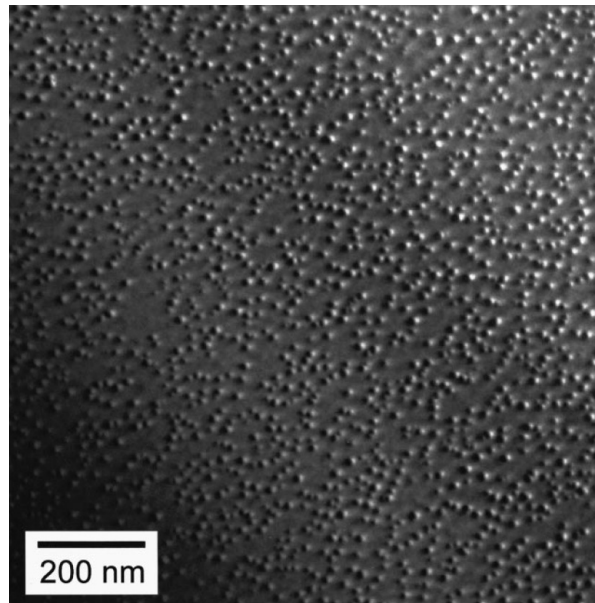


Abbildung 4.2: TEM-Draufsicht-Aufnahme einer einzelnen Schicht von InGaAs/GaAs-Quantenpunkten mit einer Oberflächendichte von $1,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Aus [Hei00a].

4.2.2 Emittierende Proben

Die in diesem Abschnitt vorgestellten Proben werden in Kapitel 6 untersucht. Es handelt sich hierbei um einfache Quantenpunktstrukturen, optisch gepumpte Quantenpunktlaser sowie elektrisch gepumpte Quantenpunktlaser.

Proben für optische Anregung

Die Probe QDPL ist in ihrem Aufbau schematisch in Abbildung 4.3 dargestellt. Sie wurde mittels MOCVD gewachsen und ist nominell undotiert. Die aktive Zone wird von $\text{In}_{0,7}\text{Ga}_{0,3}\text{As}$ -Quantenpunkten gebildet, welche oberhalb einer Schicht von InAs-Quantenpunkten entstanden sind. Umgeben werden die Quantenpunkte, die eine Flächendichte von $2,1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ aufweisen, von einer GaAs-Matrix.

Die aktive Zone ist von AlGaAs-Mantelschichten umgeben. Diese sollen bei optischer Anregung der Probe verhindern, dass die durch Absorption im Volumenmaterial entstandenen Ladungsträger nach unten in Richtung Substrat abwandern und nicht von den Quantenpunkten eingefangen werden können. Die AlGaAs-Schichten sind nicht als Wellenleiter konzipiert worden, der ein nahinfrarotes Lasen in der Probe ermöglichen könnte. Man kann die Probe daher als typische nahinfrarote Photolumineszenz-Struktur bezeichnen. Da die Probe nicht dotiert ist, wird emittierte mittelinfrarote Strahlung aber auch nicht durch freie Ladungsträger ab-

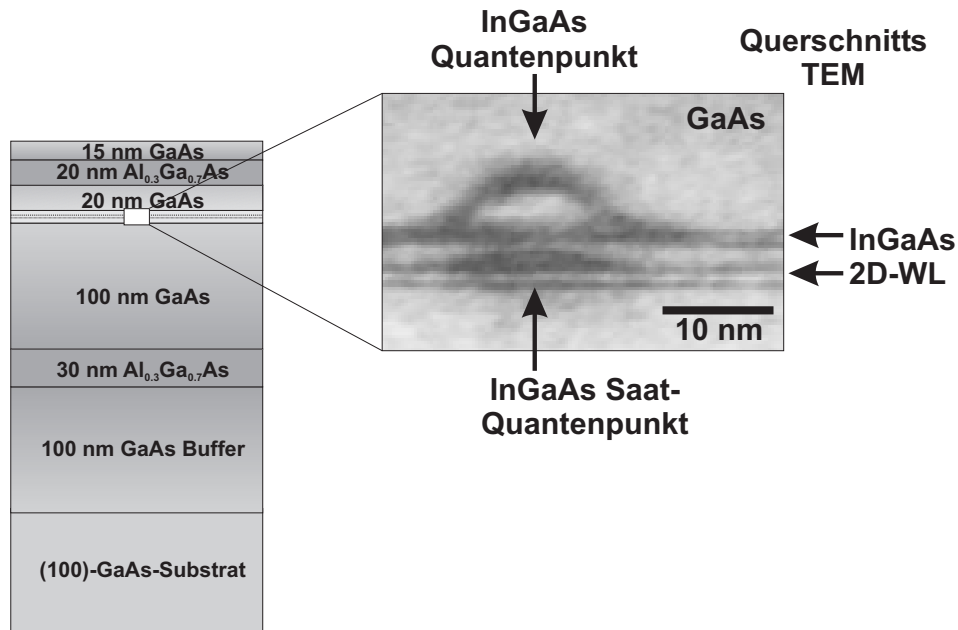


Abbildung 4.3: Aufbau der Probe QDPL. Die aktive Zone besteht aus einer Schicht von Saat-Quantenpunkten und den darüberliegenden Quantenpunkten. Der Einsatz zeigt eine Querschnitts-TEM-Aufnahme eines Quantenpunkts mit seinem darunter liegenden Saat-Quantenpunkt.

sorbiert, also eignet sich die Probe für Experimente zur Untersuchung der mittelinfraroten Emission von Quantenpunkten.

Dicker Wellenleiter. Ganz anders ist die Situation bei den Proben QDWGa und QDWGb. Sie sind als Laserstrukturen entworfen worden. Besonderes Merkmal bei ihnen ist der im Vergleich zu *normalen* nahinfraroten Halbleiterlasern sehr dicke³ Wellenleiter. Dieses Probendesign bezeichnet man auch als LOC⁴-Struktur. Der größere Wellenleiter soll es ermöglichen, sowohl die nahinfrarote als auch (zu einem kleinen Teil) die mittelinfrarote Strahlung zu führen. Das Problem bei dieser Aufgabenstellung besteht in der durch die unterschiedlichen Wellenlängen verschiedenen Feldverteilung der beiden Wellenlängenbereiche. Die nahinfrarote Strahlung mit einer relativ engen Verteilung des Feldes muss ausreichend dicht um die Quantenpunkte herum geführt werden, um das Lasen zu ermöglichen. Die mittelinfrarote Emission darf dabei aber nicht zu sehr durch den für sie eigentlich zu engen Wellenleiter aus der aktiven Schicht herausgedrängt werden – ein guter Kom-

³In Wachstumsrichtung z betrachtet.

⁴Von *Large Optical Cavity*.

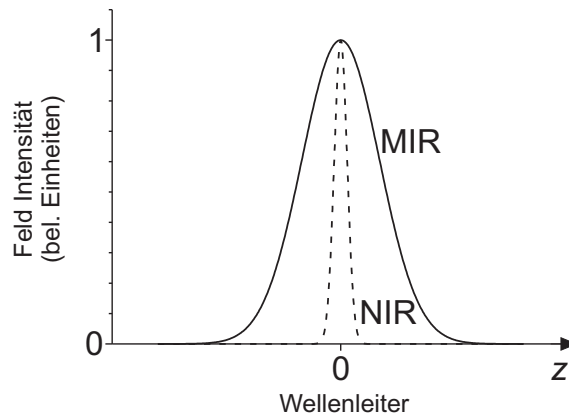


Abbildung 4.4: Schematische Verteilung des mittelinfraroten (MIR, durchgezogene Linie) und des nahinfraroten (NIR, gestrichelte Linie) Feldes innerhalb des Wellenleiters einer Struktur mit dickem Wellenleiter in z -Richtung um die bei $z = 0$ liegenden Quantenpunktschichten herum.

promiss ist also gesucht. Eine schematische Darstellung der Feldverteilungen ist in Abbildung 4.4 zu sehen.

Abbildung 4.5 zeigt den Aufbau der Proben QDWGa und QDWGb. Sie stammen beide vom selben (001) GaAs-Wafer und wurden mittels MBE hergestellt. Die aktive Zone besteht aus sechs Schichten von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ -Quantenpunkten, welche in einer GaAs-Matrix eingebaut sind. Der Abstand in z -Richtung der elektronisch gekoppelten Quantenpunkte beträgt 50 \AA . Der nahinfrarote Wellenleiter um die $0,24 \mu\text{m}$ dicke aktive Zone wird durch schwach dotierte, mit einem Gradienten versehene $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schichten gebildet, die jeweils $0,5 \mu\text{m}$ dick sind. Somit beträgt die gesamte Dicke des Wellenleiters $1,24 \mu\text{m}$ – ein Wert, der immer noch keinen echten Wellenleiter für mittelinfrarote Strahlung beschreibt.

Die Struktur ist vom Aufbau her als elektrisch gepumpter nahinfraroter Quantenpunktlaser gedacht. Allerdings wurde sie in der vorliegenden Arbeit nur unter optischer Anregung untersucht, weil man so den Einfluss des Wellenleiters auf die ausgesendete mittelinfrarote Strahlung erforschen konnte. Dafür wurde von der Probenoberfläche Material mittels nass-chemischen Ätzens abgetragen. Dies geschah auch, um mit dem Anregungslaser überhaupt bis in die Nähe der Quantenpunktschichten eindringen zu können. Hauptsächlich konnte aber durch eine unterschiedliche Ätzdauer der obere Wellenleiter verschieden stark entfernt werden. Bei der Probe QDWGa betrug die Ätzzeit mehr als 25 s, was einer entfernten Materialdicke von $> 1,7 \mu\text{m}$ entspricht. Der obere Wellenleiter ist also zu einem erheblichen Teil entfernt worden. Bei dieser Probe beträgt die Kavitätslänge des Lasers $2,2 \text{ mm}$.

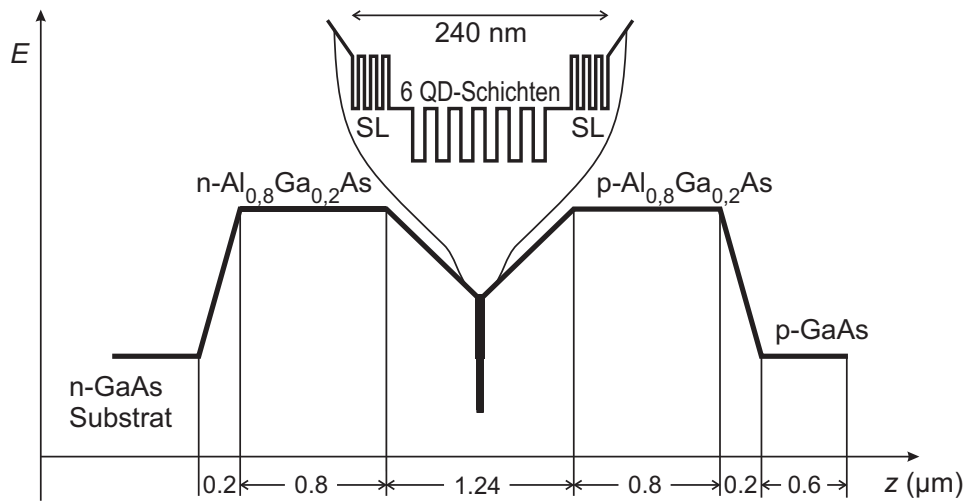


Abbildung 4.5: Aufbau der Quantenpunktlaser-Strukturen QDWGa und QDWGb mit einem dicken Wellenleiter. Die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ -Quantenpunktschichten sind durch GaAs (50 \AA) voneinander getrennt.

Die Probe QDWGb lag dagegen nur 15 s im Ätzbad, was einer entfernten Materialdicke von etwa $1,0 \mu\text{m}$ entspricht. Ihr Wellenleiter war deshalb noch intakt. Allerdings wurde durch das Entfernen der obersten Schichten das Eindringen des Pumplasers bis hin zu den Quantenpunkten verbessert. Die Kavitätslänge dieses Kantenemitters liegt bei $1,0 \text{ mm}$. Bei beiden Proben bilden die unbehandelten Facetten die Resonatorspiegel für den nahinfraroten Laserbetrieb.

Proben für elektrische Anregung

Die Probe QDL1 stellt einen klassischen Hochleistungs-Quantenpunktlaser dar. Sie besteht aus MBE-gewachsenen, vierfach gestapelten und elektronisch gekoppelten $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ -Quantenpunkten, welche in einer AlGaAs-Matrix eingebettet sind [She97]. Ein Schema der Struktur ist in Abbildung 4.6 gezeigt. Der für nahinfrarote Emission optimierte Wellenleiter besteht aus gradientenförmig abgestuften $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schichten, welche dotiert sind und fast bis an die Quantenpunktschichten heranreichen. Somit eignet er sich zumindest auf dem Papier denkbar schlecht zum Führen von mittelinfraroter Strahlung. Die Messungen in Abschnitt 6.3 zeigen aber, dass diese Probe dennoch ein sehr interessanter Emitter von mittelinfraroter Strahlung ist.

Die nahinfrarote Laserkavität wird durch unbehandelte, durch Spalten entstandene Facetten in longitudinaler Richtung begrenzt und hat eine Länge von 1 mm . Die Strominjektionsstreifenbreite beträgt bei der Probe $100 \mu\text{m}$.

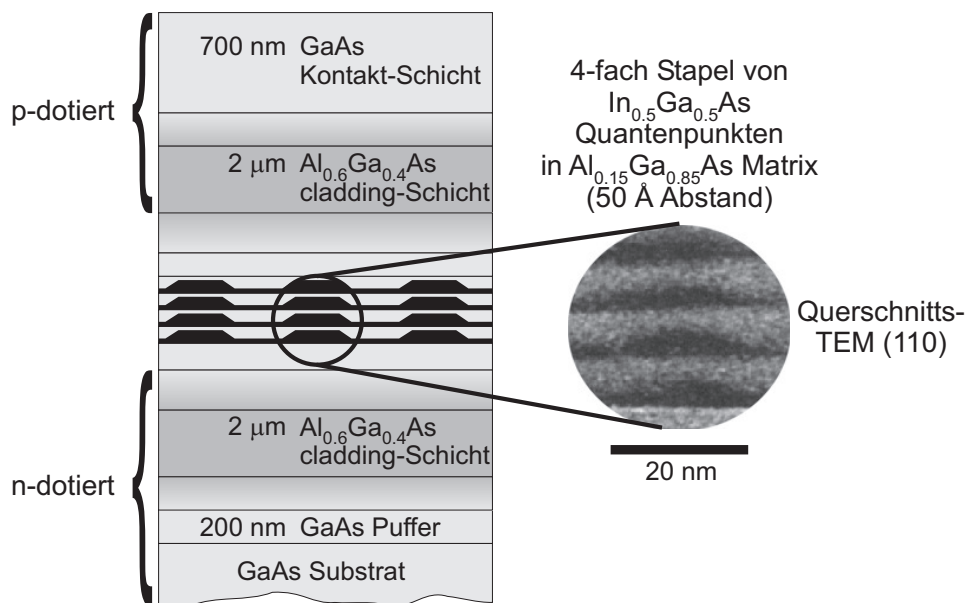


Abbildung 4.6: Aufbau der Probe QDL1. Sie ist konzipiert als ein nahinfraroter Quantenpunktlaser mit einem (in Wachstumsrichtung) flachen Wellenleiter. Die aktive Zone besteht aus einem vierfachen Stapel von elektronisch gekoppelten Quantenpunkten. Im Einsatz ist eine Querschnitts-TEM-Aufnahme eines vergleichbaren Quantenpunktstapels abgebildet.

Abbildung 4.6 zeigt auch ein Querschnitts-TEM-Bild eines Quantenpunktstapels einer anderen Probe mit nominell gleichen Eigenschaften [Max98].

Undotierter Wellenleiter. Der schematische Aufbau der Probe QDL2 ist in Abbildung 4.7 gezeigt. Diese Struktur wurde optimiert, neben dem nahinfraroten Lasen die emittierte mittelinfrarote Strahlung möglichst wenig durch dotierte Schichten zu absorbieren und durch einen $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Wellenleiter mit moderatem Al-Anteil ($x \leq 0,3$) verhältnismäßig gut zu führen. Die aktive Zone wird gebildet von neun Quantenpunktschichten, die aus Sub-Monolagen-InGaAs-Quantenpunkten bestehen und durch ihren geringen Abstand von nur $8,5 \text{ \AA}$ eine starke elektronische Kopplung besitzen. Die aktiven Schichten sind mittig eingebettet in nominell undotiertem GaAs mit einer Dicke von $0,6 \mu\text{m}$. Die $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Flanken des Wellenleiters sind extrem steil, so dass er insgesamt eine Breite von $0,7 \mu\text{m}$ besitzt. Auch in diesem Fall ist der Wellenleiter nicht optimal für mittelinfrarotes Licht – allerdings ist die undotierte Zone um die aktive Schicht der Quantenpunkte herum größer als bei den Proben QDWGa und QDWGb, so dass die Verluste im Mittelinfrarot durch Absorption von freien Ladungsträgern geringer sein sollten.

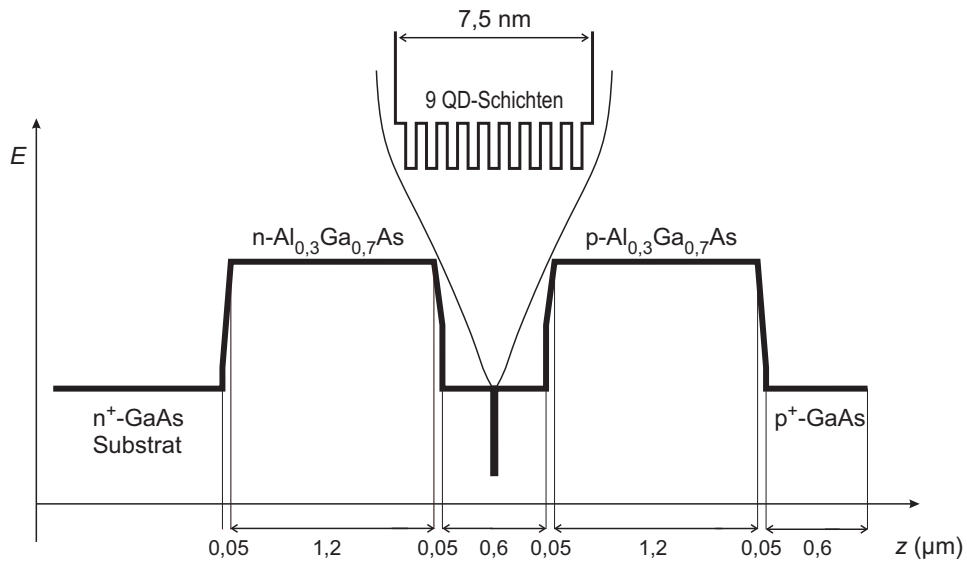


Abbildung 4.7: Aufbau der Probe QDL2. Der nahinfrarote Quantenpunktlaser besitzt eine LOC-Struktur mit einem im Inneren undotierten Wellenleiter. Die InGaAs-Quantenpunktschichten sind in einer GaAs-Matrix eingebettet.

Der Laser QDL2 besitzt eine Kavitätslänge von 0,86 mm und eine Strominjektionsstreifenbreite von 100 μm . Die Facetten sind durch Spalten entstanden und blieben unbehandelt. Der Laser wurde mit den aufgewachsenen Schichten nach unten auf einen Wärmeleiter geklebt, um die entstehende Verlustwärme möglichst gut ableiten zu können und damit thermische Probleme bei hohen Injektionsströmen zu vermeiden.

5 Intersubniveau-Absorption in Quantenpunkten

In diesem Kapitel wird vorgestellt, wie die Eigenschaften von Intersubniveau-Übergängen in Quantenpunkten mit den Mitteln der Absorptionsspektroskopie erforscht werden können. Die Übergangsenergien zwischen den Subniveaus bei InGaAs/GaAs-Quantenpunkten liegen im Bereich der mittelinfraroten Strahlung. Daher kommen die in Kapitel 3 vorgestellten experimentellen Techniken zum Einsatz.

Zur Bestimmung der Absorption von Licht in den Quantenpunkten stehen mehrere experimentelle Ansätze zur Verfügung. Einerseits kann man den nicht von der Probe absorbierten Strahlungsanteil (d. h. also die Transmission) messen und anschließend auf die Absorptionseigenschaften der Probe schließen [Sau97b, Sau98a, Sau98b]. Andererseits lässt sich auch die Absorption in den Quantenpunkten direkt erfassen – etwa durch Photostrom-Messungen, wo Ladungsträger, welche durch die Lichtquanten in höhere Energieniveaus angeregt wurden, den Quantenpunkt verlassen können, was sich in einer Erhöhung des Photostroms äußert [Ryz96, Ber97, Phi99, Chu00, Chu01, Che01, Liu01, Ryz01, Sau01, Tan01, Kri05].

Eine andere Art der Messung der Absorption ist die kalorimetrische Absorptionsspektroskopie. Die Ergebnisse dieser Messungen zur Untersuchung der Intersubniveau-Übergänge in Quantenpunkten werden im Folgenden dargestellt.

Die hier diskutierten Messungen wurden an der Probe QDpn durchgeführt. Sie enthält $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ -Quantenpunkte, die nahe der Raumladungszone einer aus GaAs bestehenden pn-Diode eingebaut sind und deren Ladungszustand sich kontrolliert verändern lässt, indem man eine Vorspannung an die Diode anlegt. Eine detaillierte Beschreibung der Probe findet sich in Abschnitt 4.2.1.

5.1 Kalorimetrische Absorptionsspektroskopie

Die kalorimetrische Absorptionsspektroskopie im Mittelinfrarot (FT-CAS) ist eine hervorragende Technik, um Phononen erzeugende Übergänge der Ladungsträger nachzuweisen. Mit ihr lassen sich somit auch Intersubniveau-Übergänge in Quan-

tenpunkten, die zu einem Großteil nichtstrahlend ablaufen, untersuchen.

5.1.1 Experimentelle Ergebnisse

Abbildung 5.1 zeigt nahinfrarote Anregungsspektren der Probe QDpn, die mittels konventioneller Photolumineszenz-Spektroskopie (PL) und Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie (PLE¹) aufgenommen wurden. Die Spektren dienen zur Charakterisierung der Probe und ergeben nützliche Informationen, die anschließend durch die Messungen im Mittelinfrarot präzisiert werden können. Bei beiden Spektren wurde die Probe bei einer Temperatur von $T = 7$ K durch eine Wolfram-Lampe, deren Licht von einem 0,27 m Doppel-Monochromator spektral zerlegt wurde, mit einer Anregungs-Leistungsdichte von 5 mW/cm^2 angeregt. Weil die Probe nicht unter Vorspannung steht, befinden sich die Quantenpunkte im n-geladenen Teil der Diode und sind folglich mit Elektronen geladen [siehe dazu Abbildung 4.1(b)]. Das Zentrum des einzigen sichtbaren Peaks im PL-Spektrum befindet sich bei 1,218 eV. Dieser Wert gibt die Übergangsenergie für eine Rekombination von Elektronen und Löchern im Grundzustand an.

Die für das PLE-Spektrum verwendete Detektionsenergie E_{det} liegt genau im Zentrum der Grundzustands-Übergangsenergie. Das PLE-Spektrum zeigt einen angeregten Elektronen-Zustand (QD*²) bei 1,285 eV sowie die Rekombination der Ladungsträger in der Benetzungsschicht (WL³) bei 1,4 eV. Aus dem energetischen Abstand der Signale vom Grundzustand und der Benetzungsschicht lässt sich eine maximale energetische Tiefe der Quantenpunkte mit $\sim 180 \text{ meV}$ abschätzen.

Im Spektrum ist außerdem ein Peak für den Phononen-unterstützten Einfang von Ladungsträgern in den Grundzustand zu erkennen (PA⁴). Die Energie der angeregten Elektron-Loch-Paare (Exzitonen), wie sie mittels der PLE bestimmt wird, gibt Anhaltspunkte für die Energie von angeregten Elektronen-Energien, wie sie direkt durch FT-CAS gemessen werden können, wenn man sowohl die Confinement-Energien der teilnehmenden Löcher (typischerweise im Bereich von 10–30 meV [Sti99]) als auch die Variationen der Coulomb-Bindungsenergien für die verschiedenen Exzitonen-Zustände berücksichtigt. Die Exzitonen-Bindungsenergie liegt typischerweise im Bereich von 15–20 meV für den Grundzustand und etwas niedriger für die angeregten Zustände [Bim98, Sti99, Hei00c]. Daraus kann man also schließen, dass etwa zwischen 5 meV und 20 meV vom Energie-Abstand der mit-

¹Von Photo-Luminescence Excitation.

²Das QD steht für Quantum Dot.

³Von Wetting Layer.

⁴Von Phonon Assisted.

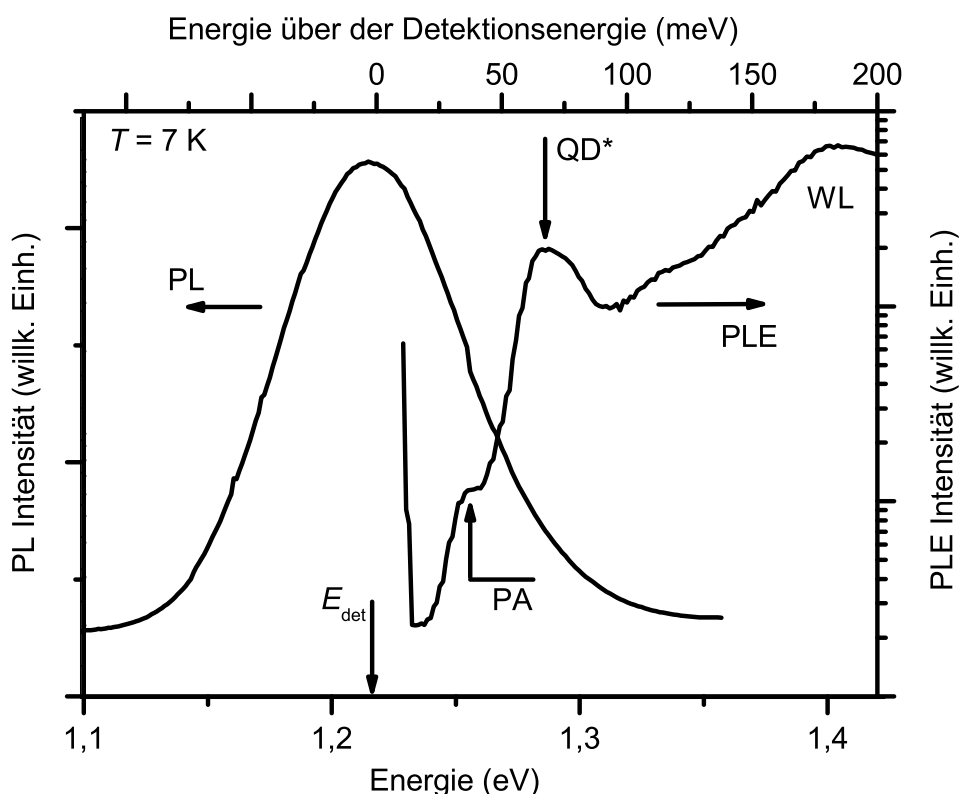


Abbildung 5.1: Nahinfrarote PL- und PLE-Spektren der Quantenpunktprobe QDpn ohne Vorspannung bei $T = 7\text{ K}$. Die PLE Detektionsenergie E_{det} liegt im Zentrum der Grundzustands-Lumineszenz bei 1,218 eV. Das Signal, welches durch den Phononen-unterstützten Einfang in den Grundzustand hervorgerufen wird (PA), sowie die Signale vom angeregten Zustand in den Quantenpunkten (QD^*) und der Benetzungsschicht (WL) sind eingezeichnet.

tels PLE erhaltenen Exzitonen-Abstände abgezogen werden muss, wenn man sie mit Elektronen-Übergängen vergleicht, wie sie in den anschließend vorgestellten FT-CAS Spektren beobachtet werden.

FT-CAS Spektren

In diesem Abschnitt werden nun die FT-CAS Spektren (Abbildung 5.2) von elektronischen Intersubniveau-Übergängen diskutiert. Aufgrund der Transmissions-Charakteristik des experimentellen Aufbaus und der spektralen Form der anregenden Lichtquelle (ein Globar-Stab) können lediglich Übergänge beobachtet werden, die höhere Energien als 60 meV besitzen.

Der Einsatz von Abbildung 5.2 zeigt ein Spektrum der Probe, das ohne spektrale

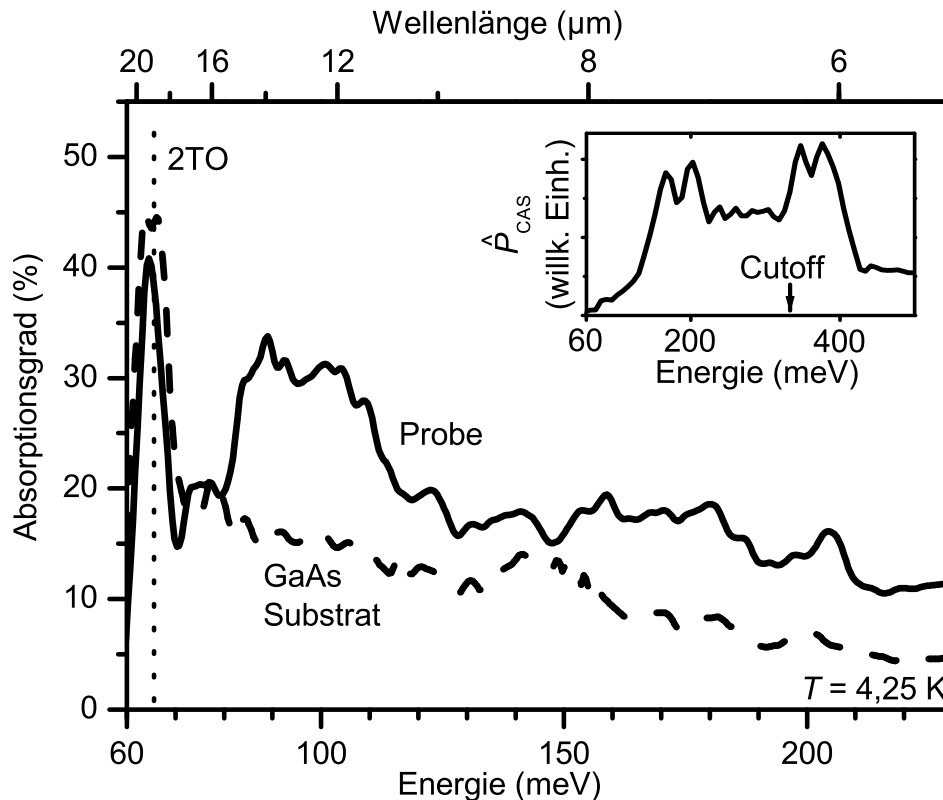


Abbildung 5.2: Spektraler Absorptionsgrad der Quantenpunktprobe QDpn (ohne Vorspannung) und eines semiisolierenden GaAs-Substrats bei $T = 4,25$ K, gemessen mittels FT-CAS. Beide Kurven sind normiert auf die Absorption eines Schwarzkörpers und wurden mit dem InAs-Filter aufgenommen (Auflösung 2 meV). Die spektrale Position des 2TO Phonons in GaAs ist als gestrichelte Linie eingezeichnet. Die Kalibration erfolgte wie in Abschnitt 5.1.1 beschrieben. Der Einsatz zeigt die FT-CAS Messung der spektralen absorbierten Leistung pro Energie-Intervall \hat{P}_{CAS} für die Probe QDpn ohne Benutzung des InAs-Filters in einem breiteren Energiebereich ($T = 4,25$ K, Auflösung 10 meV). Die Energie des Cutoffs des InAs-Filters ist durch einen Pfeil markiert.

Korrekturen für den Aufbau sowie ohne Verwendung eines InAs Filters wiedergegeben wurde. Die generelle Struktur dieses Spektrums wird durch das Emissionsspektrum des Globar-Stabes, welches dem eines schwarzen Strahler bei ungefähr $T = 580$ K ähnlich ist, und durch die bekannten Absorptionseigenschaften von dotiertem GaAs [Bla82] dominiert. Oberhalb von 340 meV ist ein Peak erkennbar, der durch Löcher-Absorption in das Split-Off Valenzband innerhalb der p-dotierten Schichten hervorgerufen wird. Die Absorption durch freie Ladungsträger wird ab etwa 250 meV zunehmend stärker.

Alle interessanten spektralen Merkmale, die durch resonante Absorption von La-

Trägern, welche sich in den Quantenpunkten befinden, hervorgerufen werden, erwartet man in Abbildung 5.2 aufgrund der PLE-Ergebnisse unterhalb von 180 meV. Die beiden im Hauptteil der Abbildung 5.2 dargestellten FT-CAS Spektren wurden unter Verwendung eines InAs Filters aufgenommen. Außerdem wurde die spektrale Charakteristik des Aufbaus korrigiert, indem die gemessenen Kurven durch ein auf die gleiche Art aufgenommenes Absorptionsspektrum einer Schwarzkörper-Oberfläche geteilt wurden. Das einzige Merkmal, welches die gezeigten Absorptions-Kurven sowohl der Probe QDpn als auch des GaAs Substrats gemeinsam besitzen, ist die bekannte Zwei-Phonon-Absorption in GaAs, die einen Peak bei ungefähr 66 meV hervorruft [Bla82, Cho61].

Da es sehr delikates ist, die thermische Verbindung zwischen der Probe und dem Saphir-Chip des Bolometers für verschiedene Messungen exakt zu reproduzieren, schwankt die Sensitivität des Messaufbaus für jede gemessene Probe. Daraus folgt, dass die aufgenommenen FT-CAS Spektren für die Probe QDpn und das GaAs Substrat unterschiedliche Intensitätsskalen aufweisen. Um dennoch den spektralen Absorptionsgrad (das ist der absorbierte prozentuale Anteil der einfallenden Intensität) der Kurven bestimmen zu können, wurden beide Kurven kalibriert, indem der bekannte Absorptionskoeffizient der 2TO Phonon-Absorption zu Hilfe genommen wurde (Abschnitt 5.1.3).

Der Absorptionsgrad des Substrats bei Energien größer als 70 meV nimmt mit zunehmender Energie ab. Bei den Quantenpunkten erscheint dagegen ein deutlicher Peak bei ~ 100 meV mit einer Halbwertsbreite (FWHM⁵) von 30 meV. Wenn man die aus Abbildung 5.1 ermittelten Niveau-Abstände berücksichtigt, könnte dieser Peak der Absorption von Elektronen, die im Quantenpunkt vom Grundzustand GS zum angeregten Zustand QD* angeregt werden, zugeordnet werden. Übergänge von Grundzustands-Elektronen in die Benetzungsschicht oder ins GaAs erwartet man bei Energien oberhalb von 180 meV (siehe Abbildung 5.1), wo sich in der FT-CAS Kurve ein breiter, aber schwacher Peak erkennen lässt. Für eine eindeutige Identifizierung des Ursprungs der beobachteten mittelinfraroten Absorption ist jedoch eine Unterscheidung zwischen dem Einfluss der Quantenpunkte und der dotierten Schichten notwendig. Diese wird nun gezeigt.

Spektren bei verschiedenen Ladungszuständen der Quantenpunkte

Um die beobachtete Absorption eindeutig den Quantenpunkten zuordnen zu können, wurde die Abhängigkeit des Absorptionsspektrums von der Beladung der Quantenpunkte untersucht. Die Veränderung der Ladung der Quantenpunkte er-

⁵Von *Full Width at Half Maximum*.

folgte durch Anlegen einer negativen Vorspannung⁶ U an die als Diodenstruktur aufgebaute Probe [Abbildung 4.1(b)]. Nach jeder Veränderung der angelegten Spannung erfolgte vor den Messungen eine Wartezeit, um dem System selbst bei einer Temperatur von $T = 4,25$ K das Einstellen eines Gleichgewichts der Ladungsträgerkonzentration zu ermöglichen. Spannungsabhängige PLE Messungen bei $T = 7$ K bestätigen, dass selbst bei solch tiefen Temperaturen der Ladungszustand der Quantenpunkte durch das Anlegen einer negativen Vorspannung erfolgreich verändert werden kann (Abbildung 5.3).

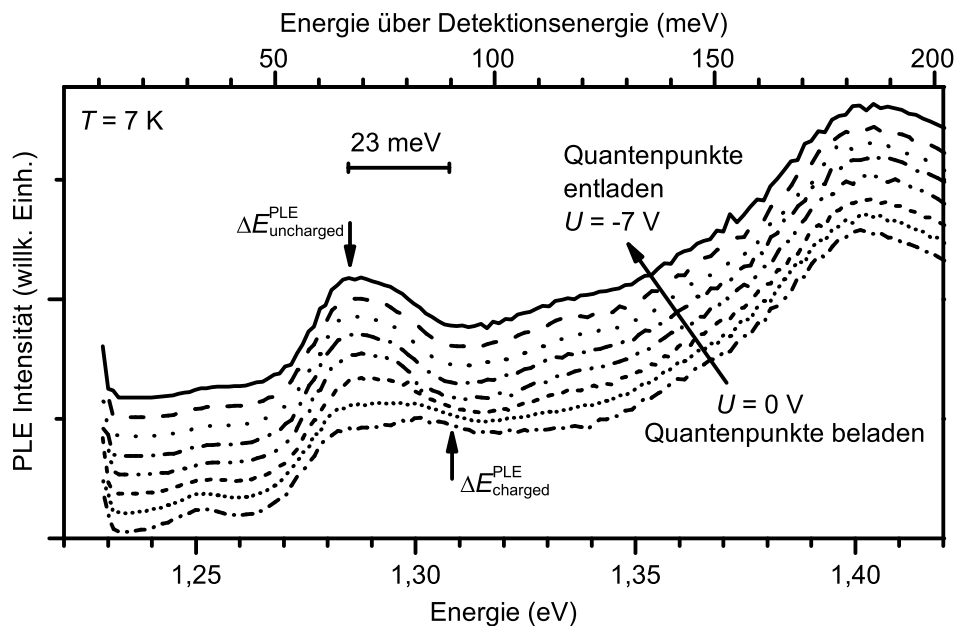


Abbildung 5.3: Spannungsabhängige PLE Messungen der Probe QDpn. Die Messbedingungen waren, abgesehen von den unterschiedlichen Vorspannungen, identisch mit jenen bei Abbildung 5.1. Die Spektren für unterschiedliche Vorspannungen wurden vertikal verschoben. Die Peakpositionen des QD* Zustands sind für geladene (Vorspannung $U = 0$ V) und komplett ungeladene ($U = -7$ V) Quantenpunkte eingezeichnet (als $\Delta E_{\text{charged}}^{\text{PLE}}$ bzw. $\Delta E_{\text{uncharged}}^{\text{PLE}}$).

Abbildung 5.4 zeigt eine Kapazitäts-Spannungs-Kurve ($C-V$ ⁷) der Probe QDpn. Sie wurde mit einer Sampling-Frequenz von 1 kHz bei $T = 75$ K bei einer Modulationsspannung $U_{\text{AC}} = 100$ mV aufgenommen. Die Messung ergibt für zwei Spannungsregionen einen Ladungstransfer in und aus den Quantenpunkten, wie er auch bei anderen experimentellen und theoretischen Ansätzen des kontrollierten Beladens von Quantenpunkten gefunden werden konnte [Fri96, Wet00]. Am besten

⁶Im Englischen als *bias* bezeichnet.

⁷Von *Capacitance-Voltage*.

kann man den Ladungstransfer anhand der 2. Ableitung der $C-V$ Kurve erkennen (gestrichelte Linie). Wenn man diese Kurve von den hohen negativen Vorspannungen ausgehend (also den ungeladenen Quantenpunkten) betrachtet, ist das Auffüllen des Grundzustands (GS) mit Elektronen bei $U_{C-V} = -5,6$ V abgeschlossen. Der angeregte Zustand der Quantenpunkte QD^* ist bei $U_{C-V} = -3,8$ V mit Ladungsträgern gefüllt. Die Breite dieser Merkmale in der $C-V$ Kurve ist sowohl durch die inhomogene Verbreiterung aufgrund von Größenfluktuationen der Quantenpunkte als auch durch die fünffach gestapelten Quantenpunktschichten der Probe bedingt und ist typisch für den Beladungsprozess von Quantenpunkten [Wet00]. Im Gegensatz zu den Proben, welche Quantenpunkte enthalten, wurden keinerlei Signale des Umladungsprozesses in quantenpunktfreien Vergleichsproben gefunden, die den hier untersuchten Proben ansonsten ähnlich sind [Kap99]. Ein Vergleich von Messungen an Quantenpunktproben mit Referenzproben, welche lediglich eine Benetzungsschicht enthalten, würde kaum Aussagekraft haben, da in einer solchen Referenzprobe sich die Ladungsträger innerhalb der Benetzungsschicht ansammeln, weil sie dort den niedrigsten Energiezustand annehmen können. In Quantenpunktproben ist die Benetzungsschicht jedoch nicht besetzt, so dass hier eine völlig andere Situation vorherrscht.

Die Spektren mit den verschiedenen Vorspannungen in Abbildung 5.5 wurden alle jeweils durch das Spektrum, welches ohne Vorspannung aufgenommen wurde, dividiert. Denn es wird davon ausgegangen, dass die stark mit Ladungsträgern gefüllten Quantenpunkte bei $U = 0$ V nur eine schwache Intersubniveau-Absorption aufweisen, weil lediglich eine kleine Anzahl von freien Zuständen als Ziel für Intersubniveau-Übergänge zur Verfügung steht. Das heißt, dass die Abbildung 5.5 also den relativen spektralen Absorptionsgrad in Abhängigkeit der Ladung der Quantenpunkte, bezogen auf den Absorptionsgrad bei 0 V, zeigt.

Bei hohen Vorspannungen sind die unvermeidbaren Leckströme in der Probe stärker und demzufolge erhöht sich die Temperatur des Mess-Sensors, was die Sensitivität der Messung verringert. Daher weisen die Kurven mit hohen Bias-Spannungen ein etwas niedrigeres Signal-Rauschverhältnis auf. Die Spektren konnten reproduzierbar für verschiedene Messabfolgen (Erhöhung bzw. Verringerung der Vorspannung) erhalten werden. Daraus folgt, dass sie jeweils den Zustand einer Ladungsträger-Besetzung im Gleichgewicht widerspiegeln. Wenn man von $U_{CAS} = -5$ V ausgeht, sieht man, wie ein deutlich erkennbarer Peak in der Kurve des Absorptionsgrads bei 96 meV entsteht und mit zunehmender Beladung der Quantenpunkte eine Rotverschiebung von bis zu 20 meV erfährt. Die Absorption erreicht ihr Maximum bei $U_{CAS} = -4$ V und nimmt bei $U_{CAS} = -2$ V stark ab. Weil oberhalb von 110 meV keine erkennbaren von der Vorspannung abhängigen Veränderungen

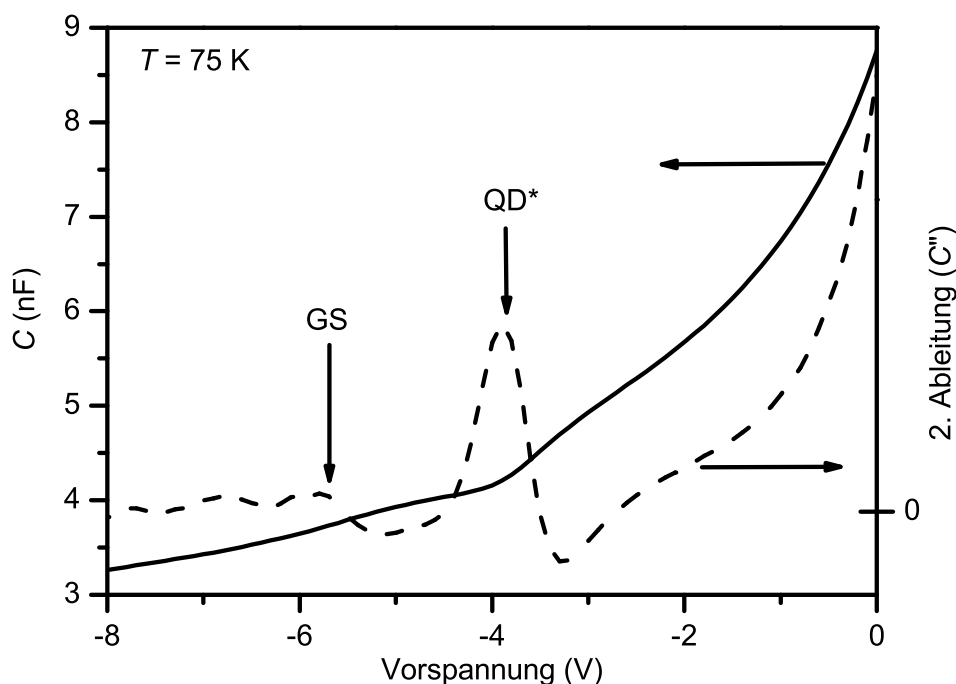


Abbildung 5.4: C - V Kurve (durchgezogene Linie) und ihre zweite Ableitung (gestrichelte Linie) der Probe QDpn bei $T = 75$ K. Die jeweiligen Vorspannungen, bei denen das Beladen des Grundzustands (GS) und des ersten angeregten Zustands (QD*) abgeschlossen ist, sind durch Pfeile gekennzeichnet.

der Absorption stattfinden, kann man schließen, dass die in Abbildung 5.2 gemessene Absorption oberhalb von 110 meV nicht von Ladungsträgern innerhalb der Quantenpunkte stammt. Auf der anderen Seite lässt die ladungsabhängige Stärke der Absorption im Bereich 70–110 meV den Schluss zu, dass es sich hierbei um Intersubniveau-Übergänge in Quantenpunkten handelt. Die zwei Pfeile in Abbildung 5.5 markieren die Position des angeregten Elektronenzustands QD* in Bezug auf die Grundzustandsübergangsenergie für jeweils geladene und ungeladene Quantenpunkte.

5.1.2 Diskussion der FT-CAS Spektren

Die beobachtete Variation der Intersubniveau-Absorption für verschiedene an die Probe angelegte Vorspannungen kann durch das Be- und Entladen der Quantenpunkte erklärt werden. C - V Messungen erlauben es, die Vorspannungen U_{C-V} den Ladungszuständen der Quantenpunkte zuzuordnen. Diese Zuordnung stimmt mit den jeweiligen Bias-Spannungen U_{CAS} bei den FT-CAS Messungen innerhalb von $\Delta U \approx -0,5$ V überein, wobei sich diese Abweichung durch verschiedene Mess-

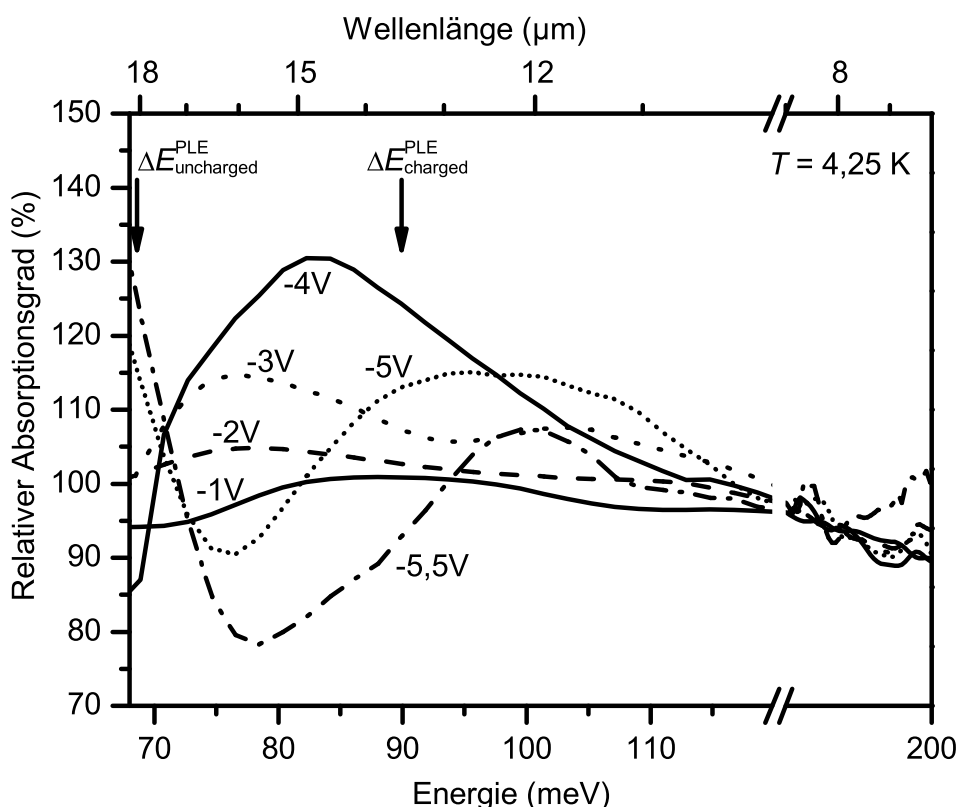


Abbildung 5.5: FT-CAS Messungen der Probe QDpn für verschiedene negative Vorspannungen unter Benutzung des InAs-Filters (Auflösung 8 meV). Die Kurven für die dargestellten Spannungen wurden jeweils durch die Kurve für $U_{\text{CAS}} = 0 \text{ V}$ geteilt (diese entspricht also einem relativen Absorptionsgrad von 100%). Die mittels PLE ermittelten Peakpositionen des QD* Zustands sind für geladene (Vorspannung $U = 0 \text{ V}$) und komplett ungeladene ($U = -7 \text{ V}$) Quantenpunkte eingezeichnet (als $\Delta E_{\text{charged}}^{\text{PLE}}$ bzw. $\Delta E_{\text{uncharged}}^{\text{PLE}}$).

temperaturen (Probentemperatur $T = 75 \text{ K}$ bei den $C-V$ Messungen und $T = 8 \text{ K}$ bei den FT-CAS Messungen) sowie durch die verschiedenen Auswirkungen von unvermeidbaren Leckströmen in der Probe erklären lässt.

Intensitätsveränderung durch Pauli-Blockade

Die charakteristische Entwicklung des Absorptionsgrads beim Beladen der Quantenpunkte lässt sich durch eine Pauli-Blockade der Inter-subniveau-Absorption erklären. Für die nun folgenden Betrachtungen sei ein vierfach degenerierter angeregter Zustand für einen ungeladenen Quantenpunkt angenommen. Eine mögliche Aufhebung der Degenerierung [Sti99] der p_x und p_y Orbitale durch die komplizier-

te Struktur der Quantenpunkte konnte bei den vorliegenden Messungen aufgrund der inhomogenen Verbreiterung nicht nachgewiesen werden und wird deshalb vernachlässigt.

Bei kleinen Beladungen der Quantenpunkte ($U_{\text{CAS}} = -5,5 \text{ V}$, $U_{\text{CAS}} = -5 \text{ V}$) wird die Absorption sichtbar und zunehmend stärker, wenn der Grundzustand der Quantenpunkte sich mit weiteren Elektronen füllt. Die unter 100% liegenden Werte für den Absorptionsgrad im Bereich 70–95 meV resultieren daraus, dass das 0 V Referenzspektrum (welches die 100% darstellt) eine kleine Absorption zeigt, da auch bei 0 V nicht alle angeregten Zustände zur Gänze mit Elektronen gefüllt sind und somit keine vollständige Pauli-Blockade stattfindet. Diese Interpretation wird durch die Ergebnisse der PLE-Messungen (Abbildung 5.1) unterstützt, welche bei 0 V eine Interband-Absorption des angeregten Exzitonenzustands QD* beobachten lassen.

Wenn der Grundzustand in den Quantenpunkten bei zunehmender Beladung vollständig aufgefüllt wird ($U_{\text{CAS}} = -4 \text{ V}$ in Abbildung 5.5), erreicht die Intersubniveau-Absorption ihr Maximum. Für noch stärkere Beladungen ($|U_{\text{CAS}}| < |-4 \text{ V}|$) sinkt der Absorptionsgrad wieder, weil sich der angeregte Zustand QD* auffüllt und somit immer mehr Ziel-Zustände für einen Intersubniveau-Übergang blockiert werden.

Die Spektren bei niedrigen Bias-Spannungen (-1 V und -2 V) zeigen dennoch einen nicht verschwindenden Absorptionsgrad, weil bei ihnen der QD*-Zustand mit weniger Elektronen aufgefüllt ist, als bei der Referenzkurve 0 V, und somit ein Rest an Absorption beobachtbar bleibt.

Die Halbwertsbreite des beobachteten Intersubniveau-Absorptionspeaks ($\sim 20 \text{ meV}$ bei $U_{\text{CAS}} = -4 \text{ V}$) ist signifikant kleiner als jene der exzitonischen Interband-Übergänge ($\sim 50 \text{ meV}$, siehe Abbildung 5.1). Diese Tatsache stimmt vollständig mit der Interpretation überein, den beobachteten mittelinfraroten Absorptionspeak einem Intersubniveau-Übergang zwischen zwei gebundenen Zuständen in Quantenpunkten zuzuordnen, weil für solche Übergänge schmalere Halbwertsbreiten als für Interband-Übergänge erwartet werden [Sau97a, Sti99, Che01] (siehe auch Abschnitt 2.3.3).

Rotverschiebung durch Mehrteilcheneffekte

Im Folgenden wird die Rotverschiebung des Intersubniveau-Absorptionspeaks von 20 meV mit zunehmender Beladung der Quantenpunkte mit Mehrteilcheneffekten erklärt. Zuvor soll noch bemerkt werden, dass der Quanten-Starck-Effekt als Ursache für die Peakverschiebung ausgeschlossen werden kann, weil das in der Probe

vorherrschende elektrische Feld ($<10\text{ kV}$) viel kleiner ist, als es für einen signifikanten Einfluss auf die Subniveau-Energien notwendig wäre [Bim98, Jia98]. Sogar bei den viel empfindlicheren Elektron-Loch-Übergängen erwartet man nötige elektrische Felder von über 100 kV/cm für InAs/GaAs-Quantenpunkte, um eine Energieverschiebung von 5 meV hervorzurufen, wenn das Feld, wie bei den vorgestellten Experimenten, parallel zur Wachstumsrichtung der Probe wirkt [Jia98]. Diese Aussage behält auch für die hier untersuchten gestapelten Quantenpunktschichten ihre Gültigkeit, weil die Quantenpunkte aufgrund der 20 nm dicken Spacer-Schicht elektrisch nahezu als entkoppelt angesehen werden können [Hei98].

Über Berechnungen von Mehrteilcheneffekten in geladenen pyramidal geformten Quantenpunkten mit bis zu vier Elektronen in Grundzustand und angeregtem Zustand wird in [Nag99] berichtet. Das dort für die Berechnungen benutzte (und schon in Abschnitt 2.2.2 vorgestellte) Modell wird auch hier angewandt, um die von der Beladung der Quantenpunkte abhängigen Veränderungen des Absorptionsgrads in Abbildung 5.5 zu erklären. Ein Schema, welches die Elektronenkonfiguration in einem Quantenpunkt und das jeweils dazugehörige Intersubniveau-Absorptionsverhalten darstellt, wird in Abbildung 5.6 gezeigt.

Es wird angenommen, dass bei $U_{\text{CAS}} = -5\text{ V}$ und $U_{\text{CAS}} = -5,5\text{ V}$ die überwiegende Anzahl der Quantenpunkte mit einem Elektron im Grundzustand besetzt ist und der angeregte Zustand leer ist. Die dazugehörige Intersubniveau-Absorption eines so besetzten Quantenpunkts erscheint bei der Energie

$$E_{12}^{1-} \equiv E_{12}, \quad (5.1)$$

welche dem Abstand der beiden Subniveaus im Quantenpunkt entspricht. Die gemessenen Kurven bei -5 V und $-5,5\text{ V}$ zeigen breite Maxima um 97 meV herum (Abbildung 5.5). Es wird jedoch vermutet, dass diese gemessene Peak-Energie den tatsächlichen Subniveau-Abstand überschätzt, weil die Messung den relativen Absorptionsgrad im Vergleich zum spannungslosen Fall ermittelt, für welchen aber noch ein kleiner Teil der Intersubniveau-Absorption in der Gegend um 80 meV erwartet wird. Als Folge davon wird im Spektrum kein einfacher Peak, sondern vielmehr eine Resonanz in der Form eines liegenden S beobachtet. Diese Interpretation stimmt mit dem Elektronen-Subniveau-Abstand E_{12} von $85\text{--}90\text{ meV}$ überein, wie er aus den PLE Messungen abgeschätzt werden kann.

Wenn die negative Vorspannung auf $U_{\text{CAS}} = -4\text{ V}$ gesenkt wird, sättigen zwei Elektronen den Grundzustand des Quantenpunkts, während der angeregte Zustand weiterhin unbesetzt bleibt. Die Erhöhung der Anzahl der Elektronen pro Quantenpunkt resultiert in einer stärkeren Absorption, wie sie auch bei der -4 V FT-CAS Messung im Vergleich zu -5 V beobachtet werden kann. Allerdings beein-

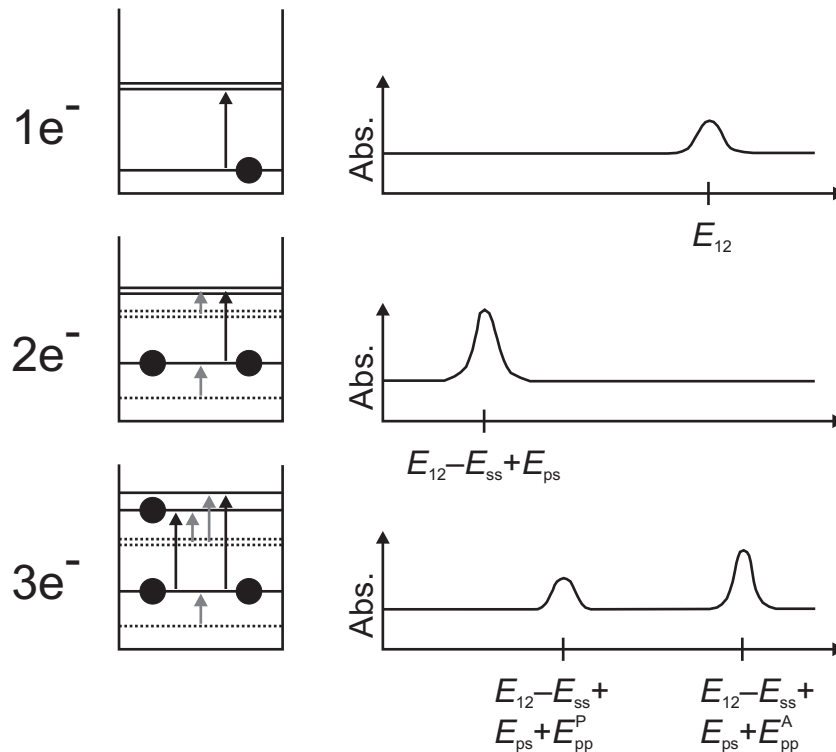


Abbildung 5.6: Schematische Darstellung der Ladung von Quantenpunkten mit 1 bis 3 Elektronen (e^-) und das resultierende Intersubniveau-Absorptionsverhalten. E_{12} bezeichnet den Intersubniveau-Energieabstand, E_{ss} ist die Wechselwirkungsenergie zwischen s -artigen Grundzustands-Elektronen, während E_{ps} die Wechselwirkungsenergie zwischen s -artigen Elektronen im Grundzustand und p -artigen Elektronen im QD^* Zustands. E_{pp}^A bezeichnet die Wechselwirkungsenergie zwischen p -artigen Elektronen im QD^* Zustand mit antiparallelen Spins und E_{pp}^P mit parallelen Spins.

flusst die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den beiden Elektronen die Intersubniveau-Übergangsenergie, weil beide Zustände (GS und QD^*) um ungleiche Beträge zu höheren Energien hin verschoben werden. Berechnungen [Fon98] erlauben den Schluss, dass die direkte Coulomb-Abstoßung den Hauptbeitrag leistet, obwohl Austausch- und Korrelations-Wechselwirkungen ebenfalls im beobachteten Quantenpunktsystem wichtig bleiben. Die Wechselwirkung von p -artigen Elektronen im angeregten Zustand (QD^*) mit s -artigen Grundzustands-Elektronen wird nach [Fon98, Nag99] ungefähr 30–35% schwächer geschätzt, als jene zwischen zwei Grundzustands-Elektronen. Durch das Hinzufügen eines Zuschauer-Elektrons⁸ wird also eine Rotverschiebung für den Intersubniveau-Übergang erwartet, welche

⁸Ein Elektron, das die Übergänge im Quantenpunkt durch seine Anwesenheit beeinflusst, obwohl es selbst nicht direkt an ihnen beteiligt ist.

tatsächlich in Abbildung 5.5 beobachtet werden kann. Die -4 V Kurve besitzt ihr Maximum bei $E_{12}^{2-} = 83$ meV. Diese Energie lässt sich aus folgenden Komponenten zusammensetzen:

$$E_{12}^{2-} = E_{12} - E_{ss} + E_{ps} < E_{12}^{1-}, \quad (5.2)$$

wobei E_{ss} die Elektron-Elektron Wechselwirkungsenergie im Grundzustand und E_{ps} die Wechselwirkungsenergie zwischen Elektronen im Grundzustand und im angeregten Zustand darstellt. Die Veränderung von E_{12} durch das Hinzufügen eines Zuschauer-Elektrons kann durch einen Vergleich der Kurven bei -4 V und -5 V in Abbildung 5.5 abgeschätzt werden:

$$E_{12}^{1-} - E_{12}^{2-} = E_{ss} - E_{ps} \approx 11 \text{ meV}. \quad (5.3)$$

Literaturwerte [Lel96, Fon98, Nag99, Sti01a] für die Coulomb-Blockade eines zweifach negativ geladenen Quantenpunkts liegen im Bereich von 13–25 meV, wobei diese Werte von der Struktur der Quantenpunkte abhängen. Daraus lässt sich für den Intersubniveau-Übergang eine Renormalisierung von 4–9 meV herleiten. Diese stimmt gut mit dem experimentell ermittelten Wert überein. Ein anderer Literaturwert [Fri96] für $E_{ss} - E_{ps}$ wurde mit ~ 16 meV hergeleitet, was auf einen großen Einfluss der strukturellen Eigenschaften auf den Betrag der Renormalisierung schließen lässt.

Bei kleineren Vorspannungen ($|U_{CAS}| < |-4 \text{ V}|$) wird nicht nur der Grundzustand, sondern auch der angeregte Zustand von Elektronen besetzt. Das bedeutet, dass dabei auch die Wechselwirkung zwischen p-artigen Elektronen eine Rolle spielt und der Energiebeitrag E_{pp} betrachtet werden muss. Dieser Wert unterscheidet sich aber für antiparallele und für parallele Spins, was zu den entsprechenden Werten E_{pp}^A und E_{pp}^P führt. In [Nag99] wurde $E_{pp}^A - E_{pp}^P$ mit ungefähr 4–5 meV bestimmt. Deshalb wird bei den durchgeführten Experimenten für einen dreifach geladenen Quantenpunkt eine Aufspaltung der Intersubniveau-Absorption in zwei getrennte Peaks erwartet:

$$E_{12\text{low}}^{3-} = E_{12} - E_{ss} + E_{ps} + E_{pp}^P, \quad (5.4)$$

$$E_{12\text{high}}^{3-} = E_{12} - E_{ss} + E_{ps} + E_{pp}^A. \quad (5.5)$$

Dieses Verhalten kann in der Tat bei der FT-CAS Messung bei -3 V (Abbildung 5.5) beobachtet werden, wo zwei breite Peaks bei 77 meV und 103 meV deutlich erkennbar sind. Allerdings gibt es zur Zeit keine gute Erklärung, weshalb der niederenergetische Peak der -3 V Messung nicht ins Blaue verschoben ist im Vergleich zum Peak der -4 V Kurve, sondern entgegen der Erwartung sogar bei einer etwas niedrigeren Energie liegt.

Aufgrund der Messbedingungen und des durch sie auftretenden Rauschens ist es mit den vorliegenden Messungen nicht möglich, einen Wert für E_{pp}^P direkt anzugeben. Allerdings lässt sich durch einen Vergleich des höher-energetischen Peaks der -3 V Messung mit der -4 V Kurve der Wert von $E_{pp}^A \approx 20\text{ meV}$ abschätzen. Dieser Wert stimmt gut sowohl mit gemessenen Literaturwerten von 18 meV [Fri96] als auch mit berechneten Beträgen von 9 meV [Nag99] überein. Es muss hierbei betont werden, dass sowohl in den vorliegenden Messungen als auch bei [Fri96] die experimentell ermittelten Werte für $E_{ss} - E_{ps}$ und E_{pp}^A größer sind, als die in [Fri96] berechneten Ergebnisse. Diese Differenz kann zum großen Teil durch das Vernachlässigen von sowohl der *Interdot-Repulsion* als auch ladungsabhängigen Veränderungen der Energien E_{ss} und E_{ps} in den Berechnungen von [Fri96] erklärt werden. Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass es eine gute Übereinstimmung gibt zwischen den vorgestellten Intersubniveau-Absorptionsspektren und den theoretischen Betrachtungen, welche auf Mehrteilcheneffekten basieren.

Es bleibt aber die Frage, weshalb das Anlegen einer Spannung an die Probe keine größeren Auswirkungen auf die Absorption im Bereich der Übergänge vom Grundzustand der Quantenpunkte in die Benetzungsschicht und das umgebende GaAs hat. Diese Übergänge sind in Abbildung 5.2 bei Energien oberhalb von 150 meV zu beobachten. Desweiteren ist der Hauptgrund für die starke Absorption zwischen 85 meV und 110 meV in Abbildung 5.2 nicht geklärt, weil nur ein Bruchteil dieser Absorption den Intersubniveau-Übergängen zugeordnet werden kann. Es wird allerdings vermutet, dass diese breite Absorptionsgegend hauptsächlich durch die Dotierung hervorgerufen wird (entweder Übergänge von Störstellen der Dotierung in die GaAs-Bänder oder Ladungsträger-Gitter-Wechselwirkungen bei den Übergängen zu den stark dotierten Bereichen, die sich sehr weit entfernt von den Quantenpunkten befinden). Diese Vermutung wird gestützt durch die Tatsache, dass der fragliche Absorptionspeak weder von der an die Probe angelegten Spannung abhängt, noch im undotierten Substrat bei der Vergleichsmessung auftritt. Ein Ursprung in den dotierten, epitaktisch aufgewachsenen GaAs-Umgebungsschichten ist jedoch sehr wahrscheinlich aufgrund der Stärke der Absorption. Denn es wird erwartet, dass aus der direkten Umgebung der Quantenpunkte stammende Absorption ein von der angelegten Spannung abhängiges Verhalten zeigt.

Für optoelektronische Bauelemente, die auf Intersubniveau-Übergängen basieren (siehe Kapitel 6), ist diese äußere, nicht von den Quantenpunkten stammende Absorption im gleichen Energiebereich natürlich höchst unerwünscht, da sie die Eigenschaften des Bauelements negativ beeinflusst.

Abschließend soll noch einmal betont werden, dass die hier mittels FT-CAS untersuchte Situation von mehreren Ladungsträgern *einer* Sorte (Elektronen) inner-

halb eines Quantenpunkts prinzipiell verschieden ist von Situationen, bei denen sich entweder mehrere Exzitonen (also Elektron-Loch-Paare) im Quantenpunkt befinden [Hei98, Lan99, Hei00b, Sti01a] (z. B. bei PL-Experimenten mit hohen Anregungsdichten) oder bei denen neben Exzitonen auch Zuschauer-Elektronen den Quantenpunkt bevölkern [Sti01a, Tür01a, Tür01b]. Letzteres kann z. B. mittels ladungsabhängiger PLE-Spektroskopie erforscht werden [Guf03].

5.1.3 Intersubniveau-Absorptionsquerschnitt

In diesem Abschnitt wird die Stärke der beobachteten Intersubniveau-Absorption in Quantenpunkten abgeschätzt, so dass sich daraus der Absorptionsquerschnitt pro Quantenpunktschicht herleiten lässt. Dazu wird angenommen, dass die nichtstrahlende Relaxation der Ladungsträger (die mittels FT-CAS detektiert wird) über die strahlende Relaxation (die nicht mittels FT-CAS nachgewiesen werden kann) dominiert. Diese Annahme stimmt mit experimentellen Studien, die Multi-Phononen-Prozesse als den dominierenden Relaxationsmechanismus innerhalb der Quantenpunkte bestimmten [Hei97, Hei98], überein.

Zuerst wird eine Kalibration des Absorptionsgrads in Abbildung 5.2 durchgeführt, bei der die bekannten Eigenschaften der 2TO Phononenabsorption in GaAs ausgenutzt werden. Der Absorptionskoeffizient im Zentrum der 2TO Absorption in GaAs Volumenmaterial beträgt $\alpha_{2TO} = 29 \text{ cm}^{-1}$ [Cho61]. Die Dicke der untersuchten Probe wurde mit $d \approx 410 \text{ }\mu\text{m}$ bestimmt. Der maximale Absorptionsgrad

$$A_{2TO} = (1 - R)(1 - \exp[-\alpha_{2TO} \cdot d]), \quad (5.6)$$

welcher durch die 2TO Phononenabsorption in der Probe hervorgerufen wird, beträgt, nachdem er mit der spektralen Antwortfunktion des benutzten Spektrometers gefaltet wurde, $A_{2TO} = 35\%$. Der verwendete Wert $R \approx 0,273$ gibt den geschätzten Reflexionsgrad von einer GaAs-Oberfläche bei niedrigen Temperaturen unter senkrechtem Einfallswinkel an [Hel82].

Es wird angenommen, dass der Absorptionsgrad A_{2TO} im Maximum des 2TO Phononen-Absorptionspeaks in Abbildung 5.2 zusätzlich von einer Hintergrund-Absorption A_{BG} des GaAs-Substrats der Probe überlagert wird. Demnach lässt sich dann der gesamte Absorptionsgrad A_{tot} wie folgt berechnen:

$$A_{tot} = A_{2TO} + A_{BG} - \frac{A_{2TO} \cdot A_{BG}}{1 - R} \approx 41\%. \quad (5.7)$$

Das gleiche Verfahren wurde angewandt, um die Messung des GaAs-Substrats zu kalibrieren. Dabei wurde die Dicke des Substrats ($\sim 500 \text{ }\mu\text{m}$) rechnerisch auf die Dicke der Probe ($\sim 410 \text{ }\mu\text{m}$) angepasst.

Der von Intersubniveau-Übergängen stammende Absorptionsgrad kann aus den Abbildungen 5.2 und 5.5 abgeleitet werden, wenn man den jeweiligen Absorptionsgrad bei 83 meV für den Fall von zwei Elektronen pro Quantenpunkt ($A_{\text{BG, ISL}}^{83 \text{ meV}}$ bei $U_{\text{CAS}} = -4 \text{ V}$) und für den nur schwach geladenen Quantenpunkt ($A_{\text{BG}}^{83 \text{ meV}}$ bei $U_{\text{CAS}} = -5,5 \text{ V}$) betrachtet. Es folgt für den Absorptionsgrad aus Intersubniveau-Übergängen:

$$A_{\text{ISL}}^{83 \text{ meV}} = \frac{A_{\text{BG, ISL}}^{83 \text{ meV}} - A_{\text{BG}}^{83 \text{ meV}}}{1 - \frac{A_{\text{BG}}^{83 \text{ meV}}}{1-R}} \approx 19\%. \quad (5.8)$$

Aus diesem Wert kann ein Peak-Absorptionsquerschnitt für ein Elektron im Quantenpunkt von ungefähr

$$\sigma_{\text{ISL}}^{\text{CAS}} = \frac{A_{\text{ISL}}^{83 \text{ meV}}}{n_{\text{QD}} \cdot S_{\text{QD}}} \approx 2 \times 10^{-13} \text{ cm}^2 \quad (5.9)$$

hergeleitet werden, wobei $S_{\text{QD}} \approx 1,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ die Oberflächendichte der Quantenpunkte in einer Schicht und $n_{\text{QD}} = 5$ die Anzahl der Quantenpunktschichten ist. Der Querschnitt $\sigma_{\text{ISL}}^{\text{CAS}}$ basiert ausschließlich auf der Detektion der nichtstrahlenden Relaxation der angeregten Elektronen durch die FT-CAS. Der Wert lässt sich gut vergleichen mit dem Querschnitt, welcher in [Sau01] für die Detektion von *allen* (d. h. strahlenden und nichtstrahlenden) Relaxationen veröffentlicht wurde.⁹

Desweiteren lässt sich ein maximaler Absorptionskoeffizient $\alpha_{\text{ISL}}^{\text{CAS}}$ für Intersubniveau-Übergänge in Quantenpunkten aus den vorgestellten Experimenten abschätzen:

$$\alpha_{\text{ISL}}^{\text{CAS}} = \frac{-\ln(1 - A_{\text{ISL}}^{83 \text{ meV}})}{n_e \cdot d_{\text{eff}}} \approx 10^5 \text{ cm}^{-1}, \quad (5.10)$$

wobei $n_e = 2$ die Anzahl der Elektronen pro geladenem Quantenpunkt und $d_{\text{eff}} \approx 6 \text{ nm}$ die effektive Dicke der fünf Quantenpunktschichten zusammen¹⁰ beträgt. Dieser Wert ist von vergleichbarer Größe wie der Absorptionskoeffizient für Interband-Übergänge in typischen InAs/GaAs-Quantenpunkten [Kir96, Gru97a].

⁹Dort wurde ein Peak-Querschnitt $\sigma_{\text{ISL}} \approx 2 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ ermittelt für einen s-polarisierten Übergang bei 300 K von den Quantenpunkten in die Benetzungsschicht einer InAs/GaAs-Probe, die mittels Molekularstrahlepitaxie hergestellt wurde. Bei einem Vergleich mit dem hier präsentierten Wert müssen unterschiedliche inhomogene Verbreiterungen (der Peak in [Sau01] ist dreimal breiter als der hier vorgestellte) und auch verschiedene Quantenpunktformen ebenso wie die Geometrie des Lichteinfalls berücksichtigt werden.

¹⁰Flächenfüllfaktor $\sim 30\%$ pro Quantenpunktschicht [Hei00a]; angenommene effektive Höhe der Quantenpunkte $\sim 4 \text{ nm}$.

5.2 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde dargestellt, wie Intersubniveau-Übergänge in Quantenpunkten beobachtet werden können, indem das von ihnen entstammende Phononensignal direkt detektiert wird. Dieses Signal entsteht durch nichtstrahlende Ladungsträgerrelaxationen, die stattfinden, nachdem die Quantenpunkte im mittelinfraroten Spektralbereich optisch angeregt wurden. Die verwendete Messtechnik lässt sich mit dem Begriff *mittelinfrarotes Quantenpunktbolometer* gut umschreiben.

Im dem Energiebereich, in welchem die Intersubniveau-Übergänge in den Quantenpunkten stattfinden, wurde allerdings auch eine starke Absorption festgestellt, die nicht von den gebundenen Quantenpunktzuständen stammt und die damit potentiell schädlich für mittelinfrarote Quantenpunktbauelemente ist.

In ladungsabhängigen Absorptionsexperimenten wurden Änderungen der Absorption beobachtet und mit Ladungs-Effekten, der Pauli-Blockade und Mehrteilcheneffekten innerhalb der elektronischen Struktur der Quantenpunkte erklärt. Der gemessene Intersubniveau-Absorptionsquerschnitt pro Quantenpunktschicht liegt in der Größenordnung von 10^{-13} cm^2 .

6 Intersubniveau-Emission von Quantenpunkten

In diesem Kapitel werden Experimente vorgestellt und diskutiert, mit deren Hilfe strahlende Intersubniveau-Übergänge nachgewiesen werden. Strahlende Übergänge zwischen den Subniveaus von Quantenpunkten sind aus zweierlei Gründen von besonderem Interesse. Erstens bilden sie die Grundlage für eine potentielle Alternative zu den heute kommerziell erhältlichen kohärenten Lichtquellen im Bereich der mittelinfraroten Strahlung. Zum gegenwärtigen Zeitpunkt sind unipolare Laser oder Kaskadenlaser, welche Intersubband-Übergänge von Ladungsträgern in Quantenfilmen ausnutzen [Kaz71, Fai94a, Fai94b, GL97], die einzigen kohärenten, auf GaAs basierenden – und damit zu den heutzutage für die Herstellung optischer Bauelemente meistgenutzten Anlagen kompatiblen – mittelinfraroten Lichtquellen. Solche mittelinfrarote Laser dienen vor allem in Anwendungen der optischen Infrarot-Spektroskopie und bei der Gasdetektion. Intersubniveau-Emission aus Quantenpunkten kann, wenn die im Folgenden näher erläuterte Idee eines zweifarbigen Lasers, der gleichzeitig im Nah- und Mittelinfrarot emittiert [Sin96, Vor98a, Kas01], praktisch verwirklicht wird, preiswerte und verhältnismäßig einfach herzustellende Bauelemente ermöglichen. Insofern sind Untersuchungen der emittierten mittelinfraroten Strahlung wichtige Arbeiten im Hinblick auf die Entwicklung eines solchen Lasers.

Der zweite interessante Grund für die Mittelinfrarot-Spektroskopie an Quantenpunkten ist, dass sich mit ihr die Übergangsenergien zwischen den Subniveaus sowie die Relaxationspfade von angeregten Ladungsträgern erforschen lassen. Somit kann man mit ihr Grundlagenforschung an Quantenpunkten realisieren.

Zunächst wird in diesem Kapitel als Motivation für die Zielsetzung der Experimente die Idee für eine Realisierung eines mittelinfraroten Quantenpunktlasers vorgestellt. Es handelt sich hierbei um einen zweifarbigen Laser, der gleichzeitig im nah- als auch im mittelinfraroten Wellenlängenbereich emittiert. Der große Vorteil einer erfolgreichen Umsetzung dieses Prinzips wäre, dass sich entsprechende Bauelemente relativ einfach herstellen lassen.

Anschließend werden Emissions-Experimente an verschiedenen Quantenpunktstrukturen vorgestellt, die wichtige Entwicklungsschritte auf dem Weg zur Entwick-

lung eines zweifarbigen Lasers beschreiben.

Das Kapitel endet mit dem theoretischen Modell eines zweifarbigen Lasers und dem Vergleich der experimentellen und berechneten Ergebnisse.

6.1 Zweifarbige Quantenpunktlaser

Wie schon geschildert sind die einzigen zur Zeit verfügbaren kohärenten Lichtquellen im Mittelinfrarot entweder unipolare Laser [GL97] oder Quantenkaskadenlaser [Kaz71, Fai94a, Fai94b]. Letztere sind auch kommerziell erhältlich (z. B. [Alp]). Alle diese Laser arbeiten mit Quantenfilmen als aktivem Medium.

Quantenpunkte besitzen durch ihre diskreten Energieniveaus und den daraus resultierenden längeren Lebensdauern für Intersubniveau-Übergänge herausragende Eigenschaften, die sie zu einem vielversprechenden aktiven Medium für verbesserte mittel- und ferninfrarote optoelektronische Bauelemente machen (Kapitel 2). Die im Gegensatz zu Quantenfilmen erheblich reduzierte Phononenstreuung aufgrund des so genannten *phonon bottleneck effect* [Ben91, Ura01, Hei01] lässt diesen Schluss zu. Deshalb liegt es nahe, Ansätze zu entwickeln, bei denen die Quantenfilme durch Quantenpunkte als aktives Medium in mittelinfraroten Halbleiterlasern ersetzt werden.

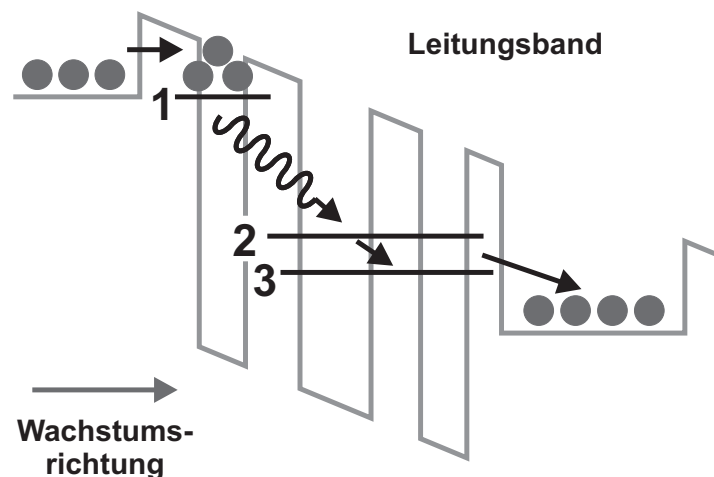


Abbildung 6.1: Schema des Leitungsbands der aktiven Zone eines Quantenfilm-Kaskadenlasers (bestehend aus drei Quantenfilmen). Die Besetzungsinversion stellt sich zwischen den Niveaus 3 und 2 ein, zwischen welchen auch der strahlende Übergang stattfindet. Der Übergang 2 auf 1 ist nichtstrahlend und besitzt eine sehr kurze Lebensdauer (ein phononischer Übergang).

Eine Möglichkeit hierzu ist, das Prinzip des unipolaren Quantenfilm-Kaskadenlasers beizubehalten (siehe Abbildung 6.1) und jene Quantenfilme in der aktiven Zone, in welchen der strahlende Übergang stattfindet, durch Quantenpunkte zu ersetzen [Win97, Bot99, Hsu00, Apa01, And03, Ulb03]. Dies ist jedoch technologisch eine gewaltige Herausforderung, da beim Wachstum der Struktur Quantenpunkte mit definierten Eigenschaften in die aus vielen Schichten bestehenden Übergitter eingefügt werden müssen, ohne dass die benachbarten Schichten an Qualität verlieren. Die erwähnten Übergitter liegen jeweils zwischen den aktiven Schichten der Struktur und dienen der Injektion der Ladungsträger in die aktiven Quantenschichten. Außerdem verhindern die in ihnen enthaltenen Mini-Bandlücken, dass die Ladungsträger die aktiven Schichten überlaufen, ohne zu emittieren.

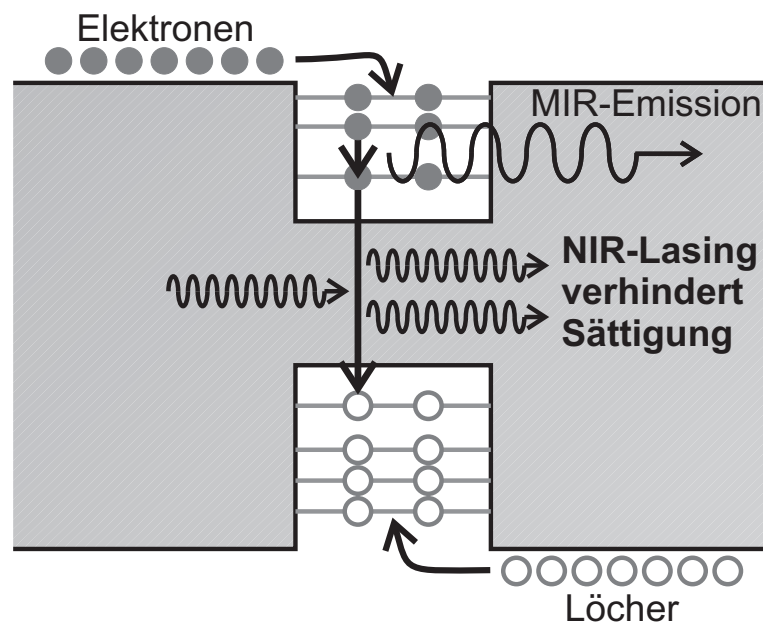


Abbildung 6.2: Schema eines bipolaren zweifarbigen Lasers, der sowohl im Nahinfrarot (NIR) als auch im Mittelinfrarot (MIR) emittiert.

Ein anderer Ansatz, stimulierte Emission aus Intersubniveau-Übergängen in Quantenpunkten zu erzeugen, ist die Idee des bipolaren zweifarbigen Lasers. Hierbei handelt es sich im Wesentlichen um einen modifizierten Interband-Laser, der neben der nahinfraroten Strahlung auch mittelinfrarotes Licht emittiert. Sein Prinzip beruht auf der Notwendigkeit, bei einem Laserübergang die Besetzung des unteren Laserniveaus möglichst gering zu halten, um eine Besetzungsinversion zu ermöglichen. Die schematische Funktionsweise wird in Abbildung 6.2 gezeigt. In diesem Beispiel ist ein elektrisch gepumpter Diodenlaser mit einem Quantenpunkt dargestellt, bei dem die Elektronen nach dem Einfang in den Quantenpunkt bei ihrer

Relaxation in den Grundzustand mittelinfrarotes Licht emittieren. Das gleichzeitige nahinfrarote Lasen verhindert, dass sich aufgrund der Pauli-Blockade und den unterschiedlichen Übergangswahrscheinlichkeiten von Intersubniveau- und Interband-Übergängen der elektronische Grundzustand auffüllt und die für das mittelinfrarote Lasen notwendige Besetzungsinversion zwischen dem angeregten elektronischen Zustand und dem Grundzustand aufhebt. Somit wird eine Sättigung der mittelinfraroten Strahlung verhindert, ohne dass kompliziert herzustellende Übergitterstrukturen, die wie beim Quantenkaskadenlaser ein laterales Entleeren des Grundzustands ermöglichen, notwendig sind. Die Idee für diesen Ansatz wurde erstmals in [Sin96] beschrieben.

Die praktischen Probleme einer Realisierung des bipolaren zweifarbigen Lasers ergeben sich vor allem aus zwei Gründen. Zum einen müssen die Quantenpunkte so beschaffen sein, dass oberhalb des elektronischen Grundzustands noch weitere gebundene Niveaus liegen und dass der Intersubniveau-Übergang von diesen in den Grundzustand auch einen genügend großen strahlenden Anteil besitzt. Zum anderen muss der Wellenleiter des Bauelements sowohl für nah- als auch für mittelinfrarote Strahlung wirksam sein und darf keine der beiden Wellenlängen übermäßig absorbieren.

Im Hinblick auf die Entwicklung eines bipolaren zweifarbigen Lasers ist es somit wichtig, die Eigenschaften der einzubauenden Quantenpunkte genau zu kennen. Insbesondere gilt es, die Relaxationsmechanismen der Ladungsträger im Quantenpunkt zu erforschen und festzustellen, unter welchen Bedingungen und bei welchen Wellenlängen sich strahlende Übergänge ergeben. Zusätzlich muss aber auch der Aufbau der die Quantenpunkte umgebenden Schichten im Hinblick auf eine zweifarbige Emission optimiert werden, da die herkömmlichen nahinfraroten Laserstrukturen extrem flache Wellenleiter (im Bereich um die 150 nm) aufweisen, welche die mittelinfrarote Strahlung nicht nur nicht führen, sondern aufgrund der vorhandenen freien Ladungsträger fast vollständig absorbieren. Es wird also letztendlich nötig sein, Laser mit dicken Wellenleitern, so genannten LOC-Strukturen, einzusetzen und zu untersuchen.

Der Grund, dass im Rahmen dieser Arbeit keine Laser mit einem für das Mittelinfrarot optimalen Wellenleiter (also mit viel größerer Dicke als bei den hier vorgestellten Proben) untersucht wurden, liegt einzig und allein darin, dass es nach dem derzeitigen Stand der Technik nicht möglich ist, in einer solchen Struktur nahinfrarotes Lasen zu ermöglichen. Da das Prinzip des bipolaren zweifarbigen Lasers aber das nahinfrarote Lasen voraussetzt, wurden als Kompromiss die größten verfügbaren Wellenleiterstrukturen untersucht, bei welchen noch nahinfrarotes Lasen auftritt.

6.2 Optisch gepumpte Emission

In diesem Abschnitt werden Messungen an optisch gepumpten Proben dargestellt. Es werden zunächst undotierte Proben ohne Wellenleiter untersucht. Anschließend werden Experimente an einer Laserstruktur dargestellt, die mit einem (in Wachstumsrichtung) dicken Wellenleiter ausgerüstet ist.

6.2.1 Experimentelle Ergebnisse

Zunächst werden Messungen an einer undotierten Quantenpunktprobe vorgestellt, um die Emission von Quantenpunkten, welche in einen sehr flachen Wellenleiter eingebettet sind, vorzustellen. Die untersuchte Probe hat den Namen QDPL (Kapitel 4). Im zweiten Teil dieses Abschnitts werden dann Proben untersucht, die einen größeren Wellenleiter besitzen.

Flacher Wellenleiter

Für die Photolumineszenz-Spektren wurde die Probe QDPL mit einem Argon-Ionenlaser bei 514 nm angeregt. Der Anregungs-Laserstrahl wurde von einem Chopper unterbrochen, um Modulations-Messtechnik einsetzen zu können. Der Laserstrahl war auf die (001) Oberfläche der Probe gerichtet und wurde mittels einer sphärischen Linse fokussiert. Das aus einer gespaltenen {110} Facette der Probe austretende Licht wurde aufgesammelt und mit dem Fourierspektrometer analysiert.

Abbildung 6.3 stellt auf der rechten Seite die Photolumineszenz-Spektren im Nahinfrarot für zwei verschiedene Anregungsdichten dar. Die gestrichelte Linie zeigt ein Spektrum unter hoher optischer Anregungsleistung, bei dem sowohl die Interband-Rekombinationen von mehreren Quantenpunktzuständen als auch von der Benetzungsschicht (WL) sowie vom GaAs-Substrat sichtbar werden. Die erkennbaren Energiedifferenzen zwischen der Elektron-Loch-Rekombination des Quantenpunktgrundzustands (QD) und dem ersten angeregten Zustand (QD*) beträgt $\Delta_0 = 78 \text{ meV}$. Der zweite angeregte Zustand liegt entsprechend bei $\Delta_1 = 156 \text{ meV}$ oberhalb des Grundzustands. Es handelt sich hierbei also um ein typisches Photolumineszenz-Spektrum einer Quantenpunktprobe [Gru96, Lip95, Ray96].

Die durchgezogene Linie zeigt das gleiche Spektrum bei einer niedrigeren optischen Anregungsleistung. Hier ist lediglich der Grundzustands-Übergang (QD) deutlich ausgeprägt – der Übergang des ersten angeregten Zustands (QD*) ist, wie jener der Benetzungsschicht, nur sehr schwach ausgeprägt.

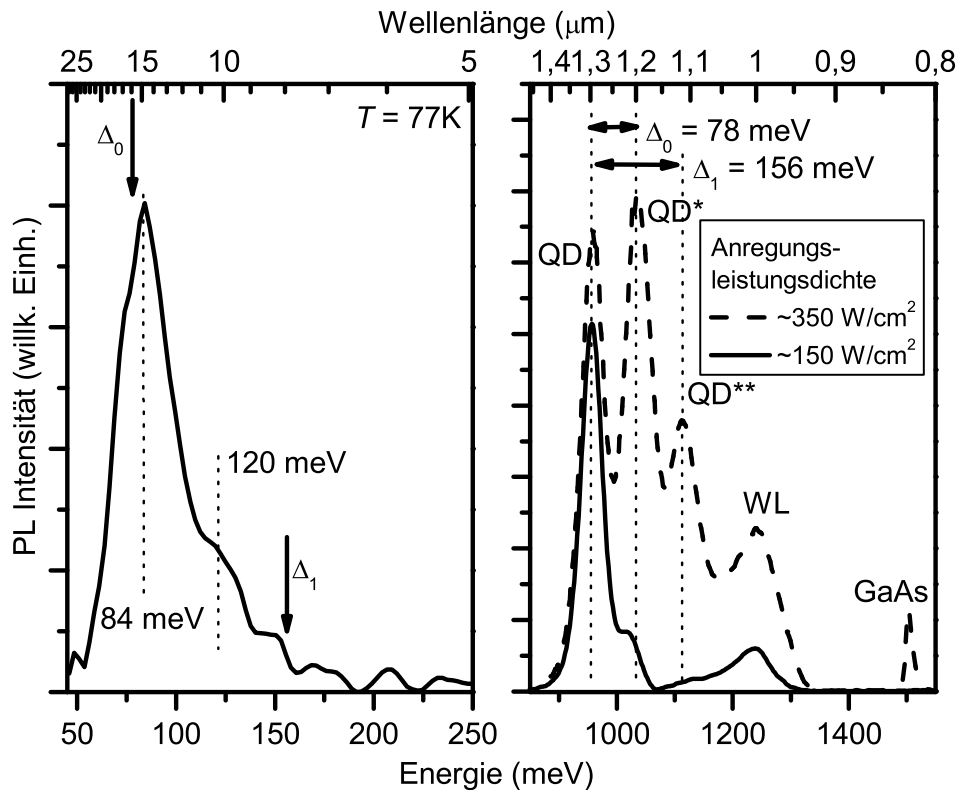


Abbildung 6.3: Mittelinfrarote (links) und nahinfrarote (rechts) Photolumineszenz-Spektren der Quantenpunktprobe QDPL. Die Spektren mit der durchgezogenen Linie wurden beide bei der gleichen niedrigen Anregungsdichte aufgenommen (Leistungsdichte $\sim 150\text{ W/cm}^2$). Ein nahinfrarotes Spektrum mit höherer Anregungsleistungsdichte ($\sim 350\text{ W/cm}^2$) ist gestrichelt dargestellt.

Der linke Teil von Abbildung 6.3 zeigt die Photolumineszenz der Probe unter niedriger optischer Anregung im Mittelinfrarot. Hier ist bei etwa 84 meV ein deutlicher Peak zu erkennen, an dessen Flanke sich bei 120 meV noch ein zweiter Peak ausmachen lässt.

Die beiden beobachteten mittelinfraroten Peaks werden strahlenden Übergängen von Elektronen zugeordnet, die jeweils von QD^* und QD^{**} zum Grundzustand QD erfolgen. Weil die effektive Masse der Elektronen sehr viel kleiner ist als die der Löcher, wird erwartet, dass diese den Hauptteil der exzitonen Rekombinations-Energien Δ_0 und Δ_1 ausmachen. Der Hauptpeak bei 84 meV ist etwas blau-verschoben, weil die Detektivität des verwendeten Detektors (ein MCT-Detektor mit einem Limit bei $\sim 55\text{ meV}$) schon stark abfällt. Also liegt der Peak scheinbar bei einer höheren Energie, als er es tatsächlich tut. Somit liegt er auch, wie man dies erwarten würde, unterhalb von der exzitonen Energiedifferenz $\Delta_0 = 78\text{ meV}$ zwischen

dem ersten angeregten Zustand und dem Grundzustand. Der angeregte Zustand ist bei etwa 120 meV zu beobachten, was, den Erwartungen entsprechend, unterhalb der Energiedifferenz $\Delta_1 = 156$ meV zwischen den exzitonischen Zuständen liegt.

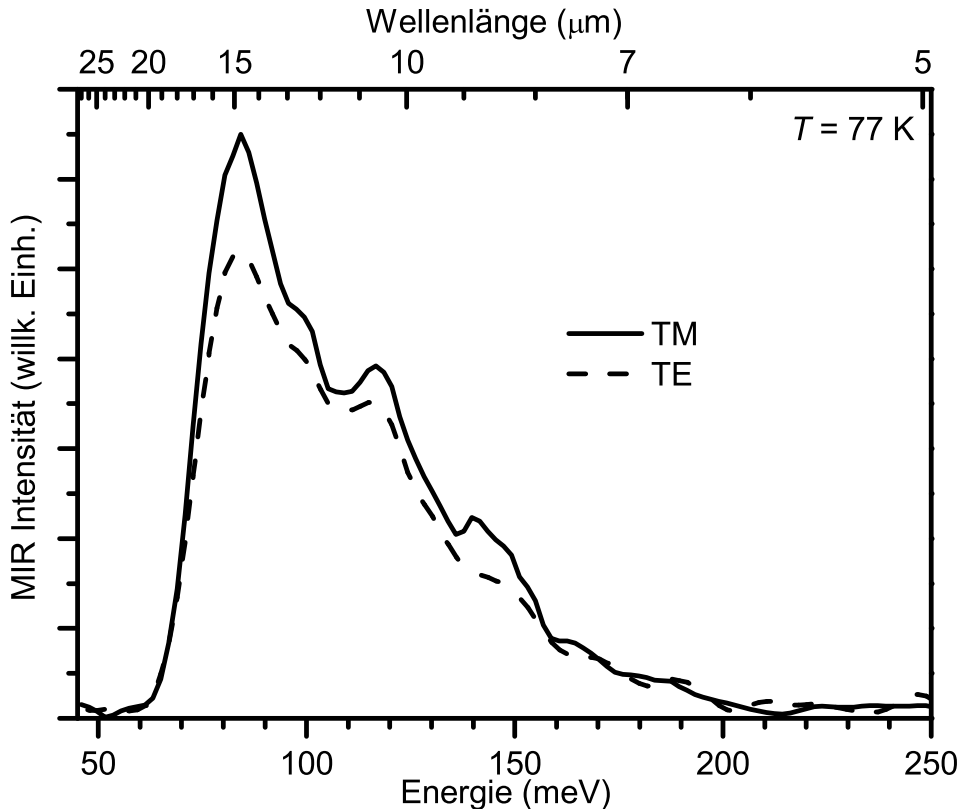


Abbildung 6.4: Mittelinfrarote Photolumineszenz-Spektren der Quantenpunktprobe QDPL für die beiden Polarisationsrichtungen TM und TE (siehe dazu auch Abbildung 6.5).

Abbildung 6.4 zeigt die Polarisationsabhängigkeit der beobachteten mittelinfraroten Emission. Die beiden Spektren wurden für die Polarisierungen in TM- und TE-Richtung¹ getrennt aufgenommen (siehe auch Abbildung 6.5, welche die räumlichen Lage dieser Richtungen schematisch darstellt). Bei den Spektren fällt auf, dass sich die Emission in den beiden Polarisationsrichtungen nicht wesentlich unterscheidet. Die TM-Emission ist bis zu 25% stärker als die in TE-Richtung polarisierte. Die beiden Peaks bei 84 meV und 120 meV sind in TM-Richtung stärker als in TE-Richtung. Zusätzlich ist in TM-Richtung ein weiterer Peak bei 147 meV sichtbar. Die Tatsache, dass die Polarisation der Emission nicht besonders stark ausgeprägt und dabei in die TM-Richtung zeigt, stellt eine Abweichung von anderen Experimenten dar [Sau99b], welche Emission vornehmlich in TE-Richtung

¹Von Transversal-Magnetisch bzw. Transversal-Elektrisch.

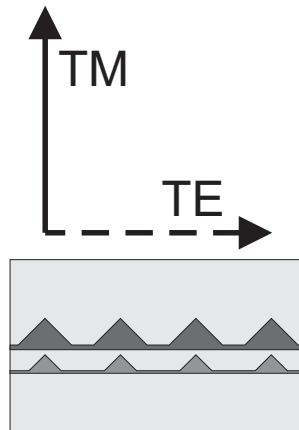


Abbildung 6.5: Skizze der räumlichen Ausrichtung der TM und TE Polarisations-Moden im Vergleich zu einer Quantenpunktprobe.

beobachtet haben. Bei jenen Experimenten kamen jedoch Proben zum Einsatz, die Quantenpunkte enthielten, welche in vertikaler Richtung elektronisch völlig ungekoppelt waren. Im vorliegenden Experiment besteht die Probe jedoch aus Quantenpunkten mit einer darunter liegenden Schicht von *Saat*-Quantenpunkten [Muk98, Xie00]. Da eine elektronische Kopplung zwischen diesen jeweils vertikal übereinander liegenden Quantenpunkten besteht, ist es nicht verwunderlich, dass die elektronische Wellenfunktion in vertikaler Richtung ausgedehnt wird und dass sich damit auch die Polarisationsrichtungen der Intersubniveau-Übergänge unterschiedlich verhalten.

Die Herkunft des polarisierten Peaks bei 147 meV ist letztendlich nicht geklärt, es könnte sich aber um einen Übergang von der Benetzungsschicht (WL) in den Grundzustand handeln.

Die Abhängigkeit der integrierten mittelinfraroten PL-Intensität von der Pumpleistung – also die $L-P_{\text{exc}}$ -Kurve – ist in Abbildung 6.6 im Bereich von 50 meV bis 200 meV dargestellt. Man beachte, dass sich die nachgewiesenen Intensitäten L im Bereich von nW bewegen – ein Wert, der nur knapp über der Nachweisgrenze des verwendeten experimentellen Aufbaus liegt. Die $L-P_{\text{exc}}$ -Kurve weist eine unterlineare Abhängigkeit mit einem Exponenten von 0,7 auf. Es gilt also im beobachteten Bereich: $L \propto P_{\text{exc}}^{0,7}$. Dies entspricht dem erwarteten Verhalten, da man mit einer Sättigung aufgrund von Auffülleffekten des Grundzustands mit Ladungsträgern und zusätzlich mit einer abnehmenden mittelinfraroten Quanteneffizienz mit zunehmender Ladungsträgeranzahl pro Quantenpunkt rechnet. Bemerkenswert ist, dass auch bei höheren Anregungsdichten von bis zu $\sim 360 \text{ W/cm}^2$ zwar eine Sättigung der Kurve, aber kein Rückgang der Emission gemessen wird. Dieses Verhal-

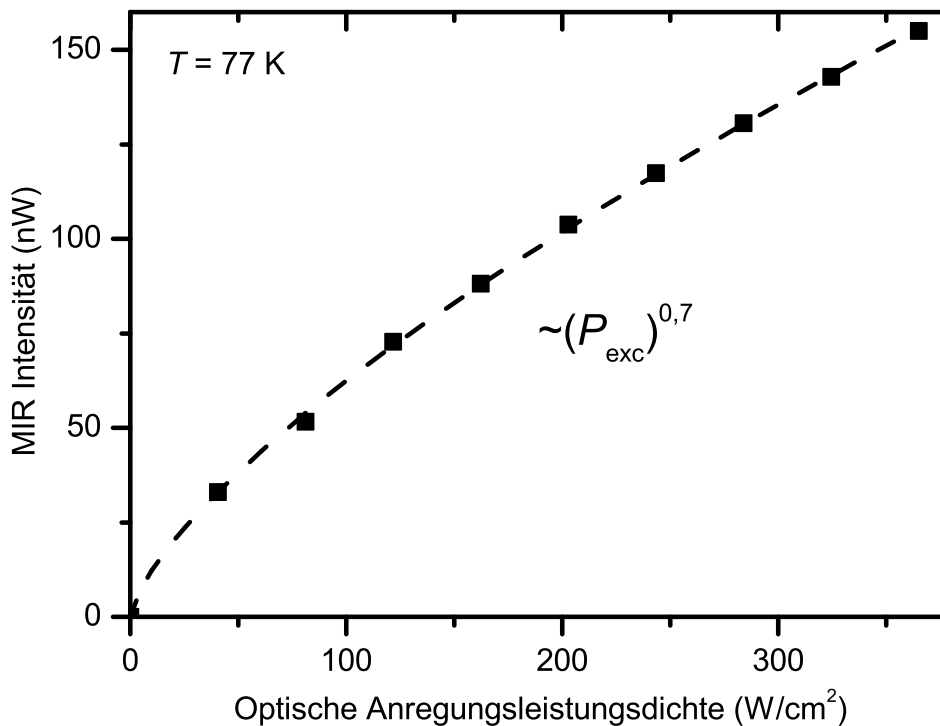


Abbildung 6.6: Integrierte mittelinfrarote Emission der Probe QDPL in Abhängigkeit der optischen Anregungsleistungsdichte P_{exc} . Die gestrichelte Linie ist proportional zu $(P_{\text{exc}})^{0,7}$.

ten der L - P_{exc} -Kurve ermöglicht es, Rückschlüsse auf den Relaxationsprozess der Ladungsträger in den Quantenpunkten zu ziehen. Eine Diskussion des Sättigungsverhaltens der Emission erfolgt in Abschnitt 6.2.3.

Dickerer Wellenleiter

Wenn man dem beschriebenen Ziel des zweifarbigen Quantenpunktlasers näher kommen möchte, muss man die Quantenpunkte in eine Struktur mit Barrieren einbauen, um einerseits das nahinfrarote Lasen überhaupt zu ermöglichen. Andererseits sollte dieser Wellenleiter auch möglichst groß (in Wachstumsrichtung) sein, so dass er auch die mittelinfrarote Emission führen kann und deren Absorptionsverluste möglichst gering bleiben. Schließlich muss darauf geachtet werden, dass in den Bereichen, in welchen sich die mittelinfrarote Strahlung ausbreitet, die Anzahl der freien Ladungsträger möglichst gering ist, da sonst der Absorptionskoeffizient groß wird. Praktisch bedeutet dies, dass man vermeiden sollte, dass das mittelinfrarote Licht dotierte Schichten durchquert.

Die folgenden Experimente wurden mit einer Probe durchgeführt, die als ein nah-

infraroter Laser designt ist (also einen Wellenleiter für nahinfrarotes Licht besitzt sowie AlGaAs-Barrieren für das Ladungsträgerconfinement) und die sich durch einen großen (d. h. in Wachstumsrichtung dicken) Wellenleiter auszeichnet, was für die mittelinfrarote Strahlung nützlich ist. Obwohl es sich von ihrem Aufbau her um eine für die elektrische Injektion hergestellte Probe handelt, wurde sie unter optischer Anregung untersucht. Dies geschah, weil man bei optischer Anregung die Beschaffenheit des Wellenleiters für Vergleichsmessungen relativ einfach verändern kann. Die beiden Proben QDWGa und QDWGb (siehe Kapitel 4) stammen vom selben Herstellungsprozess, sie haben aber eine unterschiedliche Nachbehandlung erfahren. Mittels nass-chemischen Ätzens wurden bei beiden Proben die oberen Schichten des Wellenleiters entfernt. Bei der Probe QDWGa betrug die Ätzzeit 25 s, so dass ca. $1,6 \mu\text{m}$ Material von der Probenoberfläche entfernt wurden, was zur Folge hat, dass große Teile der oberen Barriere des Wellenleiters abgetragen wurden. Die Länge der Laserkavität beträgt bei dieser Probe $L = 2,2 \text{ mm}$. Die Probe QDWGb befand sich dagegen nur 15 s im Ätzbad. Bei ihr wurde ca. $1,0 \mu\text{m}$ von der Probenoberfläche entfernt. Das entfernte Material war hier zu einem Großteil die p-dotierte Bedeckungsschicht der Probe – ihr Wellenleiter ist noch weitgehend intakt. Die Kavitätslänge dieser Probe beträgt $L = 1,0 \text{ mm}$.

Teilweise entfernter Wellenleiter. Abbildung 6.7 zeigt die nahinfraroten Emissionsspektren der Probe QDWGa bei unterschiedlichen Anregungsleistungen unterhalb und bei Erreichen der Laserschwelle. Die optische Anregung erfolgte mit einem kontinuierlichen Argon-Ionenlaser mit einer maximalen Ausgangsleistung von 3 W. Der grüne Laserstrahl wurde mit einer Zylinderlinse auf eine Brennlinie mit der Fläche $A = 0,8 \text{ mm}^2$ auf die Probenoberfläche abgebildet. Die Emission wurde aus einer Facette detektiert. Man erkennt das typische Spektrum eines Quantenpunktlasers, dessen stimulierte Emission bei einer Anregungsleistung unterhalb von 380 W/cm^2 einsetzt (bei $T = 77 \text{ K}$). Dieser Schwellwert ist für optisch gepumpte nahinfrarote Laser an sich kein guter Wert. Man muss aber berücksichtigen, dass die Probe QDWGa nicht mehr über einen vollständigen Wellenleiter verfügt, da dessen oberer Teil durch das nass-chemische Ätzen teilweise entfernt wurde. Die Spektren lassen deutlich erkennen, dass das nahinfrarote Lasen auf dem Grundzustand stattfindet.

Um höhere optische Anregungsleistungen zu erreichen, wurde für weitere Experimente der Argon-Ionenlaser durch einen diodengepumpte Festkörperlaser ersetzt. Bei optimaler Strahlfokussierung mit einer Zylinderlinse lassen sich mit dem gepulsten Festkörperlaser extreme Leistungsdichten erzeugen, die während eines Pulses (Pulslänge 10 ns, Wiederholungsrate 20 kHz) weit über der Zerstörungs-

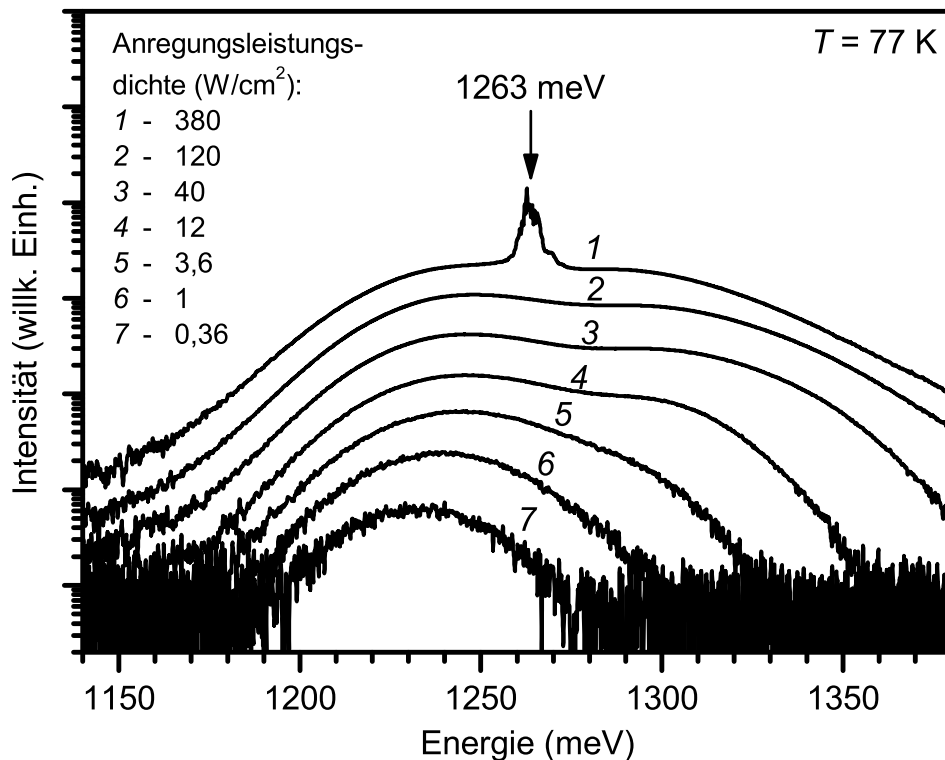


Abbildung 6.7: Spektren von nahinfraroter spontaner und stimulierter Emission der Probe QDWGa unter optischer Anregung mit einem Argon-Ionenlaser bei $T = 77$ K.

schwelle der Probe liegen.

Abbildung 6.8 zeigt die nahinfrarote Kennlinie der Probe QDWGa für zwei verschiedene Strahlfokussierungen (die angegebene Größe A stellt die Fläche dar, auf welche der Strahl jeweils abgebildet wurde). Die Kennlinie zeigt, dass oberhalb von Leistungsdichten von 5000 W/cm^2 die nahinfrarote Emission aufgrund von thermischen Effekten zusammenbricht. Dieser Effekt war noch reversibel – bei einer erneuten Messung zeigte die Kennlinie das gleiche Verhalten. Erst bei noch höheren Anregungsleistungen wurde die Probe irreversibel zerstört.

Die mittelinfraroten Emissions-Spektren der Probe QDWGa sind in Abbildung 6.9 dargestellt. Es ist deutlich ein Peak bei 71 meV zu erkennen, der eine Halbwertsbreite (FWHM) von 20 meV aufweist. In dem Graphen sind drei Spektren für unterschiedliche Anregungsleistungsdichten abgebildet, die jeweils einer Verdoppelung der Anregungsleistung entsprechen. Dabei ist das Einsetzen einer Sättigung der emittierten Intensität zu beobachten.

Abbildung 6.10 zeigt die Abhängigkeit der mittelinfraroten Emission von der Pumpleistungsdichte über einen weiten Bereich. Interessant ist hierbei die voll-

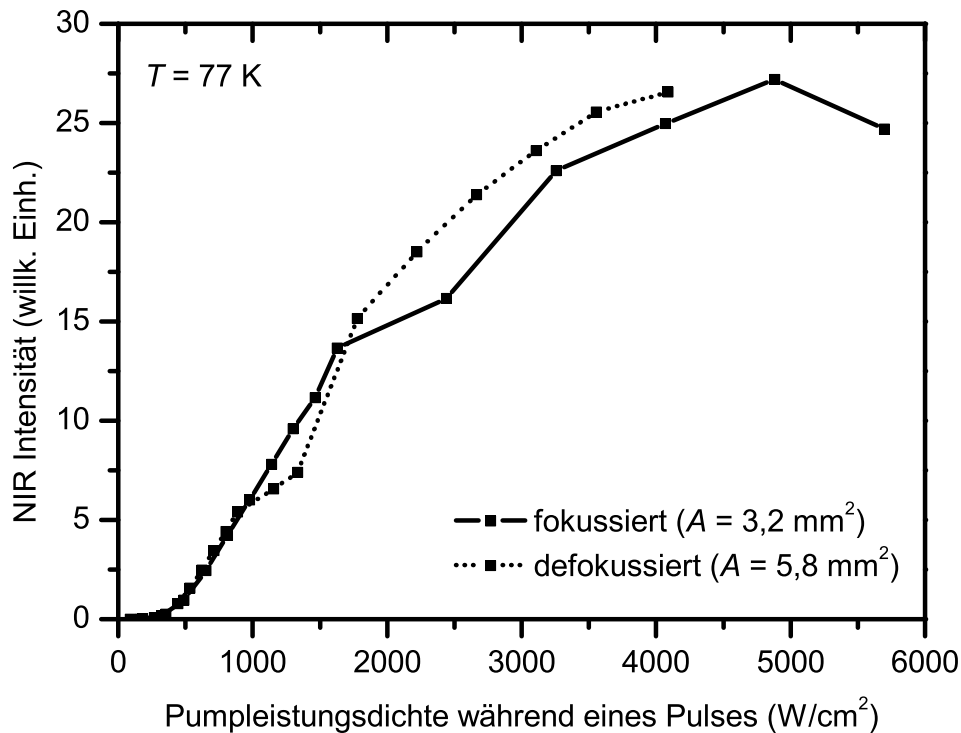


Abbildung 6.8: Kennlinien der nahinfraroten Emission der Probe QDWGa unter optischer Anregung eines diodengepumpten Festkörperlaser mit zwei verschiedenen Strahlfokussierungen.

ständige Sättigung der Strahlung oberhalb von 1000 W/cm², die aber auch keinen Intensitäts-Rückgang aufweist.

Die Probe QDWGa weist also eine mittelinfrarote Emission auf. Diese ist allerdings nur knapp oberhalb der Nachweisgrenze (siehe das Signal/Rausch-Verhältnis in Abbildung 6.9). Außerdem sättigt die Emission bei höheren Anregungsdichten stark ab. Zusätzlich weist sie auch bei niedrigeren Anregungsdichten ein unterlinneares Verhalten auf, d. h. eine Verdoppelung der Anregung verursacht weniger als die Verdoppelung der Emission.

All dies kann auf den durch das Ätzen teilweise entfernten nahinfraroten Wellenleiter der Probe zurückgeführt werden. Denn durch die schlechten Eigenschaften des Lasers im Nahinfrarot wird das Grundzustandsniveau der Quantenpunkte nicht besonders effektiv durch die stimulierte Emission geleert, so dass der Grundzustand sich bei hohen Anregungen mit Ladungsträgern auffüllt. Die Pauli-Blockade verhindert dann aber Intersubniveau-Übergänge von höheren Niveaus in den Grundzustand, was zur Folge hat, dass die bei höheren Anregungsdichten zusätzlich vorhandenen Ladungsträger nicht in den Grundzustand relaxieren (und dabei auch strah-

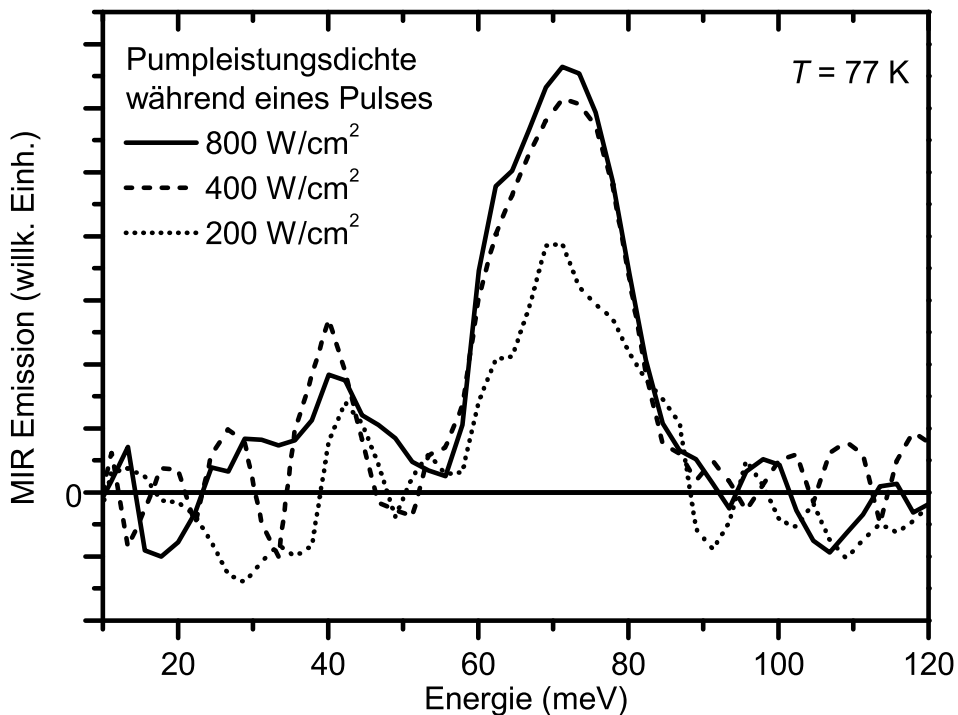


Abbildung 6.9: Spektren der mittelinfraroten Emission der Probe QDWGa unter Anregung des gepulsten Festkörperlaser bei verschiedenen Leistungsdichten.

len) können. Die beobachtete Sättigung der Emission ist eine Folge davon.

Intakter Wellenleiter. Für einen Vergleich ist es deshalb interessant, die gleiche Probe mit einem noch intakten Wellenleiter zu untersuchen. Bei der Probe QDWGb wurde lediglich die obere p-dotierte Bedeckungsschicht weggeätzt, um ein Eindringen der Anregungsstrahlung bis in die aktive Schicht mit den Quantenpunkten zu erleichtern. Der Wellenleiter selbst wurde dabei nur wenig beschädigt.

In Abbildung 6.11 sind die mittelinfraroten Spektren für diese Probe dargestellt. Es wurden drei Spektren mit jeweils zunehmender Anregungsleistung aufgenommen. Die Anregung erfolgte hierbei mit einem kontinuierlichen Argon-Ionenlaser, welcher mit 4 kHz gepulst wurde, so dass die Lock-In-Technik verwendet werden konnte. Die Spektren zeigen eine etwas breitere Emission, die aus zwei Peaks bei 97 meV und 114 meV zusammengesetzt ist.

Außerdem fällt auf, dass zwischen 160 meV und 210 meV die Emission negativ ist. Dies bedeutet die Probe absorbiert in diesem Spektralbereich die thermische Umgebungsstrahlung, welche von Außen in den auf die Temperatur von flüssigem Stickstoff gekühlten Kryostaten eindringt. Der Effekt lässt sich auch durch photo-

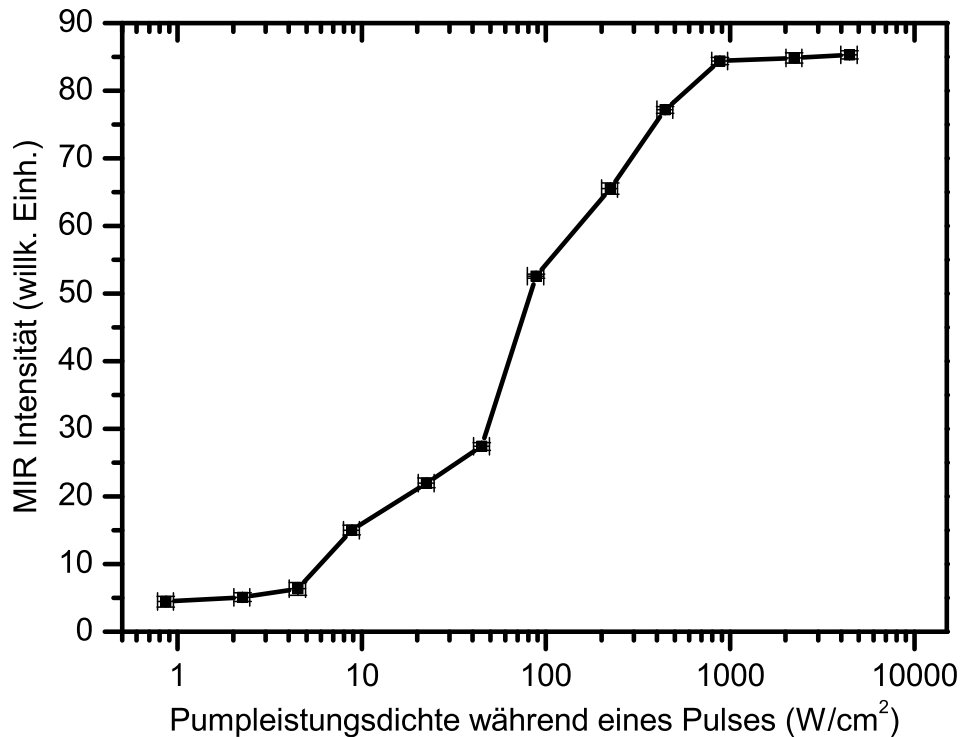


Abbildung 6.10: Abhängigkeit der integralen mittelinfraroten Emissions-Intensität aus Abbildung 6.9 von der Anregungsleistungsdichte (Probe QDWGa).

induzierte Absorption beschreiben [Ols89]. Hierbei werden z. B. Elektronen, die sich schon im Grundzustand des Quantenpunkts befinden, von der mittelinfraroten Umgebungsstrahlung angeregt und in einen höheren Zustand (z. B. die Benetzungsschicht) versetzt, noch bevor sie mit einem Loch rekombinieren können (siehe Abbildung 6.12). Die Umgebungsstrahlung wird bei diesem Prozess absorbiert. Somit tritt der auf den ersten Blick erstaunliche Effekt auf, dass im Bereich dieser Absorptionsenergie weniger Strahlung gemessen wird während der Pumplaser durch den Chopper eingeschaltet ist, als wenn der Pumplaser gerade geblockt wird. In letzterem Fall befinden sich nämlich keine Ladungsträger in den Quantenpunkten, so dass die Absorption auch nicht stattfinden kann.

Die maximalen Intensitäten der Emissionspeaks von den drei Spektren bei unterschiedlicher Anregungsdichte weisen ein sehr interessantes Verhalten auf. Sie wachsen überlinear mit der Anregungsdichte. Dieses Verhalten, welches in Abbildung 6.13 nochmals aufgetragen ist, weicht von dem erwarteten linearen Anstieg mit anschließender Sättigung deutlich ab. Es wird im folgenden Abschnitt diskutiert.

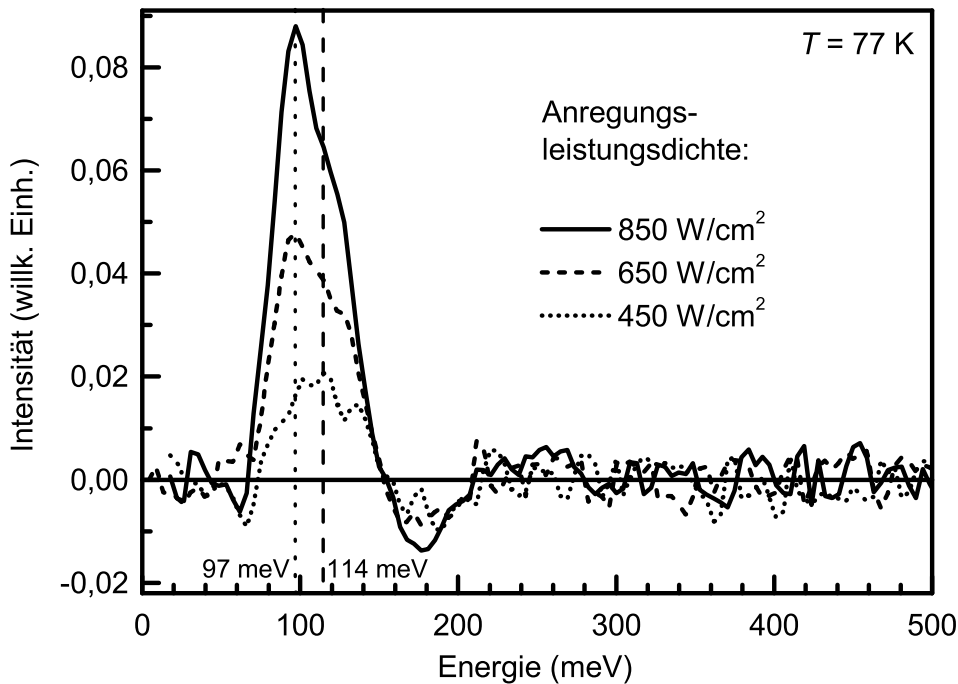


Abbildung 6.11: Spektrum der mittelinfraroten Emission unter optischem Pumpen für mehrere Anregungsdichten aus der Oberfläche der Probe QDWGb (mit einem dicken Wellenleiter).

6.2.2 Diskussion der Messungen

Die im vorangegangenen Abschnitt vorgestellten Untersuchungen der mittelinfraroten Emission aus Quantenpunkten unter optischer Anregung zeigen, dass strahlende intersubniveau-Übergänge in den Quantenpunkten stattfinden. Der Vergleich mit nahinfraroten Spektren lässt den Schluss zu, dass die beobachtete Emission aus Übergängen zwischen angeregten elektronischen Zuständen und dem Grundzustand hervorgerufen wird. Die Emission ist jeweils nur schwach in TM-Richtung polarisiert, was durch die elektronische Kopplung von übereinander liegenden Quantenpunkten erklärt werden kann.

Da die vorgestellten Experimente als Vorarbeiten zur Entwicklung eines zweifarbig bipolaren Quantenpunktlasers dienen sollen, ist natürlich die emittierte mittelinfrarote Intensität von besonderer Bedeutung. Dabei muss festgestellt werden, dass alle nachgewiesene Strahlung nur knapp oberhalb der Nachweisgrenze liegt und sich im nW Bereich befindet. Allerdings kann man durch die Analyse der Abhängigkeit der Intensität von der Pumpleistung (L - P -Kurve) Rückschlüsse auf die Entwicklung der verwendeten Probenstrukturen schließen. So erwartet man z. B. für einen idealen, nicht-sättigenden Prozess einen linearen Anstieg von L über P .

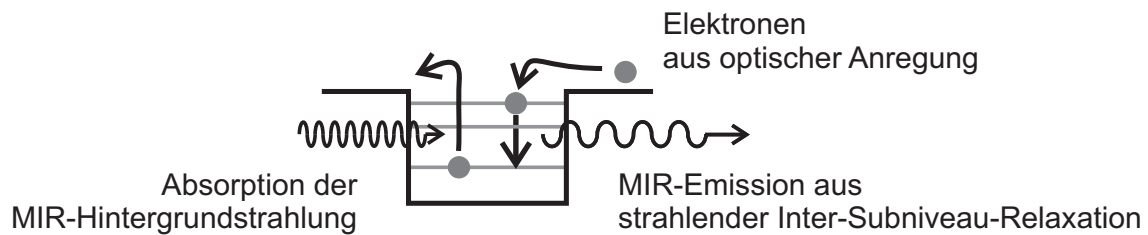


Abbildung 6.12: Schematische Darstellung des Leitungsbands eines Quantenpunkts, der unter optischer Anregung gleichzeitig mittelinfrarotes (MIR) Licht emittiert (durch strahlende Intersubniveau-Übergänge) und thermische Hintergrundstrahlung absorbiert.

Da in den tatsächlichen Quantenpunkten Sättigungseffekte auftreten, ist die Abhängigkeit von L und P meistens sogar unterlinear.

Dagegen konnte bei der Probe QDWGb ein überlinearer Anstieg der mittelinfraroten Strahlung gegenüber der Pumpleistung beobachtet werden (Abbildung 6.13). Da sich dieses Verhalten nur durch eine Emission im Lasermode – allerdings weit unterhalb der Schwelle – erklären lässt, stellt diese Beobachtung einen wichtigen Schritt in Richtung eines bipolaren zweifarbigem Quantenpunktlasers da. Zusammen mit den Simulationen eines solchen Lasers (Abschnitt 6.4) ist also nachgewiesen worden, dass das Prinzip des bipolaren zweifarbigem Quantenpunktlasers funktioniert. Weitere Schritte zur deutlichen Erhöhung der Ausgangsintensität – und damit zum Erreichen der Laserschwelle der mittelinfraroten Emission – lohnen sich also eingeleitet zu werden.

6.2.3 Diskussion des Sättigungsverhaltens der mittelinfraroten Kennlinien

Jene mittelinfraroten Kennlinien, die ein sättigendes Verhalten aufweisen – und die damit in Bezug auf einen mittelinfraroten Laser kein Erfolg sind, lassen interessante Rückschlüsse auf die in den Quantenpunkten ablaufenden Relaxationsprozesse ziehen. So weisen die in Abbildung 6.6 und Abbildung 6.10 dargestellten Kurven bei höheren Pumpleistungsdichten (bei der Probe QDWGa selbst bei höchsten Leistungen) keinerlei Intensitätsrückgang auf, sondern sie nähern sich einem konstanten Wert. Dieses Verhalten ist grundlegend unterschiedlich zu den Beobachtungen in [Sau99b] (Abbildung 6.14). Bei den dort untersuchten Proben handelt es sich ebenfalls um InAs/GaAs-Quantenpunkte, die aber eine linsenförmige Struktur besitzen. In Abbildung 6.14 bricht bei höheren Pumpleistungen die mittelinfrarote Intensität nach einem Anstieg in sich zusammen, bis sie letztlich wieder fast auf Null zurück

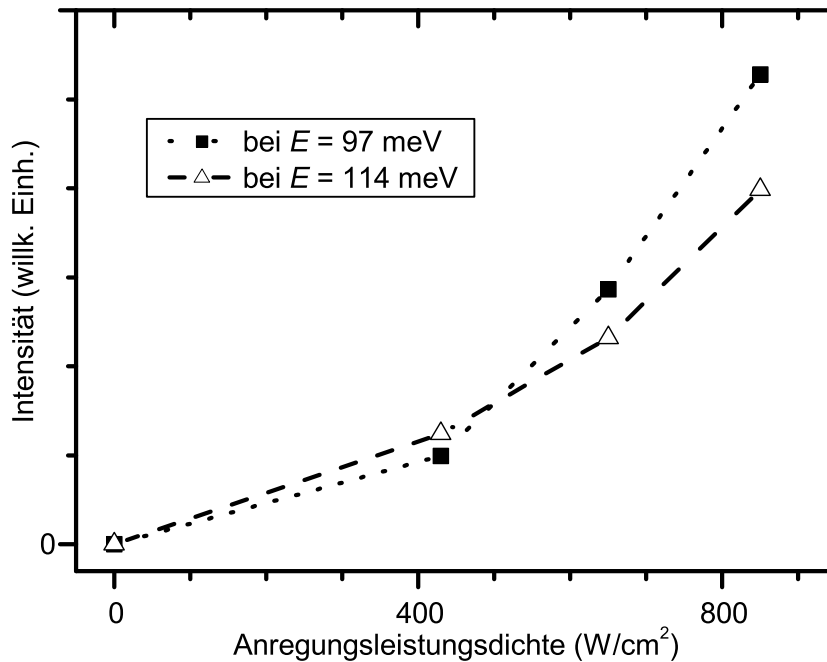


Abbildung 6.13: Abhängigkeit der Emissions-Intensität aus Abbildung 6.11 von der Anregungsdichte für die Energien 97 meV und 114 meV (Probe QDWGb). Die Verbindungslinien zwischen den Messpunkten sind lediglich Hilfslinien.

geht.

Um diesen Unterschied in den Emissionskurven zu erklären, wurde ein einfaches Modell aufgestellt, welches die mittelinfrarote Lumineszenz in Abhängigkeit von zwei unterschiedlichen Relaxationspfaden in den Quantenpunkten darstellt. Der modellierte Quantenpunkt besitzt zwei gebundene elektronische Zustände e_1 und e_2 , welche maximal jeweils zwei Elektronen aufnehmen können (siehe Schema in Abbildung 6.15). Die generierten Ladungsträger erreichen den Quantenpunkt über die Benetzungsschicht (WL) und relaxieren dann bis herunter zum elektronischen Grundzustand e_1 . Die Rekombination mit Löchern kann dabei gleichzeitig von jedem elektronischen Niveau aus erfolgen. Das Modell fasst alle Valenzbandniveaus zu einem einzigen Niveau h zusammen. Die Berechnung der Übergangsraten erfolgte nach den Mastergleichungen für Quantenpunktmikrozustände (MEM²) [Gru97b, Gru97c]. Die in die Simulation eingehenden Lebensdauern für die einzelnen Übergänge sind in Tabelle 6.1 zusammengefasst. Es wurden typische Werte für Quantenpunktübergänge verwendet. Das Ergebnis der Simulation ist die Intensität des strahlenden Übergangs $e_2 \rightarrow e_1$, welcher allerdings in starker Konkurrenz mit einem nichtstrahlenden Relaxationsprozess zwischen diesen beiden Niveaus steht.

²Von *Master Equations for quantum dot Micro-states*.

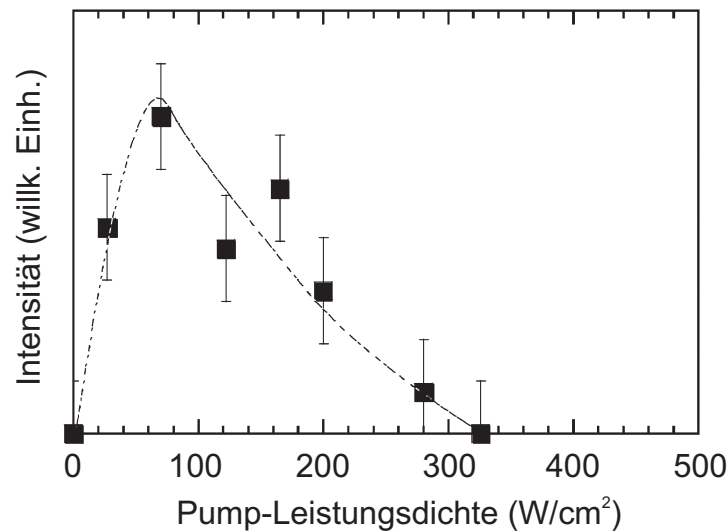


Abbildung 6.14: Abhängigkeit der Emissions-Intensität von der Pumpleistungsdichte für Intersubniveau-Übergänge von Löchern. Aus [Sau99b].

In der Simulation wurden zwei unterschiedliche Relaxationsmodelle betrachtet. Einerseits die rein kaskadische Relaxation, bei der die Ladungsträger von der Benetzungsschicht nur in den angeregten Zustand $e2$ übergehen können. Es finden hier also keine Übergänge $WL \rightarrow e1$ statt (entsprechend wurde auch eine unendliche Lebensdauer für diesen Übergang angenommen). Die Ladungsträger können den Grundzustand $e1$ folglich nur über das Niveau $e2$ erreichen.

Das andere Relaxationsmodell geht davon aus, dass der Grundzustand $e1$ auch direkt von der Benetzungsschicht erreicht werden kann.

Abbildung 6.15 zeigt das Ergebnis der Simulation. Die Rate der strahlenden Intersubniveau-Übergänge ist hier über der Pumpleistung aufgetragen. Obwohl die beiden dargestellten Kurven sich nur darin unterscheiden, dass im einen Fall $WL \rightarrow e1$ erlaubt und im anderen Fall verboten ist, weisen sie grundsätzlich unterschiedliche Charakteristika auf. Die Kennlinie der rein kaskadischen Relaxation sättigt und nähert sich einem konstanten Wert, während beim zusätzlichen direkten Einfang die Emission nach dem Erreichen eines Maximums wieder gegen Null abfällt.

Der Grund für die Sättigung an sich ist, dass die Ladungsträger bei hohen Anregungsdichten schneller erzeugt werden, als sie durch Interband-Rekombination wieder verschwinden. Damit füllt sich im zeitlichen Mittel der Quantenpunkt mit Ladungsträgern auf. Da jedes gebundene Niveau im Quantenpunkt aufgrund der Pauli-Blockade nur mit einer bestimmten Anzahl von Ladungsträgern besetzt werden kann (in diesem Modell sind es zwei), wird die Übergangsrate für den strahlenden Übergang $e2 \rightarrow e1$ somit auch limitiert.

Tabelle 6.1: In der Simulation (Abbildung 6.15) verwendete Lebensdauern für die verschiedenen Übergänge. Alle Niveaus im Valenzband werden zusammenfassend mit h bezeichnet.

Übergang	kaskadische Relaxation	kaskadische Relaxation + direkter Einfang
WL \rightarrow h		1 ns
e1 \rightarrow h		1 ns
e2 \rightarrow h		0,5 ns
WL \rightarrow e1	∞	10 ps
WL \rightarrow e2		10 ps
e2 \rightarrow e1 (nichtstrahlend)		10 ps
e2 \rightarrow e1 (strahlend)		10 μ s

Im Falle der rein kaskadischen Relaxation muss aber jedes Elektron, welches den Quantenpunktgrundzustand e1 erreicht, über das Niveau e2 kommen. Somit stellt sich bei hohen Anregungsleistungen ein Gleichgewicht ein, bei dem der strahlende Übergang ein Limit erreicht, welches durch die Relaxationsrate von WL \rightarrow e2 mitbestimmt wird.

Ganz anders ist es, wenn zusätzlich noch der direkte Relaxationspfad WL \rightarrow e1 existiert. Besitzt er nämlich, wie im vorgestellten Beispiel, eine ähnlich kurze Übergangslbensdauer wie WL \rightarrow e2 und e2 \rightarrow e1, dann wird bei hohen Anregungsdichten der Grundzustand über die einfachere (weil ohne Zwischenschritt ablaufende) Relaxation WL \rightarrow e1 aufgefüllt. Damit reduziert sich als Folge die emittierte Intensität e2 \rightarrow e1. Sie kann bei sehr hohen Anregungsleistungen sogar gegen Null abfallen. Man kann also feststellen, dass der direkte Einfang in den Grundzustand ein konkurrierender Prozess zur Intersubniveau-Emission ist.

Nach diesen Betrachtungen lässt sich folgern, dass bei den Proben QDPL und QDWGa kein direkter Übergang der Ladungsträger von der Benetzungsschicht in den Grundzustand stattfindet. Im Gegensatz dazu findet bei der in [Sau99b] untersuchten Probe auch ein direkter Einfang in den Grundzustand statt. (Die Tatsache, dass bei letzterer Probe keine Elektronen-, sondern Lochübergänge beobachtet wurden, ändert nichts an dieser Aussage. Im Modell muss man lediglich alle Elektronen- und Lochniveaus gegeneinander austauschen und erhält das prinzipiell gleiche Ergebnis.)

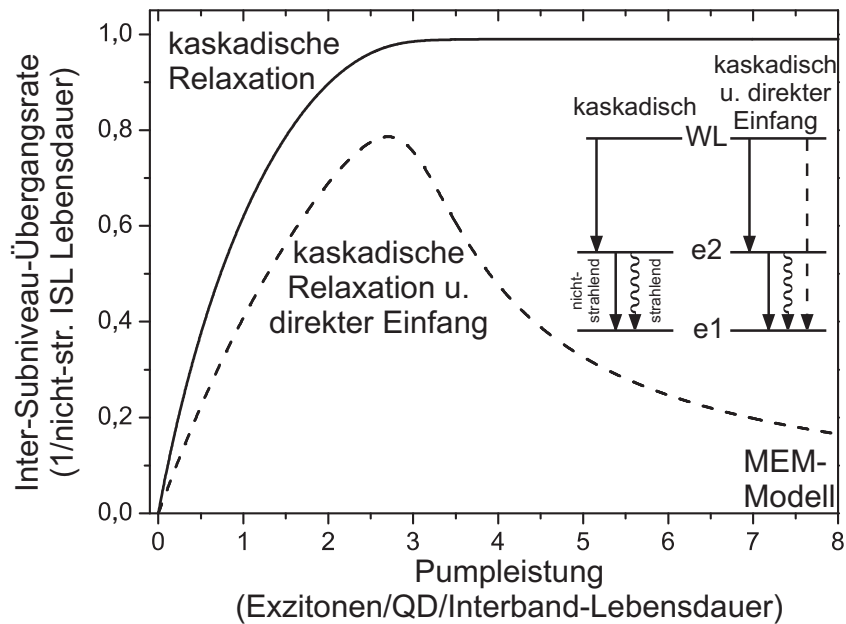


Abbildung 6.15: Mit dem MEM-Modell simuliertes Sättigungsverhalten der Intersubniveau-Emission von Quantenpunkten für zwei verschiedene Einfangmodelle: rein kaskadische Relaxation (durchgezogene Linie) und kaskadische Relaxation bei gleichzeitigem direktem Einfang (gestrichelte Linie).

6.3 Elektrisch gepumpte Emission

Dieser Abschnitt zeigt Messungen an elektrisch gepumpten Quantenpunktproben. Dabei werden bipolare nahinfrarote Quantenpunktlaser auf ihre Emissionseigenschaften im Mittelinfrarot untersucht und diskutiert. Zuletzt wird ein theoretisches Modell eines Intersubniveau-Quantenpunktlasers präsentiert.

6.3.1 Experimentelle Ergebnisse

Zunächst werden Messungen an der Probe QDL1 gezeigt, die nicht über einen für mittelinfrarote Strahlung optimierten Wellenleiter verfügt. Trotzdem lässt sich von Intersubniveau-Übergängen stammende Emission mit interessanten Eigenschaften aus ihr nachweisen. Anschließend wird die Probe QDL2, welche über einen dickeren Wellenleiter in Wachstumsrichtung verfügt, vorgestellt.

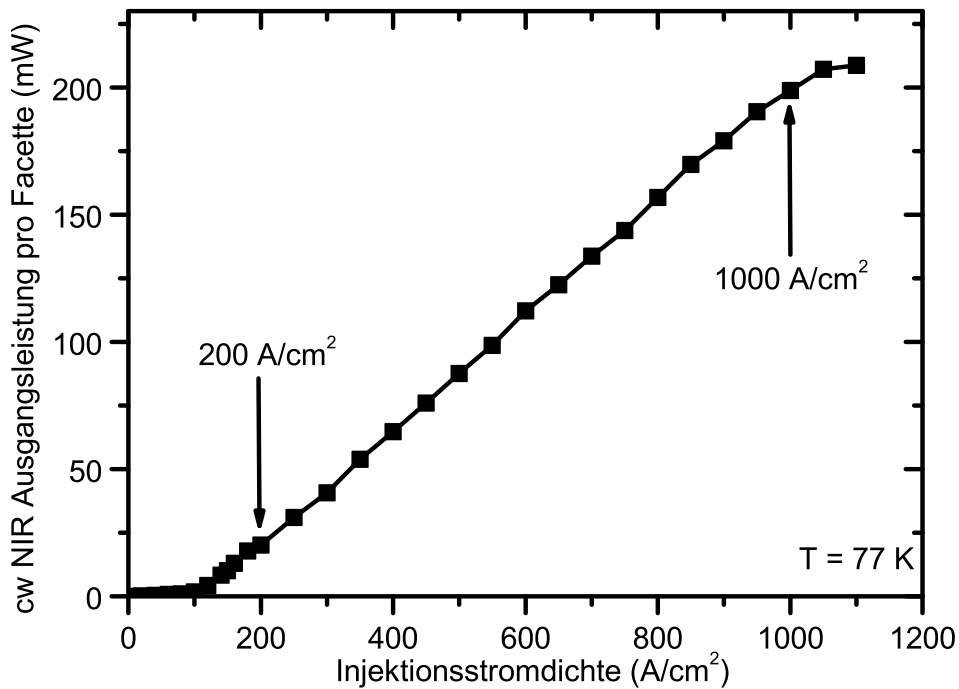


Abbildung 6.16: Kennlinie der nahinfraroten Emission der Probe QDL1. Für die beiden mit Pfeilen markierten Injektionsstromdichten werden in Abbildung 6.17 die zugehörigen nahinfraroten Spektren gezeigt.

Flacher Wellenleiter

Die Probe QDL1 ist ein bipolarer nahinfraroter Quantenpunktlaser, welcher nicht für die Untersuchungen seiner mittelinfraroten Emissionseigenschaften optimiert ist. Der genaue Aufbau des Lasers ist in Kapitel 4 beschrieben. Bei den hier vorgestellten Messungen wurde er quasi-cw und auf die Temperatur von flüssigem Stickstoff gekühlt betrieben. Abbildung 6.16 zeigt seine nahinfrarote Kennlinie. Die Emission pro Facette beträgt maximal etwa 200 mW bei einer Injektionsstromdichte von 1000 A/cm^2 . Die Laserschwelle liegt bei 91 A/cm^2 . Oberhalb der Laserschwelle verläuft die Kennlinie weitgehend linear. Zwei nahinfrarote Emissionsspektren von kurz oberhalb der Laserschwelle und nahe an der Sättigung der Emissionskurve sind in Abbildung 6.17 dargestellt. Sie sind typisch für einen Quantenpunktlaser.

In Abbildung 6.18 wird die Abhängigkeit der beobachteten mittelinfraroten Emission von der Injektionsstromdichte ($L-j$) dargestellt. Die Emission nimmt mit der Stromdichte überlinear zu und steigt bis zu einer Ausgangsleistung von 100 nW an. Die Parabel $L \propto j^{2,3}$ beschreibt den Anstieg sehr gut.

Der überlineare Anstieg entspricht nicht dem Anstieg von spontaner mittelinfra-

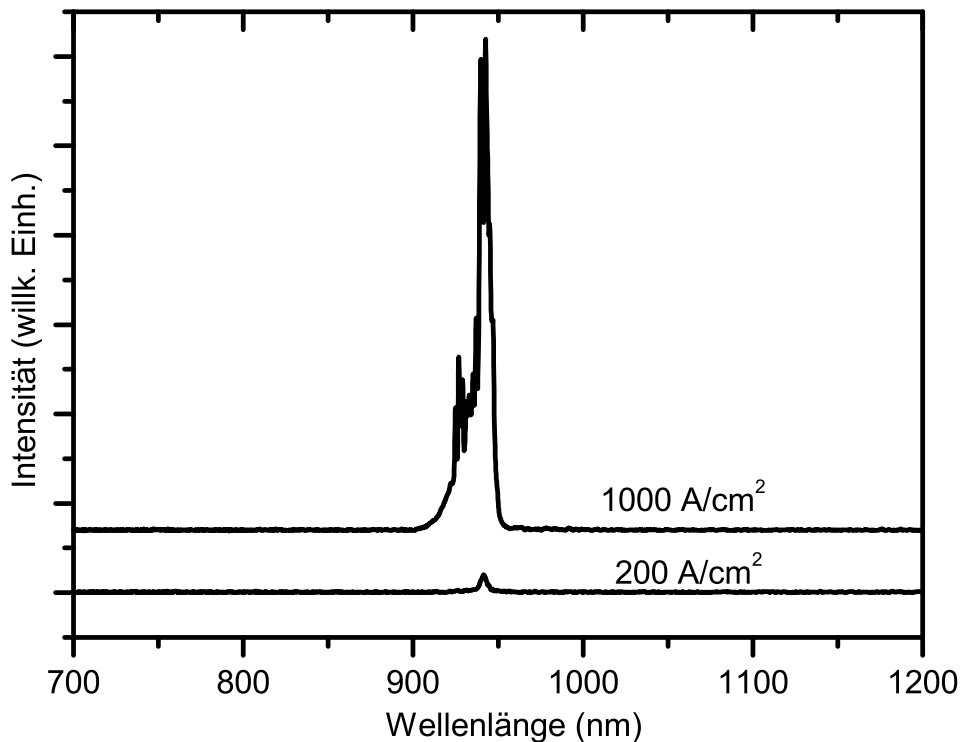


Abbildung 6.17: Spektren der nahinfraroten Emission des Lasers QDL1 für zwei ausgewählte Injektionsstromdichten. Die Graphen wurden vertikal gegeneinander verschoben.

roter Emission. Um auszuschließen, dass die fast quadratische Abhängigkeit von einer nicht-proportionalen Stromeinspeisung herrührt, ist zum Vergleich in diesem Graphen auch die eingespeiste elektrische Leistung P_{in} eingezeichnet. Sie verhält sich wie $P_{\text{in}} \propto j^{1,2}$, kann also nicht der Grund für den Exponenten 2,3 bei der emittierten Strahlung sein.

Eine Erklärung für den überlinearen Anstieg wird in Abschnitt 6.4 dargelegt: man beobachtet eine Emission, die im Lasermode ist, aber sich noch weit unterhalb der Schwelle befindet.

Die spektrale Auflösung der mittelinfraroten Emission ist in Abbildung 6.19 gezeigt. Die Spektren wurden bei einem modulierten Injektionsstrom (Frequenz 20 kHz, Abtastverhältnis 1:1, Stromdichte $j = 1,2 \text{ kA/cm}^2$) aufgenommen. Sie zeigen einen hauptsächlich TM polarisierten Peak³ bei etwa 80 meV mit einer Halbwertsbreite (FWHM) von $\sim 80 \text{ meV}$. Die geringe spektrale Breite des Peaks sowie seine Polarisationsabhängigkeit beweisen neben der schon beschriebenen überlinearen Abhängigkeit von der injizierten elektrischen Leistung, dass es sich dabei nicht um

³Die räumliche Ausrichtung der TM und TE Polarisations-Moden ist in Abbildung 6.5 skizziert.

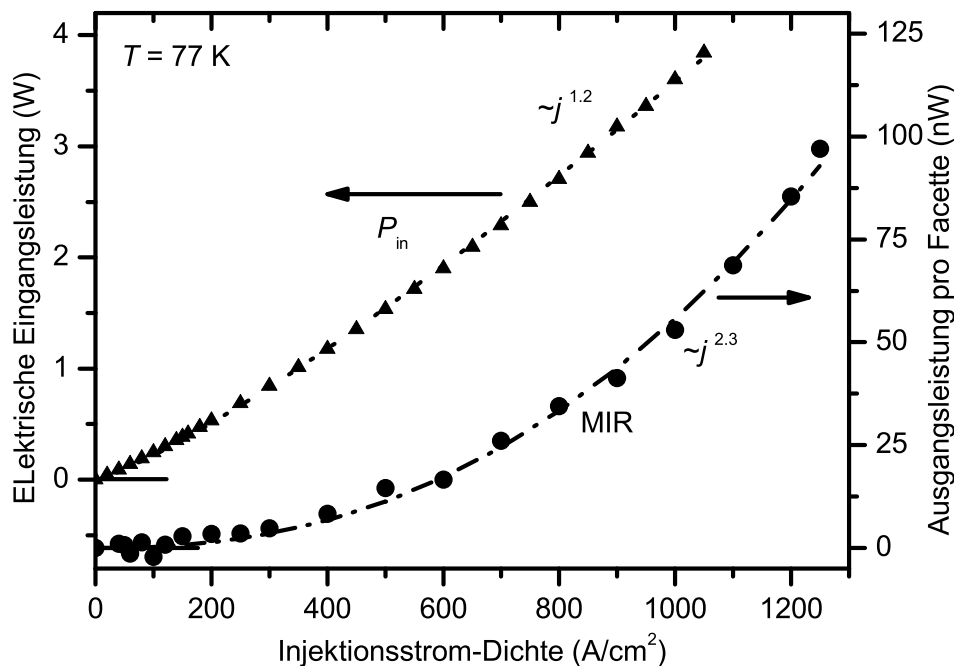


Abbildung 6.18: Rechte Skala: Abhängigkeit der Intensität der mittelinfraroten Emission von der Injektionsstromdichte j für den Laser QDL1. Die gestrichpunktete Linie für das Mittelinfrarot (MIR) ist eine Kurve proportional zu $j^{2.3}$. Linke Skala: Angelegte elektrische Eingangsleistung P_{in} in Abhängigkeit von der Injektionsstromdichte des Quantenpunktlasers QDL1. Die gepunktete Linie stellt eine Kurve proportional zu $j^{1.2}$ dar.

thermische Schwarzkörperstrahlung handeln kann. Da die in Abbildung 6.17 gezeigten Spektren bei unterschiedlichen Anregungsleistungen nur eine vernachlässigbare thermische Verschiebung erfahren, kann man auch ein Aufheizen der Probe ausschließen. Deshalb kann man die Emission einem Intersubniveau-Übergang innerhalb der Quantenpunkte zuordnen. Aufgrund der für die beobachtete Emission viel zu kleinen energetischen Abstände der Subniveaus im Valenzband lässt sich folgern, dass der beobachtete Peak von elektronischen Übergängen herrührt.

LOC-Struktur

Der Laser QDL2 ist mit einer LOC-Struktur ausgestattet (Abschnitt 4.2.2). Sie soll die Verluste des mittelinfraroten Lichts durch Absorption an freien Ladungsträgern in den dotierten Schichten verringern. Im Gegensatz zur Probe QDWGb ist der Wellenleiter gar nicht dotiert, dafür ist er aber schmaler.

In Abbildung 6.20 sind nahinfrarote Emissionsspektren der Probe in der Nähe der Laserschwelle von $j_{thr} = 50 \text{ A/cm}^2$ (bei einer Temperatur von 77 K) dargestellt.

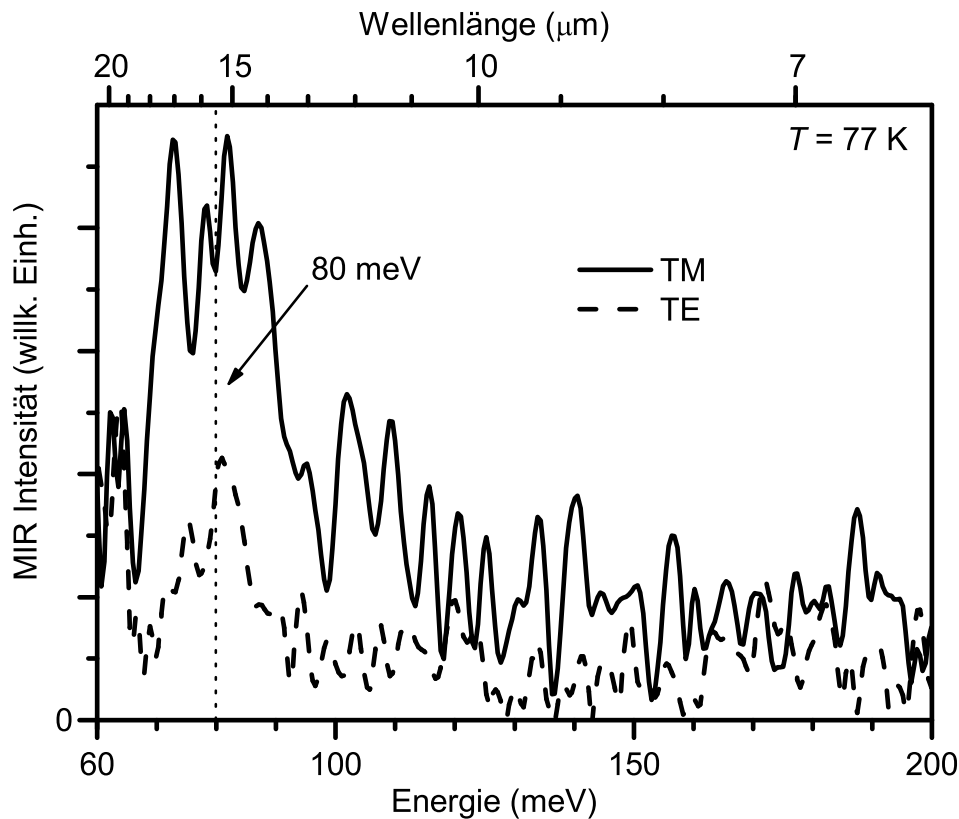


Abbildung 6.19: Polarisierte mittelinfrarote Emissions-Spektren des nahinfraroten Quantenpunktlasers QDL1 bei einer Injektionsstromdichte von $j = 1,2 \text{ kA/cm}^2$.

Der Laser emittiert bei dieser Temperatur auf dem Grundzustand bei etwa 1,33 eV (932 nm).

Die zugehörige nahinfrarote Kennlinie ist in Abbildung 6.21 geplottet. Sie zeigt, dass der Streifenlaser über 1,5 W pro Facette emittieren kann. Es handelt sich also um einen Hochleistungslaser.

Abbildung 6.22 zeigt das mittelinfrarote Emissionsspektrum des Lasers QDL2 bei einer Injektionsstromdichte $j = 4,6 \text{ kA/cm}^2$ und der Temperatur $T = 77 \text{ K}$. Die Anregung erfolgte im quasi-cw Betrieb bei 800 Hz und einem Tastverhältnis von 1:1.

Ein deutlicher Emissionspeak lässt sich bei 68 meV erkennen. Seine Halbwertsbreite beträgt etwa 20 meV. Daneben befindet sich bei 48 meV ein mit 8 meV Breite viel schmalerer zweiter Peak. Eine Polarisation der Peaks konnte nicht nachgewiesen werden.

Auch bei dieser Messung wird davon ausgegangen, dass die mittelinfrarote Emission von Intersubniveau-Übergängen in den Quantenpunkten stammt. Die nicht vorhandene Polarisationsabhängigkeit der Emission kann wiederum mit der Art der

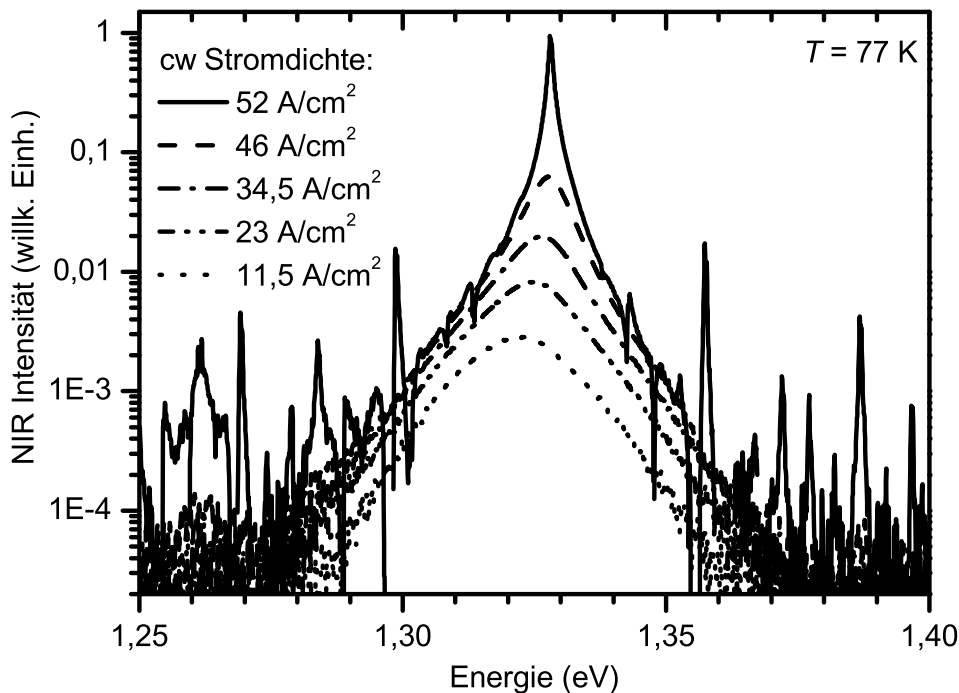


Abbildung 6.20: Nahinfrarote Emissionsspektren des Quantenpunktlasers QDL2 für ansteigende Injektionsströme.

Quantenpunkte erklärt werden: durch den sehr geringen Abstand der einzelnen Lagen ergibt sich eine elektronische Kopplung der Quantenpunkte in Wachstumsrichtung, so dass die Polarisationsseigenschaften stark von denjenigen abweichen können, die man von einzelnen Quantenpunkten erwartet [Sti99].

6.4 Theoretisches Modell eines Intersubniveau-Quantenpunktlasers

In den vorangegangenen Abschnitten wurden mehrere Kennlinien der mittelinfraroten Emission von bipolaren nahinfraroten Lasern gezeigt. Die Kennlinien der Laser QDWGb und QDL1 weisen interessanterweise einen überlinearen Anstieg der Emission mit dem Injektionsstrom (bzw. mit der optischen Anregungsdichte) auf, der durch einfache spontane Emission nicht erklärbar ist.

Deshalb wird im Folgenden ein einfaches Modell vorgestellt, das die Vorgänge in einem elektrisch gepumpten Quantenpunktlaser simuliert. Es wird sich ergeben, dass der beobachtete überlineare Anstieg der mittelinfraroten Emission durch Strahlung im Lasermode weit unterhalb der Laserschwelle erklärt werden kann. Auf der

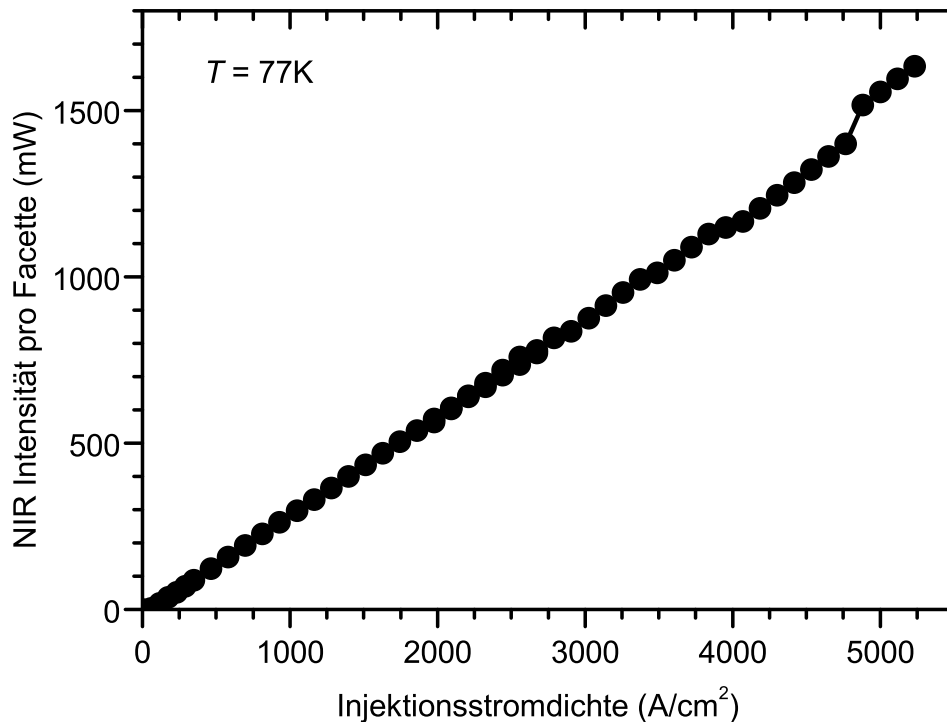


Abbildung 6.21: Kennlinie der nahinfraroten Emission des Quantenpunktlasers QDL2.

anderen Seite wird bestätigt, dass einfache spontane Emission nicht für einen überlinearen Anstieg verantwortlich ist.

6.4.1 Annahmen für das Modell

Für das Modell werden Quantenpunkte mit zwei elektronischen Energie-Zuständen angenommen (dem Grundzustand mit der Energie E_1^e und dem angeregten Zustand mit E_2^e , siehe Abbildung 6.23). Die Zustände können maximal mit jeweils zwei bzw. vier Elektronen aufgefüllt werden. Der energetische Abstand zwischen den beiden Elektronenzuständen $E_{\text{MIR}} = E_2^e - E_1^e$ soll im mittelinfraroten Spektralbereich liegen. Elektronen aus den beiden Zuständen können mit Löchern, die gebundene Zustände im Valenzband besetzen, rekombinieren. Ähnlich wie in [Sin96] wird angenommen, dass die Löcher schnell in die nieder-energetischen Valenzband-Zustände relaxieren und somit ständig für Elektron-Loch-Rekombinationen zur Verfügung stehen. Die dabei entstehenden nahinfraroten Photonen sollen jeweils die Energien E_1 und E_2 besitzen. Die Zeitkonstante für die spontane nahinfrarote Rekombination τ_r wird hier mit $\tau_r = 1$ ns für beide Elektronen-Zustände angenommen. Die interne Quanteneffizienz ist 1. Elektronen vom oberen Energiezustand E_2^e können

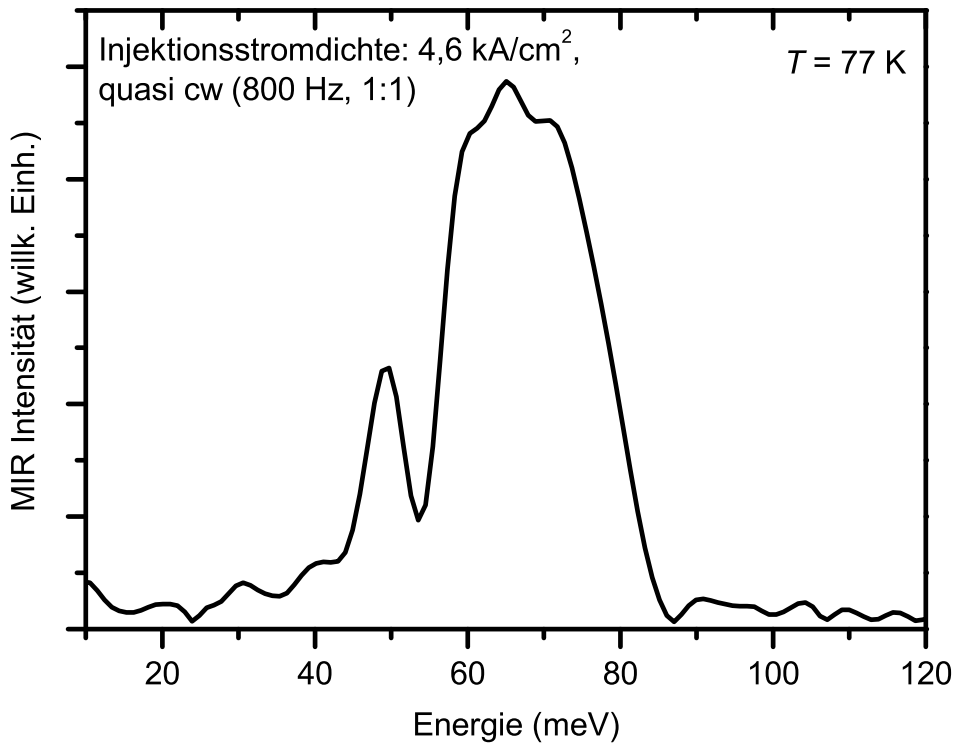


Abbildung 6.22: Mittelinfrarotes Emissionsspektrum des Quantenpunktlasers QDL2.

via Intersubniveau-Relaxation mit einer Zeitkonstante τ_0 in den unteren Zustand E_1^e übergehen. Für die vorliegende Berechnung wurde $\tau_0 = 100$ ps mit einer Quanteneffizienz von 0,01 angenommen. Das System soll mit Elektronen und Löchern durch elektrische Injektion in die Barriere gepumpt werden. Die Elektronen werden schnell (innerhalb von 10 ps) von der Barriere in den oberen Elektronenzustand eingefangen.

Für die Beschreibung des geschilderten Systems wurde ein Modell aufgestellt, welches die Mastergleichungen für Quantenpunktmikrozustände (MEM) [Gru97b, Gru97c] benutzt. Die Mikrozustände sind Besetzungen der Quantenpunkte mit $0 \leq n \leq 6$ Elektronen. Die Wahrscheinlichkeit, dass man einen bestimmten Mikrozustand mit n_1 Elektronen im Grundzustand und mit n_2 Elektronen im angeregten Zustand findet, wird mit $w_{n_1 n_2}$ bezeichnet, wobei $0 \leq n_1 \leq 2$ und $0 \leq n_2 \leq 4$ gelten. Die Besetzung z. B. des Grundzustands ist damit durch

$$f_1 = \sum_{i=0}^4 (w_{1i} + 2w_{2i}) \quad (6.1)$$

gegeben.

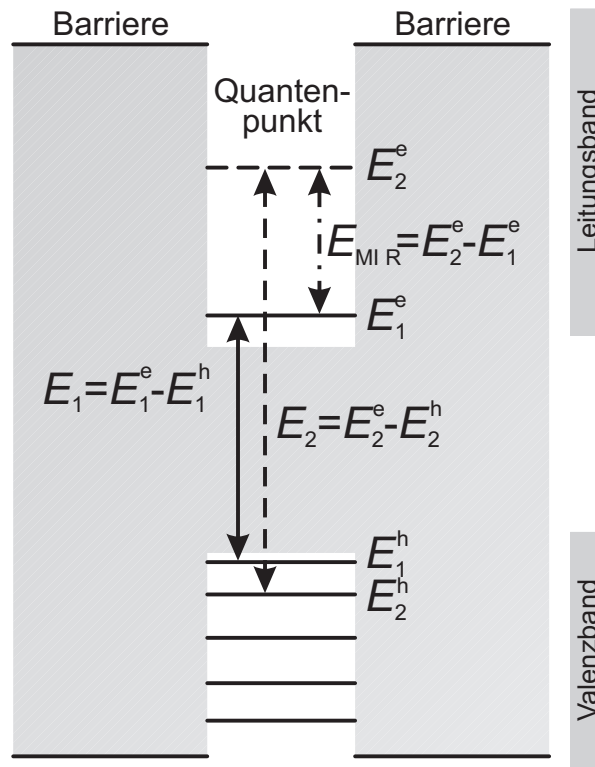


Abbildung 6.23: Schema der Energieniveaus und Ladungsträger-Übergänge in einem Quantenpunkt, wie sie im beschriebenen Modell verwendet werden.

Die Dichten der Photonen werden mit P_1 und P_2 für die nahinfraroten Lasermoden jeweils bei den Energien E_1 und E_2 beschrieben. Entsprechend ist die Photonen-Dichte im Mittelinfrarot P_{MIR} bei der Energie E_{MIR} . Die maximalen Gewinne heißen im Nahinfrarot g_1^{max} , g_2^{max} und im Mittelinfrarot $g_{\text{MIR}}^{\text{max}}$. Die jeweiligen Verluste bei diesen drei Energien sind mit α_1 , α_2 und α_{MIR} benannt. Jeder dieser Verluste α ist bestimmt durch

$$\alpha = \alpha_{\text{int}} + \alpha_{\text{mirr}}, \quad (6.2)$$

wobei α_{int} die internen Verluste beschreibt. Die Spiegelverluste betragen

$$\alpha_{\text{mirr}} = \frac{-\ln(R_f \cdot R_b)}{L}. \quad (6.3)$$

L gibt die Länge der Laserkavität an und R_f , R_b jeweils die Reflektivitäten der vorderen und hinteren Facetten der Kavität. Typische interne Verluste sind 2 cm^{-1} . Die Spiegelverluste für unbehandelte, gespaltene Facetten mit (typischerweise) $R = 0,3$ bei einer Laserlänge von 1 mm betragen $\alpha_{\text{mirr}} = 12 \text{ cm}^{-1}$. Im Falle einer hoch

reflektiven hinteren Laserfacette erhält man $\alpha_{\text{mirr}} = 6 \text{ cm}^{-1}$. Der Koeffizient der spontanen Emission β , welcher den Anteil der spontan ausgesendeten Photonen, die in den Lasermode übergehen, beschreibt, ist auf einen typischen Wert von 10^{-5} gesetzt.

6.4.2 Ergebnisse der Simulation

Nahinfrarote Laserschwelle

Mit steigendem Injektionsstrom werden sowohl der Grundzustand als auch der angeregte Zustand stärker besetzt. Die Grundzustandsbesetzung mit Elektronen (genau genommen mit Exzitonen, weil angenommen wird, dass zu jedem Elektron ein entsprechendes Loch zur Verfügung steht) wird invertiert, wenn die Besetzung $f_1 > 0,5$ wird. Nahinfrarotes (also Interband-) Lasen beginnt, wenn

$$(2f_1 - 1)g_1^{\text{max}} \geq \alpha_1. \quad (6.4)$$

Die Bedingungen für diese Schwelle, bei der bei Quantenpunktlasern das Lasen einsetzt, werden in [Gru97a] beschrieben. Für einen maximalen Gewinn $g_1^{\text{max}} = 50 \text{ cm}^{-1}$ und $\alpha_1 = 14 \text{ cm}^{-1}$ beträgt die Besetzung des Grundzustands an der Laserschwelle $f_1^{\text{thr}} = 0,64$. Dabei ergibt sich ein Schwellstrom von $i_1^{\text{thr}} = 1,8 \text{ Elektronen}/\tau_r$. Für eine typische Quantenpunktoberflächendichte von $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ und $\tau_r = 1 \text{ ns}$ entspricht dieser Schwellstrom einer Schwellstromdichte von $j_1^{\text{thr}} = 30 \text{ A}/\text{cm}^2$.

Nachdem die nahinfrarote Laseremission auf dem Grundzustand eingesetzt hat, wird bei einer weiteren Erhöhung des Stroms die Besetzung f_1 auf ihren Wert bei der Laserschwelle festgepinnt, d. h. sie bleibt konstant [siehe Abbildung 6.24(a)]. Unterhalb der Schwelle nimmt der Gewinn der mittelinfraroten Strahlung mit steigendem Injektionsstrom ab, weil sich die Besetzung des Grundzustands erhöht [Abbildung 6.24(c)]. Oberhalb der Schwelle steigt die nahinfrarote Laseremission des Grundzustands (bei E_1) linear an [Abbildung 6.24(e)]. Genauso erhöhen sich in diesem Bereich die Besetzung f_2 des angeregten Zustands [Abbildung 6.24(a)] und, als Folge davon, der mittelinfrarote Gewinn [Abbildung 6.24(c)]. Jener mittelinfrarote Gewinn kann schließlich positiv werden, wenn

$$f_2 > f_1 = f_1^{\text{thr}} \quad (6.5)$$

wird. In diesem Fall läge eine Besetzungsinversion für den Intersubniveau-Übergang vor, so dass prinzipiell ein mittelinfraroter Laser möglich wäre.

Nahinfrarotes Lasen auf dem angeregten Zustand

Allerdings kann die hohe Ladungsträgerbesetzung des angeregten elektronischen Zustands dazu führen, dass Lasen auf dem angeregten Zustand bei E_2 einsetzt [Abbildung 6.24(e)].

Es wird zunächst der Fall betrachtet, dass die Verluste bei E_1 und E_2 identisch sind, also $\alpha_1 = \alpha_2$. Wenn für die maximalen Gewinne $g_2^{\max} = g_1^{\max}$ gilt, dann wird das Lasen bei der gleichen Ladungsträgerbesetzung der beiden Zustände beginnen. Das ist bei $f_2^{\text{thr}} = f_1^{\text{thr}}$. In diesem Fall erreicht der mittelinfrarote Übergang gerade Transparenz – mittelinfrarotes Lasen kann also nicht einsetzen.

Betrachtet man den Fall, dass $g_2^{\max} > g_1^{\max}$ ist, dann wird die Besetzung sogar noch kleiner sein:

$$0,5 < f_2^{\text{thr}} < f_1^{\text{thr}}. \quad (6.6)$$

In der hier vorgestellten Modellrechnung wurde $g_2^{\max} = 1,2 \times g_1^{\max}$ gewählt und es ergibt sich $f_2^{\text{thr}} = 0,62$. Oberhalb der Schwelle bleibt f_2 konstant auf seinem Schwellwert [Abbildung 6.24(a)] und das mittelinfrarote Lasen kann deshalb nicht einsetzen. Wenn Lasen auf dem angeregten Niveau E_2 beginnt, dann wächst die Intensität der Laserstrahlung des Grundzustands E_1 nicht weiter an [Abbildung 6.24(e)], weil die stimulierte Emission auf dem angeregten Zustand beginnt, viel schneller abzufließen als die Intersubniveau-Relaxation.

In diesen betrachteten Fällen ist also das Einsetzen von mittelinfrarotem Lasen unmöglich.

Mittelinfrarotes Lasen

Wenn allerdings g_2^{\max} ausreichend klein gegenüber g_1^{\max} ist, dann kann der mittelinfrarote Laser starten, noch bevor das nahinfrarote Lasen auf dem angeregten Zustand bei E_2 einsetzt.

Die Unterdrückung des nahinfraroten Lasens auf dem angeregten Zustand kann z. B. dadurch erfolgen, dass die Verluste α_2 erhöht werden – beispielsweise durch eine Antireflexions-Beschichtung bei E_2 auf einer Facette. In diesem Fall [Abbildung 6.24(b), (d), (f), (h)] kann kein Lasen auf der Energie E_2 stattfinden und die Ladungsträgerbesetzung des angeregten Elektronenzustands f_2 wird sich auch über den Wert f_1^{thr} hinaus erhöhen [Abbildung 6.24(b)].

Die maximale mögliche Besetzungsinversion innerhalb des Leitungsbands $f_2 - f_1$

beträgt $1 - f_1^{\text{thr}}$. Daraus ergibt sich, dass der mittelinfrarote Laser anlauft, wenn

$$(1 - f_1^{\text{thr}})g_{\text{MIR}}^{\text{max}} > \alpha_{\text{MIR}} \quad (6.7)$$

erfullt wird.

Eine zusatzliche Beschichtung der Facette, welche die Reflektivitat bei E_1 erhohet, erlaubt es, f_1^{thr} zu verringern und dadurch das mittelinfrarote Lasen zu erleichtern. In der vorgestellten Simulation wurden die folgenden Werte verwendet: $g_{\text{MIR}}^{\text{max}} = g_1^{\text{max}}$, $\alpha_{\text{MIR,mirr}} = 12 \text{ cm}^{-1}$, $\alpha_{1,\text{mirr}} = 6 \text{ cm}^{-1}$ (eine hoch reflektierende Beschichtung bei E_1) und $\alpha_{2,\text{mirr}} = 42 \text{ cm}^{-1}$ (eine Facette mit einer Antireflexions-Beschichtung von 10^{-3} bei E_2).

In diesem Fall ergibt sich fur die nahinfrarote Laserschwelle bei E_1 ein Wert von $i_1^{\text{thr}} = 1,6 \text{ Elektronen/t}_r$. Der vorhergesagte Schwellstrom fur das mittelinfrarote Lasen ist $i_{\text{MIR}}^{\text{thr}} = 18,5 \text{ Elektronen/t}_r = 11,6 \times i_1^{\text{thr}}$, was mit den zuvor vorgestellten Annahmen etwa einer Stromdichte von 300 A/cm^2 entspricht [Abbildung 6.24(f)].

Mittelinfrarote Emission unterhalb der Laserschwelle

Unterhalb der Schwelle zum nahinfraroten Lasen auf dem angeregten Zustand (bei E_2) oder zum mittelinfraroten Lasen entwickelt sich die spontane mittelinfrarote Emission linear mit dem Injektionsstrom und verlauft oberhalb der jeweiligen Schwelle konstant [Abbildung 6.24(g), (h)]. Lediglich bei der Schwelle zur nahinfraroten Grundzustands-Laseremission (bei E_1) lasst sich ein winziger Knick in den Kurven beobachten.

Dagegen ist die Intensitat der mittelinfraroten Lasermoden uberlinear abhangig vom Injektionsstrom, sofern man sich im Bereich unterhalb des Lasens im angeregten Zustand (bei E_2) bzw. des mittelinfraroten Lasens befindet [siehe Einsatze in Abbildung 6.24(e), (f)].

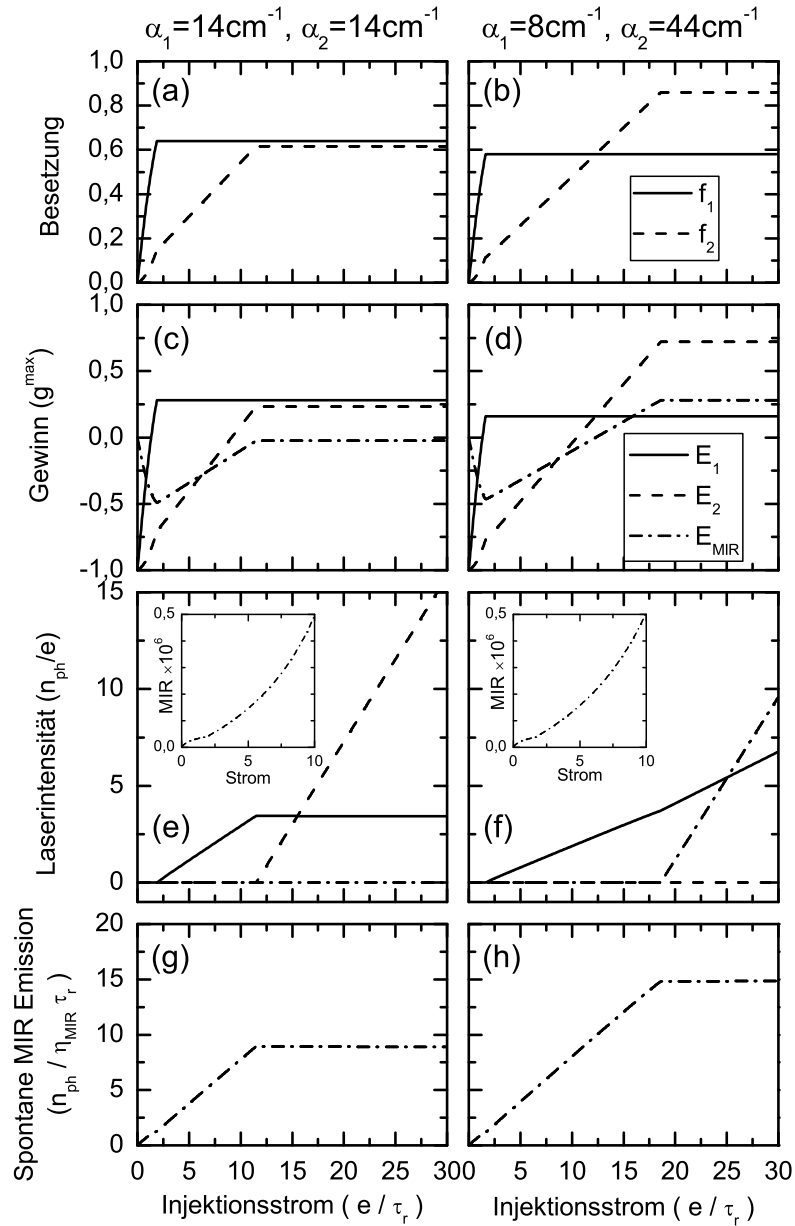


Abbildung 6.24: Simulation der mittelinfraroten Emission eines bipolaren Quantenpunkt-lasers. Die Spiegelverluste bei der Emissionsenergie E_2 des angeregten Zustands betragen in der linken Spalte [(a), (c), (e), (g)] $\alpha_2 = 14 \text{ cm}^{-1}$ und in der rechten Spalte [(b), (d), (f), (h)] $\alpha_2 = 44 \text{ cm}^{-1}$. (a) und (b) zeigen die mittleren Besetzungen f des Elektronen-Grundzustands (durchgezogene Linie) und des angeregten Zustands (gestrichelte Linie). In (c) und (d) wird der Gewinn g bei den drei Emissionsenergien E_1 , E_2 und E_{MIR} in Einheiten des jeweils maximalen Gewinns dargestellt. In (e) und (f) ist die Intensität der Lasermoden abgebildet. In den Einsätzen sind die mittelinfraroten Ausgangs-Intensitäten im Lasermode unterhalb der Laserschwelle in 10^6 -facher Vergrößerung gezeigt. Die spontane Emission im Mittelinfrarot ist in (g) und (h) dargestellt.

7 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Intersubniveau-Übergänge in selbstorganisierten InGaAs/GaAs-Quantenpunkten mit spektroskopischen Methoden untersucht. Dabei wurde einerseits das ladungsabhängige Absorptionsverhalten der Nanostrukturen im Mittelinfrarot mittels kalorimetrischer Absorptionsspektroskopie erforscht. Andererseits wurde mittelinfrarote Emission aus Quantenpunkten spektroskopisch nachgewiesen und durch Simulationen Bedingungen für die Machbarkeit eines bipolaren zweifarbigem Lasers, der auch im Mittelinfrarot emittiert, bestimmt.

Für die ladungsabhängigen Absorptionsmessungen an Quantenpunkten wurden die Messtechniken Fourierspektroskopie und kalorimetrische Absorptionsspektroskopie kombiniert. Mit Hilfe dieser FT-CAS-Technik konnten nichtstrahlende Intersubniveau-Übergänge in selbstorganisierten InGaAs/GaAs-Quantenpunkten direkt nachgewiesen werden, indem die Erwärmung der Probe, welche durch Ladungsträgerrelaxationen nach optischer Absorption in den Quantenpunkten entsteht, gemessen wird. Aus diesem Grund kann man den Aufbau auch als mittelinfrarotes Quantenpunktbolometer bezeichnen.

Bei den Messungen wurde eine starke optische Absorption im Energiebereich der Intersubniveau-Übergänge von Quantenpunkten gefunden, die jedoch keinen Übergängen in den Quantenpunkten zuzuordnen ist und somit für die Entwicklung von mittelinfraroten Quantenpunktbauelementen eher nachteilig ist. Zusätzlich konnte aber auch eine ladungsabhängige Absorption in den Quantenpunkten nachgewiesen werden, deren Änderungen in Intensität und Wellenlänge in Abhängigkeit von der Ladung der Quantenpunkte untersucht wurde. Dazu waren die Quantenpunkte nahe der Raumladungszone in eine Diodenstruktur eingebettet worden, was erlaubte, die Anzahl der in den Quantenpunkten vorhandenen Elektronen durch Anlegen einer Sperrspannung zu verändern. Die beobachteten Effekte – bis zu zwei Absorptionspeaks im mittelinfraroten Spektralbereich, die sowohl ihre Lage als auch ihre Intensität ladungsabhängig ändern – konnten durch die unterschiedliche Besetzung der Quantenpunkte (null bis drei Elektronen), durch die Pauli-Blockade und durch Mehrteilcheneffekte in den Quantenpunkten erklärt werden. Zusätzlich wurde der maximale Intersubniveau-Absorptionsquerschnitt für Quantenpunkte, die mit einem Elektron besetzt sind, bestimmt. Er liegt in der Größenordnung von 10^{-13} cm^2 .

Die Messungen der Intersubniveau-Emission von Quantenpunkten dienen vor al-

lem dazu, die Möglichkeiten zur Realisierung eines bipolaren zweifarbigem Quantenpunktlasers, der sowohl im Nah- als auch im Mittelinfrarot emittiert, zu erforschen. Dazu wurde die Emission aus unterschiedlichen Probenstrukturen untersucht:

Messungen an optisch gepumpten, undotierten Quantenpunktproben ohne einen wirksamen Wellenleiter zeigten zwei mittelinfrarote Emissionspeaks. Die Lage dieser Peaks entspricht jener Energie, auf die man als Abstand zwischen zwei Subniveaus aufgrund von komplementär durchgeführten nahinfraroten Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie-Messungen schließt. Die Intensität dieser Emission wächst, wie man dies erwarten würde, unterlinear mit der optischen Anregungsleistung und sättigt schließlich.

Das beobachtete Sättigungsverhalten wurde anhand eines Modells, welches die Mastergleichungen für Quantenpunktmikrozustände verwendet, mit dem Sättigungsverhalten aus anderen Arbeiten verglichen. Durch das Sättigungsverhalten bei hohen Anregungsleistungen können die Pfade der Ladungsträgerrelaxation bestimmt werden: eine rein kaskadische Relaxation, bei der die Intensität zu einem Maximum hin sättigt, oder eine kaskadische Relaxation kombiniert mit direktem Einfang der Ladungsträger aus der Umgebung bis in den Grundzustand des Quantenpunkts, die sich in einem Zusammenbruch der mittelinfraroten Intensität bei hohen Anregungsleistungen zeigt. Es konnte gezeigt werden, dass die untersuchten InGaAs/GaAs-Quantenpunkte in der Hauptsache nur kaskadisch relaxieren.

Optisch und elektrisch gepumpte Emissionsexperimente mit Quantenpunkten, die Bestandteil von nahinfraroten Laserstrukturen mit mehr oder weniger *dicken Wellenleitern*¹ sind, ergaben ebenfalls mittelinfrarote Emissionspeaks im Bereich von 50–115 meV. Je nach Zustand und Größe des Wellenleiters wich die Abhängigkeit der mittelinfraroten Intensität von der Anregungsleistung deutlich vom erwarteten Verhalten ab. Bei einem weitgehend intakten Wellenleiter stieg die Intensität der mittelinfraroten Emission signifikant überlinear mit der Anregungsleistung an, wobei die maximale gemessene Leistung in der Größenordnung von 100 nW lag.

Simulationen eines nahinfraroten Quantenpunktlasers, die auch die mittelinfrarote Emission berücksichtigen, zeigten, dass der überlineare Anstieg durch Intersubniveau-Emission im Lasermode erklärt werden kann. Diese mittelinfrarote Emission befindet sich noch weit unterhalb der Schwelle für einen mittelinfraroten Laser. Da die untersuchten nahinfraroten Laserstrukturen nicht für mittelinfrarote Emission optimiert waren, ist es verständlich, dass ein großer Teil dieser Strahlung

¹Der größte Wellenleiter ist mit einer Dicke von $1,24\ \mu\text{m}$ dennoch deutlich kleiner, als ein mittelinfraroter Wellenleiter ausfallen müsste. Das Wort *dick* bezieht sich also auf Wellenleiter für nahinfrarote Strahlung.

von den dotierten Schichten, welche den zu kleinen Wellenleiter umgeben, in der Probe absorbiert wird.² Immerhin zeigt der überlineare Anstieg der mittelinfraroten Emission aber auch, dass das Prinzip eines bipolaren zweifarbigen Lasers erfolgreich sein kann, wenn es gelingt, Proben mit einem Wellenleiter zu konstruieren, der sowohl für nah- als auch für mittelinfrarote Strahlung optimiert ist.

Die Simulation zeigte außerdem, dass ein zweifarbiger Laser nur dann realisiert werden kann, wenn das nahinfrarote Lasen auf dem angeregten Zustand nicht stattfindet oder effektiv unterdrückt wird. Denn das Lasen auf dem angeregten Zustand ist ein konkurrierender Prozess zum mittelinfraroten Lasen, weil es die Besetzung des angeregten Zustands verringert und somit die benötigte Besetzungsinversion zwischen angeregtem und Grundzustands-Subniveau zerstört. Als mögliche Lösung wurde eine optische Beschichtung der Laserfacetten vorgeschlagen, welche möglichst hohe Spiegelverluste für die Emissionswellenlängen der angeregten Zustände bewirkt und gleichzeitig die Verluste beim Grundzustandsübergang minimiert, so dass der Laser im Nahinfrarot nur über seinen Grundzustand lasen kann.

Auf dem Weg zur Realisierung eines zweifarbigen Quantenpunktlasers, der sowohl im Nah- als auch im Mittelinfrarot arbeitet, gilt es also, zwei Hauptprobleme zu lösen: das Design eines sowohl für das Nah- als auch für das Mittelinfrarot geeigneten Wellenleiters und das Verhindern des nahinfraroten Lasens auf dem angeregten Zustand.

²Nach dem derzeitigen Stand der Technik ist es noch nicht möglich, nahinfrarotes Lasen in Strukturen zu erzeugen, die mit einem für das Mittelinfrarot optimalen Wellenleiter ausgerüstet sind.

Anhang A

Wellenlängenbereiche

In der vorliegenden Arbeit wird die Benennung der Spektralbereiche der optischen Strahlung gemäß DIN 5031-7 übernommen. Danach ergibt sich die in Tabelle A.1 aufgeführte Einteilung für optische Strahlung im sichtbaren und infraroten Wellenlängenbereich.

Tabelle A.1: Benennung verschiedener Spektralbereiche der optischen Strahlung (gerundete Werte, nach DIN 5031-7).

Benennung der Strahlung	Wellenlänge λ in μm	Energie E in meV	Wellenzahl $\bar{\nu}$ in cm^{-1}	Frequenz ν in THz
Sichtbares Licht (VIS)	0,38 – 0,78	3263 – 1590	26316 – 12821	790 – 385
Nahinfrarot (NIR)	0,78 – 3	1590 – 413	12821 – 3333	385 – 100
Mittelinfrarot (MIR)	3 – 50	413 – 25	3333 – 200	100 – 6
Ferninfrarot (FIR)	50 – 1000	25 – 1	200 – 10	6 – 0,3

Einheitenumrechnung

Die Umrechnung zwischen den für die Beschreibung von mittelinfraroter Strahlung gebräuchlichen Einheiten Energie E , Wellenzahl $\bar{\nu}$, Wellenlänge λ und Frequenz ν erfolgt für Strahlung im Vakuum in folgender Weise:

$$E / \text{meV} = \frac{\bar{\nu} / \text{cm}^{-1}}{8,06554} = \frac{1239,84}{\lambda / \mu\text{m}} = 4,13567 \cdot \nu / \text{THz}, \quad (\text{A.1})$$

$$\bar{\nu} / \text{cm}^{-1} = \frac{10\,000,0}{\lambda / \mu\text{m}} = 33,3564 \cdot \nu / \text{THz} = 8,06554 \cdot E / \text{meV}, \quad (\text{A.2})$$

$$\lambda / \mu\text{m} = \frac{299,792}{\nu / \text{THz}} = \frac{1239,84}{E / \text{meV}} = \frac{10\,000,0}{\bar{\nu} / \text{cm}^{-1}}, \quad (\text{A.3})$$

$$\nu / \text{THz} = \frac{E / \text{meV}}{4,13567} = \frac{\bar{\nu} / \text{cm}^{-1}}{33,3564} = \frac{299,792}{\lambda / \mu\text{m}}. \quad (\text{A.4})$$

Anhang B

Probenprozessierung

Die GaAs pn-Dioden wurden in einem Reinraum des Instituts für Festkörperphysik der Technischen Universität Berlin prozessiert. Der Reinraum (Klasse 100) ist ausgestattet mit dem typischen Equipment, welches für die optische Standard-Lithographie benötigt wird. Dazu gehören u. a. eine Lackschleuder, ein SÜSS MJB3 Belichter, für nass-chemisches Ätzen benötigte Säuren und Gefäße sowie auch ein Veeco Bedampfungssystem. Im Folgenden werden die zur Prozessierung von pn-Dioden verwendeten Arbeitsschritte beschrieben.

- **Lithographie für Ätzmaske (Positiv-Prozess MAP1)**

- Probe reinigen, je 2 min Ultraschall: 2 × Aceton, 2 × Isopropanol.
- Abtrocknen der Probe mit N₂.
- Photo-Lack MA-P1215 auf Probe aufbringen und schleudern (20 s, 3000 U/min + 5 s, 6000 U/min).
- Probe auf Hotplate (5 min bei 85°C).
- Probe durch Lithographie-Maske belichten: 15 s bei 0,85 W/cm².
- Entwickeln in unverdünntem MA-D532 Entwickler: ~15 s.
- Entwicklungs-Stopp: 2×20 s in H₂O spülen.

- **Herunterätzen bis zur unteren Kontaktschicht**

- Probe mit Photolack auf Objektträger kleben und auf Hotplate aushärten (10 min bei 122°C).
- Ätzlösung anmischen: H₂O : H₂SO₄ : H₂O₂ (100 : 1 : 8) während 10 min anrühren.
- HF-Dip zur Reinigung der Probenoberfläche vor dem Ätzen: HF (5%) (5 s), 2 × H₂O (je 10 s), trocknen mit N₂.
- Ätzen (gleichzeitig umrühren), Ätzrate ist typischerweise: 365 nm/min.

- Ätzstopp: $2 \times \text{H}_2\text{O}$ (je 20 s).
- Ablösen der Probe von Objektträger und Reinigung: je 2 min Ultraschall: $2 \times \text{Aceton}$, $2 \times \text{Isopropanol}$.
- Abtrocknen der Probe mit N_2 .

• **Lithographie für Aufdampfmaske der Kontakte** (Negativ-Prozess MAN2)

- Photo-Lack MA-N410 auf Probe aufbringen und schleudern (20 s, $3000 \text{ U}/\text{min} + 5 \text{ s}$, $6000 \text{ U}/\text{min}$).
- Probe auf Hotplate (90 s bei 90°C).
- Probe durch Lithographie-Maske belichten: 15 s bei $0,85 \text{ W}/\text{cm}^2$.
- Entwickeln in unverdünntem MA-D532 Entwickler: 60 s–80 s.
- Entwicklungs-Stopp: $2 \times 20 \text{ s}$ in H_2O spülen.

• **Aufdampfen der ohmschen Kontakte**

- HF-Dip zur Reinigung der Probenoberfläche vor dem Bedampfen: HF (5%) (5 s), $2 \times \text{H}_2\text{O}$ (je 10 s), trocknen mit N_2 .
- Probe in Bedampfer einbauen und bedampfen:

Kontakte auf n^+ -Schicht	Kontakte auf p^+ -Schicht
<ul style="list-style-type: none">• 7,5 nm Ni• 100 nm Au/Ge (88/12)• 200 nm Au	<ul style="list-style-type: none">• 5 nm Ni• 50 nm Zn• 200 nm Au

- Reinigung der Probe: je 2 min Ultraschall: $2 \times \text{Aceton}$, $2 \times \text{Isopropanol}$.
- Abtrocknen der Probe mit N_2 .

• **Alloying nach Aufdampfen von allen ohmschen Kontakten**

- Alloying unter N_2 (120 s bei 390°C).

Literaturverzeichnis

Die Zahlen hinter den einzelnen Literaturangaben geben die Seiten an, auf welchen die entsprechenden Zitate auftreten.

- [Alp] *Alpes Lasers SA*, Neuchâtel, Schweiz, <http://www.alpeslasers.ch/>. 64
- [And03] S. Anders, L. Rebohle, F. F. Schrey, W. Schrenk, K. Unterrainer und G. Strasser, *Electro-luminescence of a quantum dot cascade structure*, Appl. Phys. Lett. **82** (22), 3862 (2003). 3, 65
- [Apa01] V. M. Apalkov und T. Chakraborty, *Luminescence spectra of a quantum-dot cascade laser*, Appl. Phys. Lett. **78** (13), 1820 (2001). 3, 65
- [Ara82] Y. Arakawa und H. Sakaki, *Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current*, Appl. Phys. Lett. **40** (11), 939 (1982). 1
- [Bar97] A.-L. Barabási, *Self-assembled island formation in heteroepitaxial growth*, Appl. Phys. Lett. **70** (19), 2565 (1997). 36
- [Bay02] M. Bayer und A. Forchel, *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in $In_{0.60}Ga_{0.40}As/GaAs$ self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **65** (4), 041308(R) (2002). 15
- [Ben91] H. Benisty, C. M. Sotomayor-Torrès und C. Weisbuch, *Intrinsic mechanism for the poor luminescence properties of quantum-box systems*, Phys. Rev. B **44** (19), 10945 (1991). 3, 14, 21, 64
- [Ber97] K. W. Berryman, S. A. Lyon und M. Segev, *Mid-infrared photoconductivity in $InAs$ quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **70** (14), 1861 (1997). 2, 45
- [Bim81] D. Bimberg und A. Bubbenzer, *Calorimetric absorption spectroscopy of nonradiative recombination processes in GaP* , Appl. Phys. Lett. **38** (10), 803 (1981). 3, 21
- [Bim98] D. Bimberg, M. Grundmann und N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*, John Wiley & Sons, Chichester (1998). 1, 9, 21, 35, 46, 55

- [Bim05a] D. Bimberg, *Quantum dots for lasers, amplifiers and computing*, J. Phys. D: Appl. Phys. **38** (13), 2055 (2005). 1
- [Bim05b] D. Bimberg, M. Kuntz und M. Laemmlin, *Quantum dot photonic devices for lightwave communication*, Microelectron. J. **36** (3–6), 175 (2005). 1
- [Bla82] J. S. Blakemore, *Semiconducting and other major properties of gallium arsenide*, J. Appl. Phys. **53** (10), R123 (1982). 48, 49
- [Boc92] U. Bockelmann und T. Egeler, *Electron relaxation in quantum dots by means of Auger processes*, Phys. Rev. B **46** (23), 15574 (1992). 15
- [Bor01a] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang und D. Bimberg, *Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **87** (15), 157401 (2001). 15
- [Bor01b] P. Borri, S. Schneider, W. Langbein, U. Woggon, A. E. Zhukov, V. M. Ustinov, N. N. Ledentsov, Z. I. Alferov, D. Ouyang und D. Bimberg, *Ultrafast carrier dynamics and dephasing in InAs quantum-dot amplifiers emitting near 1.3- μ m-wavelength at room temperature*, Appl. Phys. Lett. **79** (16), 2633 (2001). 15
- [Bot99] D. Botez, P. S. Zory und C.-F. Hsu, *Intersubband quantum box semiconductor laser*, United States Patent 5 953 356 (1999). 3, 65
- [Cha82] D. B. Chase, *Phase Correction in FT-IR*, Appl. Spectrosc. **36** (3), 240 (1982). 28
- [Cha05] S. Chakrabarti, A. D. Stiff-Roberts, X. H. Su, P. Bhattacharya, G. Ariyawansa und A. G. U. Perera, *High-performance mid-infrared quantum dot infrared photodetectors*, J. Phys. D: Appl. Phys. **38** (13), 2135 (2005). 2
- [Che01] Z. Chen, O. Baklenov, E. T. Kim, I. Mukhametzhanov, J. Tie, A. Madhukar, Z. Ye und J. C. Campbell, *Normal incidence InAs/Al_xGa_{1-x}As quantum dot infrared photodetectors with undoped active region*, J. Appl. Phys. **89** (8), 4558 (2001). 45, 54
- [Cho61] W. Chochran, S. J. Fray, F. A. Johnson, J. E. Quarrington und N. Williams, *Lattice Absorption in Gallium Arsenide*, J. Appl. Phys. **32** (10), 2102 (1961). 49, 59
- [Chu00] L. Chu, A. Zrenner, G. Böhm und G. Abstreiter, *Lateral intersubband photocurrent spectroscopy on InAs/GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **76** (14), 1944 (2000). 45
- [Chu01] L. Chu, A. Zrenner, M. Bichler und G. Abstreiter, *Quantum-dot infrared photodetector with lateral carrier transport*, Appl. Phys. Lett. **79** (14), 2249 (2001). 45

- [Dre94] H. Drexler, D. Leonard, W. Hansen, J. P. Kotthaus und P. M. Petroff, *Spectroscopy of Quantum Levels in Charge-Tunable InGaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **73** (16), 2252 (1994). 2
- [Eis99] H. Eisele, O. Flebbe, T. Kalka, C. Preinesberger, F. Heinrichsdorff, A. Krost, D. Bimberg und M. Dähne-Prietsch, *Cross-sectional scanning-tunneling microscopy of stacked InAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **75** (1), 106 (1999). 15
- [Fai94a] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson und A. Y. Cho, *Quantum cascade laser*, Science **264** (5158), 553 (1994). 3, 63, 64
- [Fai94b] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson und A. Y. Cho, *Quantum cascade laser: an intersub-band semiconductor laser operating above liquid nitrogen temperature*, Electron. Lett. **30** (11), 865 (1994). 3, 63, 64
- [Fel51] P. B. Fellgett, *On the Theory of Infrared Sensitivities and its Application to the Investigation of Stellar Radiation in the Near Infrared*, [Dissertation, University of Cambridge] (1951). 18
- [Fer00] R. Ferreira und G. Bastard, *Carrier Capture and Intra-Dot Auger Relaxation in Quantum Dots*, phys. stat. sol. (a) **178** (1), 327 (2000). 15
- [Fon98] L. R. C. Fonseca, J. L. Jimenez, J. P. Leburton und R. M. Martin, *Self-consistent calculation of the electronic structure and electron-electron interaction in self-assembled InAs-GaAs quantum dot structures*, Phys. Rev. B **57** (7), 4017 (1998). 11, 56, 57
- [Fra49] F. C. Frank und J. H. v. d. Merve, *One-dimensional dislocations*, Proc. Soc. London A **198**, 205 (1949). 35
- [Fri96] M. Fricke, A. Lorke, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro und P. M. Petroff, *Shell Structure and Electron-Electron Interaction in Self-Assembled InAs Quantum Dots*, Europhys. Lett. **36** (3), 197 (1996). 50, 57, 58
- [Fry00] P. W. Fry, I. E. Itskevich, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. J. Finley, J. A. Barker, E. P. O'Reilly, L. R. Wilson, I. A. Larkin, P. A. Maksym, M. Hopkinson, M. Al-Khafaji, J. P. R. David, A. G. Cullis, G. Hill und J. C. Clark, *Inverted Electron-Hole Alignment in InAs-GaAs Self-Assembled Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **84** (4), 733 (2000). 15
- [GL97] O. Gauthier-Lafaye, P. Boucaud, F. H. Julien, S. Sauvage, S. Cabaret, J.-M. Lourtioz, V. Thierry-Mieg und R. Planel, *Long-wavelength ($\approx 15.5 \mu\text{m}$) unipolar semiconductor laser in GaAs quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **71** (25), 3619 (1997). 3, 63, 64
- [Goe00] K. Goede, *Intersubniveauübergänge in InGaAs/GaAs-Quantenpunkten*, [Diplomarbeit, Technische Universität Berlin] (2000). 24

- [Gri86] P. R. Griffiths und J. A. de Haseth, *Fourier Transform Infrared Spectrometry*, Bd. 83 von *Chemical Analysis*, John Wiley & Sons, New York (1986). 17
- [Gru95a] M. Grundmann, J. Christen, N. N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev und Z. I. Alferov, *Ultrannarrow Luminescence Lines from Single Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **74** (20), 4043 (1995). 2
- [Gru95b] M. Grundmann, O. Stier und D. Bimberg, *InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure*, Phys. Rev. B **52** (16), 11969 (1995). 9
- [Gru96] M. Grundmann, N. N. Ledentsov, O. Stier, J. Böhrer, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev und Z. I. Alferov, *Nature of optical transitions in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **53** (16), 10509 (1996). 67
- [Gru97a] M. Grundmann und D. Bimberg, *Gain and Threshold of Quantum Dot Lasers: Theory and Comparison to Experiments*, Jpn. J. Appl. Phys. **36** (Part 1, 6B), 4181 (1997). 60, 91
- [Gru97b] M. Grundmann und D. Bimberg, *Theory of random population for quantum dots*, Phys. Rev. B **55** (15), 9740 (1997). 4, 79, 89
- [Gru97c] M. Grundmann, R. Heitz, D. Bimberg, J. H. H. Sandmann und J. Feldmann, *Carrier Dynamics in Quantum Dots: Modeling with Master Equations for the Transitions between Micro-States*, phys. stat. sol. (b) **203** (1), 121 (1997). 4, 79, 89
- [Gru00] M. Grundmann, *The present status of quantum dot lasers*, Physica E **5** (3), 167 (2000). 1
- [Gru02] M. Grundmann (Hg.), *Nano-Optoelectronics: Concepts, Physics and Devices*, Springer, Berlin (2002). 1, 21, 107
- [Gru05] M. Grundmann, *Semiconductor Physics: An Introduction Including Device and Nanophysics*, Springer, Berlin (2005). 16
- [Guf03] F. Guffarth, *Elektronische Eigenschaften von In(Ga)As/GaAs Quantenpunkten*, Bd. 15 von *Studies in Solid State Physics*, Mensch & Buch Verlag, Berlin, [Dissertation, Technische Universität Berlin] (2003). 11, 59
- [Ham99] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Le-maître und J. M. Gérard, *Strong Electron-Phonon Coupling Regime in Quantum Dots: Evidence for Everlasting Resonant Polarons*, Phys. Rev. Lett. **83** (20), 4152 (1999). 2, 21

- [Haw99] P. Hawker, A. J. Kent und M. Henini, *Energy relaxation by photoexcited carriers in the InAs/GaAs quantum-dot system: Bolometric detection of strong acoustic-phonon emission*, Appl. Phys. Lett. **75** (24), 3832 (1999). 2
- [Hei97] R. Heitz, M. Veit, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kopšev und Z. I. Alferov, *Energy relaxation by multiphonon processes in InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **56** (16), 10435 (1997). 2, 14, 21, 59
- [Hei98] R. Heitz, A. Kalburge, Q. Xie, M. Grundmann, P. Chen, A. Hoffmann, A. Madhukar und D. Bimberg, *Excited states and energy relaxation in stacked InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **57** (15), 9050 (1998). 55, 59
- [Hei00a] F. Heinrichsdorff, C. Ribbat, M. Grundmann und D. Bimberg, *High-power quantum-dot lasers at 1100 nm*, Appl. Phys. Lett. **76** (5), 556 (2000). 36, 37, 39, 60
- [Hei00b] R. Heitz, F. Guffarth, I. Mukhametzhanov, M. Grundmann, A. Madhukar und D. Bimberg, *Many-body effects on the optical spectra of InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **62** (24), 16881 (2000). 11, 59
- [Hei00c] R. Heitz, O. Stier, I. Mukhametzhanov, A. Madhukar und D. Bimberg, *Quantum size effect in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **62** (16), 11017 (2000). 46
- [Hei01] R. Heitz, H. Born, F. Guffarth, O. Stier, A. Schliwa, A. Hoffmann und D. Bimberg, *Existence of a phonon bottleneck for excitons in quantum dots*, Phys. Rev. B **64** (24), 241305 (2001). 3, 14, 64
- [Hei02] R. Heitz, *Optical Properties of Self-Organized Quantum Dots*, in Grundmann [Gru02], Kap. 10, 239–272, und darin enthaltene Literaturverweise (2002). 13, 14, 15
- [Hei03] R. Heitz, S. Rodt, A. Schliwa und D. Bimberg, *Shape-dependent properties of self-organized quantum dots: Few-particle states and exciton-phonon coupling*, phys. stat. sol. (b) **238** (2), 273 (2003). 8
- [Hei05] R. Heitz, F. Guffarth, K. Pötschke, A. Schliwa, D. Bimberg, N. D. Zakharov und P. Werner, *Shell-like formation of self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **71** (4), 045325 (2005). 10
- [Hel82] K.-H. Hellwege (Hg.), *Landolt-Börnstein – Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology*, Springer-Verlag, Berlin, Bd. 17a, 242 (1982). 59
- [Hsu00] C.-F. Hsu, J.-S. O, P. Zory und D. Botez, *Intersubband Quantum-Box Semiconductor Lasers*, IEEE J. Select. Topics Quantum Electron. **6** (3), 491 (2000). 3, 65

- [Ino92] T. Inoshita und H. Sakaki, *Electron relaxation in a quantum dot: Significance of multiphonon processes*, Phys. Rev. B **46** (11), 7260 (1992). 15, 21
- [Jac48] P. Jacquinet und C. Dufour, *Conditions optiques d'emploi des cellules photo-électriques dans les spectrographes et les interféromètres*, J. Rech. CNRS **6**, 91 (1948). 18
- [Jia98] H. Jiang und J. Singh, *Self-Assembled Semiconductor Structures: Electronic and Optoelectronic Properties*, IEEE J. Quantum Electron. **34** (7), 1188 (1998). 9, 55
- [Juh88] A. Juhl und D. Bimberg, *Calorimetric absorption and transmission spectroscopy for determination of quantum efficiencies and characterization of ultrathin layers and nonradiative centers*, J. Appl. Phys. **64** (1), 303 (1988). 22
- [Kap99] C. M. A. Kapteyn, F. Heinrichsdorff, O. Stier, R. Heitz, M. Grundmann, N. D. Zakharov und D. Bimberg, *Electron escape from InAs quantum dots*, Phys. Rev. B **60** (20), 14265 (1999). 51
- [Kas01] A. Kastalsky, L. E. Vorobjev, D. A. Firsov, V. L. Zerova und E. Towe, *A Dual-Color Injection Laser Based on Intra- and Inter-Band Carrier Transitions in Semiconductor Quantum Wells or quantum Dots*, IEEE J. Quantum Electron. **37** (10), 1356 (2001). 3, 63
- [Kaz71] R. F. Kazarinov und R. A. Suris, *Possibility of the amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice*, Sov. Phys. Semicond. **5** (4), 707 (1971). 3, 63, 64
- [Kim98] J. Kim, L.-W. Wang und A. Zunger, *Comparison of the electronic structure of InAs/GaAs pyramidal quantum dots with different facet orientations*, Phys. Rev. B **57** (16), R9408 (1998). 10
- [Kir94] N. Kirstaedter, N. N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, S. S. Ruvimov, M. V. Maximov, P. S. Kop'ev, Z. I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele und J. Heydenreich, *Low threshold, large T_0 injection laser emission from (InGa)As quantum dots*, Electron. Lett. **30** (17), 1416 (1994). 1
- [Kir96] N. Kirstaedter, O. G. Schmidt, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, M. V. Maximov, P. S. Kop'ev und Z. I. Alferov, *Gain and differential gain of single layer InAs/GaAs quantum dot injection lasers*, Appl. Phys. Lett. **69** (9), 1226 (1996). 60
- [Kli97] C. F. Klingshirn, *Semiconductor Optics*, Springer-Verlag, Berlin (1997). 6
- [Kri00] S. Krishna, O. Qasaimeh, P. Bhattacharya, P. J. McCann und K. Namjou, *Room-temperature far-infrared emission from a self-organized InGaAs/GaAs quantum-dot laser*, Appl. Phys. Lett. **76** (23), 3355 (2000). 3

- [Kri01] S. Krishna, P. Bhattacharya, J. Singh, T. Norris, J. Urayama, P. J. McCann und K. Namjou, *Intersubband Gain and Stimulated Emission in Long-Wavelength ($\lambda = 13 \mu\text{m}$) Intersubband In(Ga)As-GaAs Quantum-Dot Electroluminescent Devices*, IEEE J. Quantum Electron. **37** (8), 1066 (2001). 3
- [Kri05] S. Krishna, *Quantum dots-in-a-well infrared photodetectors*, J. Phys. D: Appl. Phys. **38** (13), 2142 (2005). 2, 45
- [Kuz98] H. Kuzmany, *Solid-State Spectroscopy*, Springer, Berlin (1998). 17
- [Lan99] L. Landin, M.-E. Pistol, C. Pryor, M. Persson, L. Samuelson und M. Miller, *Optical investigations of individual InAs quantum dots: Level splittings of exciton complexes*, Phys. Rev. B **60** (24), 16640 (1999). 59
- [Lel96] P. Lelong und G. Bastard, *Binding energies of excitons and charged excitons in GaAs/Ga(In)As quantum dots*, Solid State Commun. **98** (9), 819 (1996). 57
- [Lev87] B. F. Levine, K. K. Choi, C. G. Bethea, J. Walker und R. J. Malik, *New $10 \mu\text{m}$ infrared detector using intersubband absorption in resonant tunneling GaAlAs superlattices*, Appl. Phys. Lett. **50** (16), 1092 (1987). 2
- [Lev93] B. F. Levine, *Quantum-well infrared photodetectors*, J. Appl. Phys. **74** (8), R1 (1993). 2
- [Lip95] H. Lipsanen, M. Sopanen und J. Ahopelto, *Luminescence from excited states in strain-induced $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum dots*, Phys. Rev. B **51** (19), 13686 (1995). 67
- [Liu99] G. Liu, A. Stintz, H. Li, K. J. Malloy und L. F. Lester, *Extremely low room-temperature threshold current density diode lasers using InAs dots in $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ quantum well*, Electron. Lett. **35** (14), 1163 (1999). 1
- [Liu01] H. C. Liu, M. Gao, J. McCaffrey, Z. R. Wasilewski und S. Fafard, *Quantum dot infrared photodetectors*, Appl. Phys. Lett. **78** (1), 79 (2001). 45
- [Mat01] K. Matsuda, K. Ikeda, T. Saiki, H. Tsuchiya, H. Saito und K. Nishi, *Homogeneous linewidth broadening in a $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ single quantum dot at room temperature investigated using a highly sensitive near-field scanning optical microscope*, Phys. Rev. B **63** (12), 121304 (2001). 15
- [Max98] M. V. Maximov, Y. M. Shernyakov, A. F. Tsatsul'nikov, A. V. Lunev, A. V. Sakharov, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, P. S. Kop'ev, L. V. Asryan, Z. I. Alferov, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, A. O. Kosogov und P. Werner, *High-power continuous-wave operation of a InGaAs/AlGaAs quantum dot laser*, J. Appl. Phys. **83** (10), 5561 (1998). 43

- [Mei01] M. Meixner, E. Schöll, V. A. Shchukin und D. Bimberg, *Self-Assembled Quantum Dots: Crossover from Kinetically Controlled to Thermodynamically Limited Growth*, Phys. Rev. Lett. **87** (23), 236101 (2001). 36
- [Mer65] L. Mertz, *Transformation in Optics*, John Wiley & Sons, New York (1965). 28
- [Min98] B. D. Min, Y. Kim, E. K. Kim, S.-K. Min und M. J. Park, *Suppression of Ostwald ripening in $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ quantum dots on a vicinal (100) substrate*, Phys. Rev. B **57** (19), 11879 (1998). 36
- [Muk98] I. Mukhametzhanov, R. Heitz, J. Zeng, P. Chen und A. Madhukar, *Independent manipulation of density and size of stress-driven self-assembled quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **73** (13), 1841 (1998). 70
- [Nag99] S. Nagaraja, L. R. C. Fonseca und J. P. Leburton, *Electron-electron interactions between orbital pairs in quantum dots*, Phys. Rev. B **59** (23), 14880 (1999). 11, 55, 56, 57, 58
- [Ols89] M. Olszakier, E. Ehrenfreund, E. Cohen, J. Bajaj und G. J. Sullivan, *Photoinduced intersubband absorption in undoped multi-quantum-well structures*, Phys. Rev. Lett. **62** (25), 2997 (1989). 76
- [Pan98] D. Pan, E. Towe und S. Kennerly, *Strong normal-incidence infrared absorption and photo-current spectra from highly uniform (In,Ga)As/GaAs quantum dot structures*, Electron. Lett. **34** (10), 1019 (1998). 2
- [Phi99] J. Phillips, P. Bhattacharya, S. W. Kennerly, D. W. Beekman und M. Dutta, *Self-assembled InAs-GaAs quantum-dot intersubband detectors*, IEEE J. Quantum Electron. **35** (6), 936 (1999). 45
- [Pöt04] K. Pötschke, L. Müller-Kirsch, R. Heitz, R. L. Sellin, U. W. Pohl, D. Bimberg, N. Zakharov und P. Werner, *Ripening of self-organized InAs quantum dots*, Physica E **21** (2), 606 (2004). 36
- [Ray96] S. Raymond, S. Fafard, P. J. Poole, A. Wojs, P. Hawrylak, S. Charbonneau, D. Leonard, R. Leon, P. M. Petroff und J. L. Merz, *State filling and time-resolved photoluminescence of excited states in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **54** (16), 11548 (1996). 67
- [Rib02] C. Ribbat, *Hochleistungs-Quantenpunkt-Halbleiterlaser*, [Dissertation, Technische Universität Berlin] (2002). 1, 13
- [Rud90] S. Rudin und T. L. Reinecke, *Temperature-dependent exciton linewidths in semiconductor quantum wells*, Phys. Rev. B **41** (5), 3017 (1990). 15
- [Ryz96] V. Ryzhii, *The theory of quantum-dot infrared phototransistors*, Semicond. Sci. Technol. **11** (5), 759 (1996). 2, 45

- [Ryz01] V. Ryzhii, I. Khmyrova, V. Mitin, M. Stroschio und M. Willander, *On the detectivity of quantum-dot infrared photodetectors*, Appl. Phys. Lett. **78** (22), 3523 (2001). 45
- [Sau97a] S. Sauvage, P. Boucaud, F. H. Julien, J.-M. Gérard und J.-Y. Marzin, *Infrared spectroscopy of intraband transitions in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, J. Appl. Phys. **82** (7), 3396 (1997). 2, 54
- [Sau97b] S. Sauvage, P. Boucaud, F. H. Julien, J.-M. Gérard und V. Thierry-Mieg, *Intraband absorption in n-doped InAs/GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **71** (19), 2785 (1997). 45
- [Sau98a] S. Sauvage, P. Boucaud, J.-M. Gérard und V. Thierry-Mieg, *In-plane polarized intraband absorption in InAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **58** (16), 10562 (1998). 16, 45
- [Sau98b] S. Sauvage, P. Boucaud, F. Glotin, R. Prazeres, J.-M. Ortega, A. Lemaître, J.-M. Gérard und V. Thierry-Mieg, *Saturation of intraband absorption and electron relaxation time in n-doped InAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **73** (26), 3818 (1998). 45
- [Sau99a] S. Sauvage, *Propriétés infrarouges des boîtes quantiques semi-conductrices InAs/GaAs*, [Dissertation, Université Paris XI Orsay] (1999). 15
- [Sau99b] S. Sauvage, P. Boucaud, T. Brunhes, A. Lemaître und J.-M. Gérard, *Midinfrared unipolar photoluminescence in InAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **60** (23), 15589 (1999). 3, 14, 16, 69, 78, 80, 81
- [Sau01] S. Sauvage, P. Boucaud, T. Brunhes, V. Immer, E. Finkman und J.-M. Gérard, *Midinfrared absorption and photocurrent spectroscopy of InAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **78** (16), 2327 (2001). 45, 60
- [Sch96] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, M. Oestreich, P. M. Petroff und G. H. Döhler, *Carrier relaxation and electronic structure in InAs self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **54** (16), 11346 (1996). 2, 21
- [Ser95] P. C. Sercel, *Multiphonon-assisted tunneling through deep levels: A rapid energy-relaxation mechanism in nonideal quantum-dot heterostructures*, Phys. Rev. B **51** (20), 14532 (1995). 13
- [Shc99] V. A. Shchukin und D. Bimberg, *Spontaneous ordering of nanostructures on crystal surfaces*, Rev. Mod. Phys. **71**, 1125 (1999). 36
- [She97] Y. M. Shernyakov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, S. V. Zaitsev, A. R. Kovsh, I. L. Krestnikov, A. V. Lunev, N. N. Ledentsov, M. V. Maksimov, A. V. Sakharov,

- V. M. Ustinov, C. Chen, P. S. Kop'ev, Z. I. Alferov und D. Bimberg, *Quantum-dot cw heterojunction injection laser operating at room temperature with an output power of 1 W*, Tech. Phys. Lett. **23** (2), 149 (1997). 42
- [She01] W. Sheng und J.-P. Leburton, *Electron-hole alignment in InAs/GaAs self-assembled quantum dots: Effects of chemical composition and dot shape*, Phys. Rev. B **63** (16), 161301 (2001). 8
- [Sin96] J. Singh, *Possibility of room temperature intra-band lasing in quantum dot structures placed in high-photon density cavities*, IEEE Photonics Technol. Lett. **8** (4), 488 (1996). 3, 63, 66, 88
- [Ste96] M. J. Steer, D. J. Mowbray, W. R. Tribe, M. S. Skolnick, M. D. Sturge, M. Hopkinson, A. G. Cullis, C. R. Whitehouse und R. Murray, *Electronic energy levels and energy relaxation mechanisms in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **57** (24), 17738 (1996). 2
- [Sti99] O. Stier, M. Grundmann und D. Bimberg, *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ theory*, Phys. Rev. B **59** (8), 5688 (1999). 9, 10, 46, 53, 54, 87
- [Sti01a] O. Stier, *Electronic and Optical Properties of Quantum Dots and Wires*, Bd. 7 von *Berlin Studies in Solid State Physics*, Wissenschaft & Technik Verlag, Berlin, [Dissertation, Technische Universität Berlin] (2001). 8, 9, 11, 57, 59
- [Sti01b] A. D. Stiff, S. Krishna, P. Bhattacharya und S. W. Kennerly, *Normal-Incidence, High-Temperature, Mid-Infrared, InAs-GaAs Vertical Quantum-Dot Infrared Photodetector*, IEEE J. Quantum Electron. **37** (11), 1412 (2001). 2
- [Str37] I. N. Stranski und L. Krastanow, *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander*, Akad. Wiss. Wien, Math.-Naturwiss. Klasse **146**, 767 (1937). 36
- [Tan01] S.-F. Tang, S.-Y. Lin und S.-C. Lee, *Near-room-temperature operation of an InAs/GaAs quantum-dot infrared photodetector*, Appl. Phys. Lett. **78** (17), 2428 (2001). 45
- [Tho99] A. Thorne, U. Litzén und S. Johansson, *Spectrophysics: Principles and Applications*, Springer, Berlin (1999). 20
- [Tür01a] V. Türck, *Elektronische Eigenschaften einzelner Halbleiterquantenpunkte*, Mensch & Buch Verlag, Berlin, [Dissertation, Technische Universität Berlin] (2001). 59
- [Tür01b] V. Türck, S. Rodt, R. Heitz, O. Stier, M. Strassburg, U. W. Pohl und D. Bimberg, *Charged Excitons and Biexcitons in Self-Organized CdSe Quantum Dots*, phys. stat. sol. (b) **224** (1), 217 (2001). 59

- [Ulbr03] N. Ulbrich, J. Bauer, G. Scarpa, R. Boy, D. Schuh, G. Abstreiter, S. Schmult und W. Wegscheider, *Midinfrared intraband electroluminescence from AlInAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **83** (8), 1530 (2003). 3, 65
- [Ura01] J. Urayama, T. B. Norris, J. Singh und P. Bhattacharya, *Observation of Phonon Bottleneck in Quantum Dot Electronic Relaxation*, Phys. Rev. Lett. **86** (21), 4930 (2001). 3, 14, 64
- [Vol26] M. Volmer und A. Weber, *Keimbildung in übersättigten Gebilden*, Z. Physik. Chem. **119**, 227 (1926). 35
- [Vor98a] L. E. Vorob'ev, *Intraband population inversion and amplification of IR radiation through charge-carrier injection into quantum wells and quantum dots*, J. Exp. Theor. Phys. Lett. **68** (5), 417 (1998). 3, 63
- [Vor98b] L. E. Vorob'ev, D. A. Firsov, V. A. Shalygin, V. N. Tulupenko, Y. M. Shernyakov, N. N. Ledentsov, V. M. Ustinov und Z. I. Alferov, *Spontaneous far-IR emission accompanying transitions of charge carriers between levels of quantum dots*, J. Exp. Theor. Phys. Lett. **67** (4), 275 (1998). 3
- [Wan99] L.-W. Wang, J. Kim und A. Zunger, *Electronic structures of [110]-faceted self-assembled pyramidal InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **59** (8), 5678 (1999). 10
- [Wan00] L. G. Wang, P. Kratzer, N. Moll und M. Scheffler, *Size, shape, and stability of InAs quantum dots on the GaAs(001) substrate*, Phys. Rev. B **62** (3), 1897 (2000). 36
- [War97] R. J. Warburton, C. S. Dürr, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro und P. M. Petroff, *Charged Excitons in Self-Assembled Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **79** (26), 5282 (1997). 2
- [Wes85] L. C. West und S. J. Eglash, *First observation of an extremely large-dipole infrared transition within the conduction band of a GaAs quantum well*, Appl. Phys. Lett. **46** (12), 1156 (1985). 2
- [Wet00] R. Wetzler, A. Wacker, E. Schöll, C. M. A. Kapteyn, R. Heitz und D. Bimberg, *Capacitance–voltage characteristics of InAs/GaAs quantum dots embedded in a pn structure*, Appl. Phys. Lett. **77** (11), 1671 (2000). 50, 51
- [Wil99] A. J. Williamson und A. Zunger, *InAs quantum dots: Predicted electronic structure of free-standing versus GaAs-embedded structures*, Phys. Rev. B **59** (24), 15819 (1999). 10
- [Win97] N. S. Wingreen und C. A. Stafford, *Quantum-Dot Cascade Laser: Proposal for an Ultralow-Threshold Semiconductor Laser*, IEEE J. Quantum Electron. **33** (7), 1170 (1997). 3, 65

Literaturverzeichnis

- [Xie00] Q. Xie, J. L. Brown, R. L. Jones, J. E. V. Nostrand und K. D. Leedy, *Growth of vertically self-organized InGaAs quantum dots with narrow inhomogeneous broadening*, Appl. Phys. Lett. **76** (21), 3082 (2000). 70
- [Zre00] A. Zrenner, *A close look on single quantum dots*, J. Chem. Phys. **112** (18), 7790 (2000). 21

Veröffentlichungen

Teile der vorliegenden Arbeit wurden bereits veröffentlicht in:

- *Interband and intraband light absorption in InAs/GaAs quantum dots covered by InGaAs quantum wells*,
L. E. Vorobjev, S. N. Danilov, V. Y. Panevin, N. K. Fedosov, D. A. Firsov, V. A. Shalygin, A. D. Andreev, N. N. Ledentsov, V. M. Ustinov, G. E. Cirlin, V. A. Egorov, A. Tonkikh, F. Fossard, K. Moumanis, F. H. Julien, A. Weber und M. Grundmann,
in *Proc. 26th Int. Conf. on The Physics of Semiconductors (ICPS26, Edinburgh, UK, 2002)* (A. R. Long und J. H. Davies, Hg.), IoP, Bristol, Bd. 171 von *Institute of Physics Conference Series*, P228 (2003).
- *Inter-Sublevel Transitions in Quantum Dots and Device Applications*,
Alexander Weber,
in *Nano-Optoelectronics: Concepts, Physics and Devices* (M. Grundmann, Hg.), Springer, Berlin, Kap. 16, 371–390 (2002).
- *Nonequilibrium Spectroscopy of Inter- and Intraband Transitions in Quantum Dot Structures*,
L. E. Vorobjev, A. V. Glukhovskoy, S. N. Danilov, V. Y. Panevin, D. A. Firsov, N. K. Fedosov, V. A. Shalygin, A. D. Andreev, B. V. Volovik, N. N. Ledentsov, D. A. Livshits, V. M. Ustinov, A. F. Tsatsul'nikov, Y. M. Shernyakov, M. Grundmann, A. Weber, F. Fossard und F. H. Julien,
Ultrafast Phenomena in Semiconductors 2001, *Materials Science Forum* **384–385**, 39 (2002).
- *Injection Lasers Based on Intraband Carrier Transitions*,
E. Towe, D. Pal, L. E. Vorobjev, A. V. Glukhovskoy, S. N. Danilov, V. L. Zerova, V. Yu. Panevin, D. A. Firsov, V. A. Shalygin, G. G. Zegrya, A. Weber und M. Grundmann,
Ultrafast Phenomena in Semiconductors 2001, *Materials Science Forum* **384–385**, 209 (2002).

- *Near- and mid-infrared spectroscopy of InGaAs/GaAs quantum dot structures*, V. A. Shalygin, L. E. Vorobjev, A. V. Glukhovskoy, S. N. Danilov, V. Yu. Panevin, D. A. Firsov, B. V. Volovik, N. N. Ledentsov, D. A. Livshits, V. M. Ustinov, Yu. M. Shernyakov, A. F. Tsatsul'nikov, A. Weber und M. Grundmann, *Nanotechnology* **12** (4), 447 (2001).
- *Optical phenomena connected with intraband carrier transitions in quantum dots and quantum wells*, L. E. Vorobjev, S. N. Danilov, A. V. Glukhovskoy, V. L. Zerova, E. A. Zibik, V. Yu. Panevin, D. A. Firsov, V. A. Shalygin, A. D. Andreev, B. V. Volovik, A. E. Zhukov, N. N. Ledentsov, D. A. Livshits, V. M. Ustinov, Yu. M. Shernyakov, A. F. Tsatsul'nikov, A. Weber, M. Grundmann, S. R. Schmidt, A. Seilmeier, E. Towe und D. Pal, *Nanotechnology* **12** (4), 462 (2001),
und (auf Russisch): Izvestiya Akademii Nauk Seriya Fizicheskaya **66** (2), 231 (2002).
- *Calorimetric investigation of intersublevel transitions in charged quantum dots*, K. Goede, A. Weber, F. Guffarth, C. M. A. Kapteyn, F. Heinrichsdorff, R. Heitz, D. Bimberg und M. Grundmann, *Phys. Rev. B* **64** (24), 245317 (2001).
- *Mid-infrared properties of quantum dot lasers*, M. Grundmann, A. Weber, K. Goede, F. Heinrichsdorff, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev und Z. I. Alferov, in *Photonics Technology in the 21st Century* (J. H. Marsh, P. Bhattacharya und O. Wada, Hg.), Bd. 4598 von *Proceedings of SPIE*, 44 (2001).
- *Comment on „Room-temperature long-wavelength ($\lambda = 13.3 \mu\text{m}$) unipolar quantum dot intersubband laser“*, A. Weber, M. Grundmann und N. N. Ledentsov, *Electron. Lett.* **37** (2), 96 (2001).
- *Electrically and optically pumped mid-infrared emission from quantum dots*, A. Weber, K. Goede, M. Grundmann, F. Heinrichsdorff, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev und Z. I. Alferov, in *Proc. 25th Int. Conf. on The Physics of Semiconductors (ICPS25, Osaka, Japan, 2000)* (N. Miura und T. Ando, Hg.), Springer, Berlin, Bd. 87, Part II von *Springer Proceedings in Physics*, 1157 (2001).

-
- *Radiative Inter-Sublevel Transitions in InGaAs/AlGaAs Quantum Dots*,
A. Weber, K. Goede, M. Grundmann, F. Heinrichsdorff, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev und Zh. I. Alferov,
phys. stat. sol. (b) **224** (3), 833 (2001).
 - *Midinfrared emission from near-infrared quantum-dot lasers*,
M. Grundmann, A. Weber, K. Goede, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev und Zh. I. Alferov,
Appl. Phys. Lett. **77** (1), 4 (2000).
 - *Spontaneous mid-infrared emission from quantum dot lasers*,
A. Weber, K. Goede, M. Grundmann, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev und Z. I. Alferov,
in *Proc. 3rd Int. Conf. on Mid-infrared Optoelectronics Materials and Devices (MIOMD III, Aachen)*, O 15 (1999).
 - *Strong normal-incidence infrared absorption in self-organized InAs/InAlAs quantum dots grown on InP(001)*,
A. Weber, O. Gauthier-Lafaye, F. H. Julien, J. Brault, M. Gendry, Y. Désières und T. Benyattou,
Appl. Phys. Lett. **74** (3), 413 (1999).

Danksagung

Bei Prof. Dr. Marius Grundmann möchte ich mich ganz besonders bedanken für die ständige Unterstützung bei meiner Arbeit sowie für die Möglichkeit, unter exzellenten Rahmenbedingungen an einem spannenden Forschungsgebiet unter seiner Leitung arbeiten zu können.

Mein ganz besonderer Dank gilt gleichfalls Herrn Prof. Dr. Dieter Bimberg für seine Unterstützung und Aufmunterungen, sowie die Möglichkeit, lange Zeit in seiner Arbeitsgruppe bei hervorragendem Arbeitsklima mitarbeiten zu können.

Herrn Prof. Dr. Thomas Möller möchte ich für den Prüfungsvorsitz danken.

Meinem Kollegen (und ehemaligen Studenten) Karsten Goede danke ich für die enge Zusammenarbeit und die Unterstützung bei der Durchführung gemeinsamer Experimente, sowie in seiner Eigenschaft als langjährigem Zimmerkollegen, mit dem man über alles diskutieren kann.

Dr. Florian Guffarth möchte ich danken für die gemessenen PLE-Spektren sowie die vertrauensvolle Kooperation und viele interessante Diskussionen über Quantenpunkte und experimentelle Aufbauten.

Für seine $C-V$ Messungen an Diodenstrukturen sowie eine gründliche Einweisung in den Reinraum danke ich Dr. Christian Kapteyn, mit dem mir auch sonst viele interessante Diskussionen gelungen sind.

Für die Herstellung der Proben gilt mein Dank an der TU Berlin Dr. Frank Heinrichsdorff und Kathrin Schatke, sowie Prof. Dr. Victor Ustinov und seiner Arbeitsgruppe am Ioffe-Institut in St. Petersburg.

Bei Dr. Vadim Shalygin möchte ich mich für die Mithilfe bei der Durchführung einiger Experimente bedanken.

Roswitha Riedel, Gabriele Benndorf und Jörg Lenzner danke ich für die Unterstützung bei der Bewältigung der alltäglichen Probleme bei meiner Arbeit.

Den mechanischen Werkstätten der TU Berlin und der Universität Leipzig möchte ich für die stets schnelle und perfekte Umsetzung meiner Konstruktionswünsche danken.

Dr. Robert Heitz danke ich für viele sehr hilfreiche Diskussionen über die Eigen-

schaften von Quantenpunkten. Dr. Oliver Stier und Andrei Schliwa gilt mein Dank für einige durchgeführte Simulationsrechnungen. Dr. Roman Sellin danke ich für viele Informationen über das Quantenpunktwachstum, Sven Rodt für seine Hilfe bei Computerproblemen aller Art, Bernd Ludwig für den Aufbau einiger elektronischer Schaltkreise, Dr. Holger Pfitzenmaier für den Entwurf von Lithographiemasken, Privatdozent Dr. Armin Dadgar vor allem für die Lösung von Problemen im Reinraum, Privatdozent Dr. Axel Hoffmann nicht nur für die hervorragende Zusammenarbeit bei Verwaltungsaufgaben und dem Rest der AG Bimberg für das angenehme Arbeitsklima.

Für seine hilfreichen Korrekturhinweise gilt mein Dank Herrn Prof. Dr. Bernd Rheinländer. Dr. Heidemarie Schmidt sei für gehaltvolle Diskussionen gedankt, Frau Gisela Biehne für manche Probenpräparation und Thomas Nobis für das gute Auskommen als Labormitbenutzer. Holger von Wenckstern, Privatdozent Dr. Matthias Schubert, Susanne Hardt, Dr. Alexander Kasic, Dr. Tino Hofmann und Carsten Bundesmann danke ich für die angenehme Atmosphäre bei gemeinsamen Mensa-Essen und auch dem Rest der Gruppe HLP für das angenehme Arbeitsklima.

Mein Dank geht auch an die Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG), die Europäische Kommission, die Technische Universität Berlin sowie die Universität Leipzig für die finanzielle Unterstützung.

Schließlich gilt mein besonderer Dank für ihre Unterstützung meinen Eltern.

In dieser Arbeit werden Intersubniveau-Übergänge in selbstorganisierten InGaAs/GaAs-Quantenpunkten mit spektroskopischen Methoden untersucht. Das ladungsabhängige Absorptionsverhalten der Nanostrukturen im Mittelinfrarot wird mit einer neuen Kombination aus Fourierspektroskopie und kalorimetrischer Absorptionsspektroskopie erforscht. Optische Absorption in den Quantenpunkten führt zu einer Probenerwärmung durch Ladungsträgerrelaxationen, wodurch nichtstrahlende Intersubniveau-Übergänge in den Quantenpunkten direkt nachgewiesen werden. Die dabei beobachteten Effekte werden durch unterschiedliche Ladungsträgerbesetzung, Pauli-Blockade und Mehrteilcheneffekte in den Quantenpunkten erklärt.

Weiterhin wird mittelinfrarote Emission aus Quantenpunkten sowohl unter optischer als auch unter elektrischer Anregung spektroskopisch untersucht. Je nach Struktur der Wellenleiter in den Proben zeigen sich Emissionspeaks, deren Intensität entweder unterlinear mit der Anregungsleistung ansteigt und schließlich sättigt oder einen signifikant überlinearen Anstieg aufweist. Simulationen eines nahinfraroten Quantenpunktlasers, die auch die gleichzeitige mittelinfrarote Emission berücksichtigen, zeigen, dass der beobachtete überlineare Anstieg durch Intersubniveau-Emission im Lasermode zu erklären ist. Die prinzipielle Machbarkeit eines bipolaren zweifarbigem Lasers, der im Nah- und im Mittelinfrarot emittiert, wird damit gezeigt.