Vergleich von MBE-gewachsenen Quantenpunkten und Quantenfilmen für Laseranwendungen im Materialsystem GaInP

Von der Fakultät Physik der Universität Stuttgart zur Erlangung der Würde eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.) genehmigte Abhandlung

> vorgelegt von Dipl. Phys. Yvonne Marianne Manz

> > aus Stade

Hauptberichter:Prof. Dr. K. v. KlitzingMitberichter:Prof. Dr. T. PfauTag der Einreichung:17. Juni 2003Tag der mündlichen Prüfung:23. Juli 2003

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR FESTKÖRPERFORSCHUNG STUTTGART2003

Inhaltsverzeichnis

Inhalts	verzeichnis	3
Kapite	1 Einleitung	5
Kapitel	2 Selbstordnende niedrigdimensionale Strukturen	_ 9
2.1	Selbstorganisiertes Wachstum von Quantenpunkten	9
2.2	Die vier Wachstumsschritte zur Ausbildung von Inseln	10
2.3	Arsen- und Phosphorhaltige III/V-Halbleiter	12
Kapite	3 Experimentelle Methoden	15
3.1	Molekularstrahlepitaxie	15
3.2	Photolumineszenz	
3.3	Flektrolumineszenz	10 19
34	Röntgendiffraktometrie	_1>
3.5	Resterkraftmikroskonie	20 21
J.J. Kanita	A Strukturalla und antische Figenschaften	21
ларие	4 Strukturene und optische Eigenschaften	_ 23
4.1	wachstumsbedingungen und Probenstruktur	23
4.2	Einfluss der Wachstumsparameter	25
4.3	Gestapelte Quantenpunkte	31
4.3 4.3	 Gekoppelte InP Quantenpunkte verschiedener Wachstumsraten Elektron- und Locheinschluss in gekoppelten InP Quantenpunktsystemen und Magnet lumineszenz 	31 o- 35
4.4	Polarisation	51
4.4	1 Oberflächenpolarisation	51
4.4	2 Konsequenzen der Ordnungsphänomene in GaInP auf die intrinsische Bandstruktur	59
4.4	 Polarisation von MBE gewachsenen InP-Quantenpunkten Polarisationsgrad von InP OP mit 0.01 MI /s Wachstumsrate 	62
4.4	5 Polarisationsabhängige optische Verstärkung beim Ouantenpunkt- und Ouantenfilmlas	00
		67
4.4	6 Polarisationsabhängigkeit bei Emission von gestapelten QP aus der Spaltkante	72
4.5	Zusammenfassung	76
Kapite	5 Vergleich: InP-Quantenpunkt-laser und GaInP-Quantenfilmlaser	_ 77
5.1	Niederdimensionale Laserstrukturen	77
5.1	1 Theorie niederdimensionaler Laserstrukturen	77
5.1	2 Historische Motivation	83
5.1	S Prinzipieller Aufbau	86
5.1 5.1	 Opuscher Fumaktor	91 92
0.1		

5.2	Der Quantenpunktlaser	96
5.2.	Lasercharakteristika von Quantenpunktlasern bei Raumtemperatur	_ 96
5.2.2	2 Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichte und der Elektrolumineszenzspektren	102
5.3	Der Quantenfilmlaser	_108
5.4	Vergleich: InP-Quantenpunkt-Laser und kompressiv verspannter Ga _x In _{1-x} P-	
	Quantenfilmlaser	_112
5.4.	Vergleich der spontanen Emissionsspektra	112
5.4.2	2 Vergleich der Lasercharakteristika	_ 114
5.4.3	3 Modenspektren eines Quantenpunktlasers bei verschiedenen Anregungsströmen und verschiedenen Temperaturen	122
5.4.4	Modenspektren eines kompressiv verspannten GaInP-Quantenfilmlasers bei 80 K	130
5.5	InP-Quantenpunktdioden auf Siliziumsubstrat	_132
5.6	Zusammenfassung	_135
Zusami	nenfassung	137
Kapitel	7 Summary	141
Kapitel	8 Anhang	147
8.1	Abkürzungsverzeichnis	_147
8.2	Literaturverzeichnis	_151
8.3	Veröffentlichungen	_159
8.4	Danksagung	_161
8.5	Lebenslauf	_163

Kapitel 1 Einleitung

Halbleiterlaser verwandeln elektrischen Strom direkt in Laserlicht. Im Vergleich zu anderen Lasern auf atomarer oder molekularer Basis besitzen Halbleiterlaserdioden ausserordentlich kleine Dimensionen von typischerweise $300 \times 100 \times 100 \,\mu\text{m}^3$.

Sie finden heutzutage Anwendung in vielen Bereichen unserer Informations- und Kommunikationsgesellschaft. Dabei haben sie eine lange Entwicklung hinter sich. Schon 1962 wurde Lasertätigkeit eines gepulsten GaAs-*pn*-Übergangs ("Homostruktur") von Robert Hall *et al.* bei 80 K beobachtet [Hal62]. Erst sieben Jahre später konnte ein bei Raumtemperatur (RT) unter kontinuierlichem Betrieb (CW: engl.: <u>c</u>ontinuous <u>wave</u>) funktionierendes Bauelement vorgestellt werden [Hay69].

Die Laserstruktur bestand aus einer Halbleiter-(HL)-Schicht B, z.B. GaAs, die von zwei Mantelschichten A, mit größerer Energiebandlücke umgeben ist, z.B. Al_xGa_{1-x}As mit x = 0,2-0,5, also einer Schichtfolge ABA und wird mit "Heterostruktur" bezeichnet. Die Mantelschichten wurden für die Injektion von Ladungsträgern auf der einen Seite *p*-(meistens Zn) und auf der anderen Seite *n*-dotiert (Si oder Ge).

Die Schwellstromdichten waren damals noch sehr hoch und konnten 1975 durch die Anwendung einer Doppelheterostruktur auf ca. 0,5 kA/cm² reduziert werden [Alf70]. Das Erfolgsrezept basierte auf der Idee, die optische Welle innerhalb zweier Materialien B mit kleinerem Brechungsindex zu führen und gleichzeitig die Ladungsträger im Maximum der Welle zu konzentrieren, d.h. in einer Halbleiterschicht C. Der Wellenleiter B selbst wird wie bei der Heterostruktur noch von HL-Schichten mit einer größeren Energielücke als die der Materialien A und B, ummantelt. Die Struktur hat dann die Form ABCBA.

Ende der 70er Jahre erkannte man, dass sich die Lasereigenschaften noch verbessern lassen, indem man die Schicht mit dem größeren Brechungsindex nur wenige Nanometer dick macht [Din74], [Van75]. Der Quantenfilm (QF)-Laser war entstanden.

Die Weiterentwicklung der Halbleiterlaser wäre ohne die Möglichkeit, Schichtfolgen auf eine Monolage (ML) genau abzuscheiden, wie es die Molekularstrahlepitaxie (MBE) und Metallorganische Gasphasenepitaxie (MOVPE) bietet, nicht realisierbar gewesen. Innerhalb einer wenige Nanometer dicken HL-Schicht ist die Bewegungsfreiheit der Ladungsträger auf die QF-Ebene beschränkt, so dass senkrecht dazu die Energiezustände im Valenz- und Leitungsband quantisiert sind. Im Vergleich zum Volumenhalbleiter hat man auf diese Weise die Zustandsdichte für die Ladungsträger massiv verändert, was sich auf die Lasereigenschaften auswirkt. Die niedrigste Schwellstromdichte, die man mit einem QF-Laser erzielen kann, beträgt heute lediglich 44 A/cm² bei RT für einen 3 mm langen Laser aus einer Einzel-QF-Schichtstruktur aus InGaAs/GaAs bei einer Emissions-wellenlänge von 985 nm [Dio96].

1982 erkannten Arakawa *et al.*, dass eine sukzessive Reduzierung der Dimensionalität des laseraktiven Mediums eine Verbesserung der Lasereigenschaften zu Folge haben müßte [Ara82]. Sie errechneten, dass mit Reduktion der Dimensionalität der Zustandsdichte ein höherer Materialgewinn, kleinere Schwellstromdichten, eine geringere Abhängigkeit der Schwellstromdichte von der Temperatur und größere Modulationsbandbreiten zu erwarten sind und schlugen das Prinzip des Quantenpunkt (QP)-Lasers vor. Unter einem QP versteht man das Konglomerat von nur wenigen tausend HL-Atomen, das für die darin befindlichen Ladungsträger nur eine so geringe Ausdehnung hat, dass sie in allen drei Raumrichtungen nicht mehr frei beweglich sind, d.h. ihre Energien in allen Richtungen vollständig quantisiert sind.

Auf dem Weg zur Reduzierung der Dimensionalität wurden zunächst photo-lithographische Methoden und anschliessendes naß- und trockenchemisches Ätzen verwendet, um 10-50 nm große Strukturen zu erhalten. Es stellte sich allerdings heraus, dass durch die Schädigung der feinen Strukturen und eine relativ schlechte Reproduzierbarkeit diese Prozesstechnik keine Serienreife erreichen würde.

Eine vielversprechende Methode, die Dimensionalität zu reduzieren ist das Überwachsen von vorstrukturierten V-förmigen Gräben in der MBE oder MOVPE. Auf diese Weise ist es im Materialsystem InGaAs/GaAs gelungen, Quantendrahtstrukturen herzustellen. (Siehe z.B. [Sch00] für MBE und [Kap89] für die Realisierung von Quantendrahtlasern mit MOVPE.)

Eine alternative Methode zur Herstellung von OP, die sich durchgesetzt hat, nutzt den Effekt der Selbstorganisation beim Wachstum verspannter dünner Schichten aus. Bei geeigneten Epitaxiebedingungen können sich nach Abscheidung weniger Monolagen des verspannten Materials nanometergroße Inseln ausbilden. Dieser Wachstumsmodus wurde bereits 1938 von Stranski und Krastanov vorausgesagt [Str38]. Durch die Formation kohärenter, also versetzungsfreier Inseln, kann die Verspannungsenergie auf Kosten einer höheren Oberflächenergie reduziert und somit die Energie des Gesamtsystems abgebaut werden. Wegen des vergleichsweise geringen technologischen Aufwandes und der gut erzielbaren Kristallqualität der so hergestellten QP hat sich dieser Wachstumsmodus heute zum Standardverfahren entwickelt. Nachteilig und bis heute ungelöst ist die reduzierte Kontrolle über die Position der einzelnen QP auf dem Substrat und die statistische Größenverteilung der QP, die sich durch eine inhomogene Verbreiterung der Emissionsspektren bemerkbar macht [Leo95b]. Die Größe der QP ist somit innerhalb epitaktischer Rahmenbedingungen nur durch die Wahl der Komposition der HL-Elemente im entsprechenenden Materialsystem und durch die Wahl der Wachstumsbedingungen wie Druck, Rate und Wachstumstemperatur kontrollierbar. Die inhomogene Verbreiterung der Emissionsspektren kann sich auf die Lasereigenschaften nachteilig auswirken.

Erst kürzlich gelang es unserer Gruppe, InAs-QP auf elektronenlithograpisch vorstrukturierten GaAs-Substraten mit einer Defektdichte von < 0,23 % herzustellen [Hei03]. Bisher erzielte man mit dieser Methode noch keine Verbesserung der optischen Eigenschaften, aber die Entwicklung auf diesem Gebiet besitzt auch für andere Materialsysteme noch viel Potential und befindet sich noch im Anfangsstadium.

1994 wurde erstmals ein QP-Laser basierend auf selbstorganisierten InGaAs/GaAs-QP vorgestellt [Kir94]. In den darauffolgenden Jahren ist das Interesse an diesem Bauelement sehr stark angestiegen und vor allem in dem epitaktisch leichter kontrollierbaren Materialsystem InGaAs/GaAs im Vergleich zu dem in dieser Arbeit verwendeten InP/GaInP-System sind sehr viele Forschungsanstrengungen unternommen worden, um einerseits die Grenzen des Möglichkeiten hinsichtlich Laserapplikation auszuloten, andererseits um die physikalischen Effekte besser zu verstehen.

So wurden in den darauffolgenden Jahren weitere QP-Laser realisiert, wovon hier nur wenige ausgewählte genannt werden können:

- Die Rekordschwellstromdichte eines QP-Lasers liegt heute bei $j_{thr} = 19 \text{ A/cm}^2$ (für L = 20 mm lange Resonatoren!) bei RT und einer Wellenlänge von $\lambda = 1,3$ µm [Shc00].
- Die höchste heute erzielte optische Ausgangsleistung eines QP-Lasers beträgt *P* = 3 W im Dauerstrichbetrieb bei RT [Hei00].
- Vertikalemitter mit QP als aktives Material wurden bei $\lambda = 1,3 \mu m$ und im rotemittierenden Bereich verwirklicht [Lot00], [But00].
- Ein QP-DFB-Laser für $\lambda = 1,3 \,\mu m$ konnte realisiert werden [Klo01].

Die Wellenlänge $\lambda = 1,3 \,\mu\text{m}$ im infraroten Spektralbereich (ebenso wie $\lambda = 1,5 \,\mu\text{m}$) sind technisch von besonderer Bedeutung, weil die für die optische Datenübertragung verwendeten Glasfasern auf Silikatglasbasis hier Absorptionsminima aufweisen [Kne95].

Aber auch HL-Laserdioden mit Emissionswellenlängen im sichtbaren roten Bereich, finden in der Technik Anwendung: in der Unterhaltungselektronik (CD, DVD usw.), in der Medizintechnik, in magneto-optischen Speicherlaufwerken, Laserdruckern usw.

Die zur Realisierung von Laserdioden für den sichtbaren Emissionswellenlängenbereich heute zur Verfügung stehenden Materialsysteme sind GaInP/AlGaInP/GaAs QF-Laser (rot) [Jal97], [Ser91], [Kat92] und neuerdings auch InGaN/GaN-QF (blau-violett) [Nak96].

QP-Laser im roten Wellenlängenbereich wurden mit AlInAs QP/GaAs [Faf96] und InP-QP/GaInP verwirklicht. Die erste bei RT funktionierende elektrisch betriebene InP-QP-Laserdiode wurde mittels MBE hergestellt und wird in dieser Arbeit beschrieben [Man00]. Aufgrund der im Vergleich zu InAs-QP/GaAs geringen Einschlusspotentiale im Materialsystem AlInAs/AlGaAs und InP/GaInP, besitzen rote QP-Laser bis heute eine schlechte Temperaturstabilität [Faf98], [Rie98].

In der vorliegenden Arbeit wurde die Herstellung von selbstorganisierten InP-QP auf GaInP mittels MBE hinsichtlich Laseranwendung untersucht.

In Kapitel 2 wird zunächst das selbstorganisierte Wachstum und die einzelnen Wachstumsschritte zur Entstehung von QP vorgestellt. In Kapitel 3 werden die prinzipiellen Methoden wie MBE, Photolumineszenz (PL) und Elektrolumineszenz (EL), Röntgendiffraktometrie (XRD) und Rasterkraftmikroskopie (AFM) erläutert.

Danach werden in Kapitel 4 die Struktur und die optischen Eigenschaften der QP untersucht. Das Kapitel untergliedert sich in zwei Hauptaspekte: Nachdem der Einfluss der verschiedenen Wachstumsbedingungen auf die InP-QP analysiert wird, folgt im Abschnitt 4.3 eine genauere Betrachtung der optischen Eigenschaften der gestapelten QP. Verschiedene Konfigurationen der für Laseranwendungen in Frage kommenden QP-Stapel werden mittels herkömmlicher und Magneto-PL untersucht.

In Abschnitt 4.4 werden die Polarisationseigenschaften der InP-QP, der kompressiv verspannten QF und des GaInP-Wellenleiterschichten untersucht. Dabei soll der Einfluss der anisotropen optischen Eigenschaften des Wellenleitermaterials auf die in ihm eingebetteten Nanostrukturen untersucht werden. Ein besonderes Augenmerk wird auf den Einfluss der Polarisationseigenschaften hinsichtlich der Lasereigenschaften gerichtet. Im Kapitel 5 werden zunächst die prinzipiellen Eigenschaften niederdimensionaler Systeme und deren Umsetzung auf Laserbauelemente diskutiert und vor einen historischen Hintergrund gestellt.

Nach einer Übersicht über die epitaktische Herstellung und Prozessierung der Laserdioden werden die elektro-optischen Lasercharakteristika eines QP- und eines QF-Lasers, beide unter den gleichen Wachstumsbedingungen in einer MBE-Maschine hergestellt, bei RT und in Abhängigkeit von der Temperatur miteinander verglichen. Dabei werden besonders die Schwellstromdichten, die spektralen Eigenschaften der spontanen und der induzierten Emission in Abhängigkeit von der Temperatur, die Quantenausbeute und die spektrale Verstärkung für den Vergleich der beiden Laserarten zu Rate gezogen.

Daran schließen sich vergleichende Betrachtungen der modalen Spektren beider Laserarten an. Zum Schluss wird noch kurz über die Beobachtung von Elektrolumineszenz einer InP-QP-LED (licht-emittierende Diode) auf Silizium-Substrat berichtet. Mit QP-Strukturen erwartet man im Vergleich zu QF-Strukturen trotz hoher Versetzungsdichten beim Wachstum von III-V-HL auf Silizium noch hinreichend starke optische Lumineszenz, siehe Abschnitt 5.5.

Kapitel 2 Selbstordnende niedrigdimensionale Strukturen

In den folgenden drei Abschnitten wird kurz das Konzept der möglichen Wachstumsmodi vorgestellt, siehe Abschnitt 2.1, um dann die Prozesse beim Wachstum selbstordnender Inseln zu erläutern, siehe Abschnitt 2.2. Das für diese Arbeit wichtige Materialsystem InP/GaInP wird in Abschnitt 2.3 eingeführt. Auf dem Phosphorsystem basierende Halbleiterkompositionen, hergestellt mittels Molekularstrahlepitaxie, im Vergleich zum Arsen-System sind wegen ihrer von den jeweiligen Wachstumsbedingungen abhängigen Ordnungsphänomene noch wenig erforscht ist, siehe Abschnitt 2.3.

2.1 Selbstorganisiertes Wachstum von Quantenpunkten

Unter Quantenpunkten (QP) versteht man Halbleiterkristalle mit wenigen Nanometern Ausdehnung und nur einigen tausend Atomen, welche ringsherum von einem anderen Halbleitermaterial mit größerer Bandlücke umgeben sind, so dass sowohl für Elektronen als auch für Löcher eine energetische Barrierenwirkung entsteht.

Das Prinzip der Selbstorganisation ist eine sehr einfache und elegante Methode sie heteroepitaktisch herzustellen.

In der Literatur werden je nach Stärke der Deposit-Substratwechselwirkung hauptsächlich zwischen planarem Wachstum, Inselwachstum und Stranski-Krastanov-Wachstum unterschieden. Dabei kommt es auf das Verhältnis der Oberflächenenthalpie σ_s des Substrates zur Summe der Oberflächenenthalpie des aufwachsenden Filmes σ_e und der Grenzflächenenthalpie σ_g an, wie in Abbildung 2.1 verdeutlicht.



Abbildung 2.1 Je nach Verhältnis der Oberflächenenthalpie σ_s des Substrates zur Summe der Oberflächenenthalpie des aufwachsenden Filmes σ_e und der Grenzflächenenthalpie σ_g erfolgt das Wachstum bei der Heteroepitaxie durch die Wachstumsmodi: (a) Frank-van-der-Merwe, (b) Vollmer-Weber und (c) Stranski-Krastanov-Wachstum.

Beim planaren Wachstum wie in Abbildung 2.1 (a) ist die spezifische Oberflächenenthalpie des Substrates größer als die des aufwachsenden Filmes. Dann benetzt der Film das Substrat und es tritt ein glattes monolagenweises Wachstum auf (Frank-vander-Merve- Wachstum) [Van63]. Ist die Oberflächenthalpie des Substrates geringer als des Filmes, so benetzt das Depositmaterial seine Unterlage nicht und das Wachstum ist durch eine Minimierung der Oberfläche bestimmt; es bilden sich sofort dreidimensionale Inseln ohne Benetzungsschicht aus (Vollmer-Weber-Wachstum), siehe Abbildung 2.1 (b) [Vol26]. Zwischen den beiden Grenzfällen gibt es einen dritten Modus, der Stranski-Krastanov-Wachstum (SK-Wachstum) genannt wird, siehe Abbildung 2.1 (c) [Str38]. Hier geht das anfängliche planare Wachstum ab einer bestimmten kritischen Schichtdicke d_{krit} in Inselwachstum über. Grund für dieses Verhalten ist meistens eine Gitterfehlanpassung. Das Substrat kann dem Film beim Beginn des Wachstums noch seine Gitterkonstante aufprägen. Aufgrund der Verspannung aber nimmt die Grenzflächenenthalpie σ_g mit zunehmender Filmdicke zu, so dass es ab einer sog. kritischen Schichtdicke d_{krit} energetisch günstiger wird, Inseln oder/und Versetzungen auszubilden. Bleibt die Dicke der verspannten Schicht unterhalb der kritischen Schichtdicke, nimmt der verspannte Film die laterale Gitterkonstante des darunterliegenden Substrates an. Man spricht von pseudomorphem Wachstum.

In der folgenden Tabelle sind einige Beispiele für Materialsysteme gezeigt, bei denen SK-Wachstum beobachtet wurde.

Materialsystem	$\Delta a/a$	d _{krit} (ML)	E (eV)	Referenz
In(Ga)As/GaAs	$\leq 7\%$	1,7	0,95-1,2	[Mar94]
Ga _x In _{1-x} P/GaP	≤7,7%	~ 2	1,9-2	[Por00a], [Lee97]
InP/Ga _x In _{1-x} P	3,7 %	1-2	1,64-1,82	[Car94], [Kur95a], [Por98]
InP/GaAs	3,7 %	2,5-3,5	-	[Sop95]
Al _x In _{1-x} As/	$\leq 7\%$	~ 1,5-3,8	1,7-1,9	[Leo95a]
Al _y Ga _{1-y} GaAs				
Si/Ge	4,2 %	~ 3	0,6-1,1	[Ebe00], [Eag90], [Den03]

Tabelle 2.1 Beispiele von Materialsystemen, bei denen in der Heteroepitaxie Stranski-Krastanov-Wachstum auftritt.

2.2 Die vier Wachstumsschritte zur Ausbildung von Inseln

Begleitend zu der folgenden Abbildung 2.2 kann man sich das Wachstum von kohärenten SK-Inseln wie folgt vorstellen.

1.) Eine Voraussetzung für das SK-Wachstum ist die Ausbildung eines komplett benetzenden Filmes.

2.) Nach einer gewissen kritischen Schichtdicke d_{krit} ist es energetisch günstiger Inseln auszubilden als einen pseudomorph verspannten Film. Die Keimbildung findet hauptsächlich an natürlichen Terassen, lokalen Defekten oder an Fremdatomen statt. Allerdings ist der genaue Keimbildungspozess noch nicht vollständig verstanden.

3.) Bei der weiteren Entwicklung der Inseln wird nach Shchukin *et al.* die Freie Energie, die sich aus der elastischen Energie, der Oberflächenenergie und der Energie an den Inselrändern additiv zusammensetzt, minimiert [Shc95]. Diese rein energetische Be-

trachtung vernachlässigt kinetische Effekte und gilt daher strenggenommen nur bei T = 0 K. Je nach Verhältnis von Oberflächenenergie zur Inselrandenergie kommt es zur Ostwaldreifung der Inseln [Ost00], also zur Bildung von wenigen großen Inseln, so lange bis die Freie Energie der Inseln mit einer gewissen Anzahl von Atomen energetisch minimal geworden ist.

Ein alternativer Ansatz in der Literatur betrachtet rein kinetische Prozesse für die Ursache der Inselbildung [Che96]. Das Wachstum der Inseln wird durch die Adsorbtion von Atomen an die Inselkeime durch ein mechanochemisches Potential beschrieben. Durch weiteres Wachstum der Inseln entsteht eine erhöhte Gitterverzerrung an den Inselrändern, welche als Diffusionsbarriere für die Adsorbtion weiterer Atome wirkt. Dadurch wird ein zusätzlicher Fluss von Adatomen an die Inseln limitiert und die Wachstumsrate der Inseln nimmt mit zunehmenden Radius ab. Die endgültige Inselgröße wird determiniert durch die dynamische Balance zwischen der Adatomdichte und der Abwanderungsrate der Adatome durch die eben beschriebene Diffusionsbarriere, die durch die Verspannung der Inseln gegeben ist. Diese Betrachtung eines rein dynamischen Gleichgewichtes wurden von Barabasi eingeführt [Bar97]. Das führt zu einem "selbstordnenden" Effekt mit einer Homogenisierung der Größenverteilung.

4.) Nimmt die Inselgröße noch weiter zu, dann kommt es wegen der inneren Verspannungen zur Nukleation von Versetzungen, weil somit die Verspannung an den Inselrändern abgebaut werden kann.



Abbildung 2.2 (a): Schema einer kohärenten freistehenden Insel mit Benetzungsschicht aus Material mit einer größeren Gitterkonstante als das Substrat. Die Pfeile deuten die elastische Verspannungsrelaxation der Insel während des Wachstums an, um die elastische Energie in ihr abzubauen. (b): Eingebettete, kompressiv verspannte Insel (an den Stellen 3) in einer Matrix mit kleinerer Gitterkonstanten. Durch die kompressive Verspannung kommt es im Matrixkristall direkt über der Insel zu Dilatationen (Ausdehnungen) (4) und neben der Insel zu Kompressionen (5), die auch an der Oberfläche erhalten bleiben (Keimzentren). Bei starker Gitterfehlanpassung kann es auch zu einer Durchmischung des Inselmaterials mit der Matrix kommen (1) oder während des Wachstums zu Segregation (Aufschwemmen) von Inselatomen Richtung Oberfläche (2).

Beim weiteren Überwachsen der Inseln mit dem Matrixmaterial werden diese in das Wirtsgitter eingebettet. Da dieses, in unserem Fall Ga_{0,52}In_{0,48}P, eine kleinere Gitterkonstante hat als die Inseln selbst, wird das Matrixgitter direkt über den Inseln gedehnt und neben den Inseln gestaucht, siehe Abbildung 2.2 b). Das führt bei dünnen überwachsenen Schichten, den sogenannten Zwischenschichtdicken, zu einer Modulation der Git-

terkonstanten über den Inseln, die bis zur Oberfläche der Zwischenschicht reichen kann, so dass es zu einer Nukleation der Inseln in der nachfolgenden QP-Schicht direkt vertikal über denen der unteren QP-Schicht kommen kann. Welche Voraussetzungen für diesen Effekt für InP-QP notwendig sind, wird in Abschnitt 4.3 besprochen. Unter bestimmten Bedingungen wie sehr starke lokale Verspannungen (von z.B. stark gitterfehlangepassten Inseln oder Mehrfachstapelung) oder hohen Wachstumstempe-raturen können Inselatome (hier Indium) schon beim Bildungsprozess zur Oberfläche aufschwimmen (Segregation) oder die Inseln können sich mit der umgebenden Matrix vermischen. Diese Vorgänge führen wegen der Verkleinerung des Inselvolumens zu einer Absenkung der Einschlussenergie für Elektronen und Löcher (engl.: "quantum size effect") und damit zu einer Blauverschiebung des spontanen Emissionsspektrums.

2.3 Arsen- und Phosphorhaltige III/V-Halbleiter

In der folgenden Abbildung 2.3 ist die Bandlücke in Abhängigkeit von der Gitterkonstanten für die auf As- und P-basierenden Halbleiterverbindungen dargestellt. Man kann sehen, dass man für die Kompositionen 0 < x < 1 in der Verbindung Ga_xIn_{1-x}As-Bandlücken von 1,42-0,36 eV, also Lichtemission außerhalb des sichtbaren Bereiches erhalten kann. Die Gitterverspannungen können dann Werte von 0-6,7 % betragen. Die Emissionsenergien der Inseln entsprechen natürlich nicht einfach denen der Volumenkristallverbindungen, sondern hängen stark von der Größe, Form und dem Grad der Verspannung ab. Zudem bilden sich nicht bei jeder möglichen Komposition SK-Inseln aus, vielmehr ist, wie wir im vorangegangenen Abschnitt gesehen haben, eine Mindestverspannung notwendig.



Abbildung 2.3 Energielücke der auf As- und P-basierenden III-V-Halbleiter und von Si und Ge in Abhängigkeit von der Gitterkonstanten bei RT.

Das Materialsystem $Ga_{1-x}In_xP$ besitzt Energielücken von 1,88-1,35 eV, für die Kompositionen 0,48 < x < 1 und den entsprechenden Gitterfehlanpassungen von 0-3,7 %, d.h. rekombinierende Elektronen-Loch-Paare senden Photonen mit Energie im sichtbaren Bereich aus. Durch Interpolation der Bandlücken von GaP und InP kann man die Bandlücke von Ga_xIn_{1-x}P wie folgt erhalten [Ada82], [Lan82]:

$E_G(\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}) = 1,35 + 0,643x + 0,786x^2$	mit $0 \le x \le 1$ bei $T = 300$ K.
Gitterkonstante a (Vegard`s Law): a = 5,45x + 5,87 (1-x)	mit $0 \le x \le 1$ bei $T = 300$ K.
Für Al _x In _{1-x} P gilt: $E_G(Al_xIn_{1-x}P) = 1,34 + 2,23x$	für $0 \le x \le 1$ bei $T = 300$ K.

Die Gitterkonstante entspricht bei x = 0.53 mit a = 5.65 Å dem Wert des Substratmaterials GaAs.

Allerdings ist bei der Bestimmung dieser Kenndaten zu beachten, dass sie keineswegs allgemeingültig sind, sondern stark vom Wachstumsmechanismus und somit vom Ordnungsgrad des Materials abhängig sind. So haben DeLong *et al.* anhand von Annealing-Experimenten aus MBE/MOVPE gewachsenen GaInP-Proben im Vergleich mit LPE-Proben (engl.: liquid phase epitaxy) ein Wachstumsprozess, der im Vergleich zu den beiden anderen Methoden der Abscheidung dem thermodynamischen Gleichgewicht am nächsten kommt) eine Bandlücke von (2,010 ± 0,007) eV bei 4 K gemessen [DeL95]. Die Photolumineszenz-(PL)-Messung von MBE-gewachsenen GaInP-Proben ergibt dagegen eine Bandlücke von 1,95 eV (bei T = 5 K). Diese Diskrepanz zu erklären ist nicht trivial und soll in Abschnitt 4.4.2 diskutiert werden.

Für die Banddiskontinuitäten für einen $Ga_xIn_{1-x}P/(Al_yGa_{1-y})_{0,52}In_{0,48}P$ -Quantenfilm (für den Spezialfall in Kapitel 4 gilt y = 0) gibt es in der Literatur verschiedene Ergebnisse, wobei die meisten ein Verhältnis von $\Delta Ec/\Delta E_G = 0,67$ berechnen [Daw94], [Yow95], [Kow95], [Naj95].

Unter Voraussetzung dieses Wertes wird in Abschnitt 5.2 die Bandlücke eines verspannten Quantenfilmes Ga_xIn_{1-x}P/Ga_{0,52}In_{0,48}P bestimmt und die Eigenwerte der eingeschlossenen Ladungsträger in einem Quantentopf variabler Dicke als selbstkonsistente Lösung der Schrödingergleichung berechnet.

Kapitel 3 Experimentelle Methoden

3.1 Molekularstrahlepitaxie

Grundlage zur atomar genauen Abscheidung von Halbleitermaterialien ist die Technik der Molekularstrahlepitaxie (MBE, engl.: <u>m</u>olecular <u>b</u>eam <u>e</u>pitaxy).

Voraussetzung für Molekularstrahlen ohne Restgasverunreinigungen ist ein Ultrahochvakuum, das in einer Edelstahlkammer durch das ständige Evakuieren durch Kryopumpen, Ionenpumpen und Titan-Sublimationspumpen bis zu Drücken von ca. $1-3 \times 10^{-11}$ Torr erreicht werden kann. Der Kammerdruck wird durch Vakuum-ionisationsröhren ständig überprüft und die elementspezifischen Partialdrücke mittels Quadrupolmassenspektrometer gemessen. Im Innern der Kammer befindet sich ein "Kühlmantel" (engl.: cooling shroud), der mit flüssigem Stickstoff durchflossen ist, um ein Abdampfen von Materialien an den Kammerwänden in den Innenraum zu verhindern und so den Kammerdruck um ca. 2 Größenordnungen verbessert. Eine solche MBE-Maschine ist in Abbildung 3.1 schematisch dargestellt¹.

Das Substrat, in den meisten Fällen ein 2 "Wafer aus GaAs-Material, wird in einer Ladekammer eingeschleust, die evakuiert und eine halbe Stunde auf ca. 120 °C gebracht wird. Dann wird es auf einer Heizung in der Präparationskammer auf 350-400 °C für wiederum 30 min ausgegast, bevor es in die Wachstumskammer eingeschleust wird. Hier wird es mittels Substratheizung auf die gewünschte Temperatur aufgeheizt und wahlweise im As- oder Phosphor (P)-System mit Al-, In- und Ga-Molekularstrahlen bedampft. Als Dotierstoffe stehen Si und Be zur Verfügung. Zur Homogenisierung der Epitaxieschichtdicke kann der Wafer auf dem Substrathalter rotiert werden. Die Effusionszellen und das Substrat werden PC-gesteuert beheizt und die Temperaturen mit einem Thermoelementfühler über Eurotherm-Regler überwacht. Für den Wachstumsprozess werden je nach gewünschter Wachstumsrate von typischerweise 0,5 ML/s die Zellentemperaturen eingestellt und die Blende PC-gesteuert geöffnet. Ein hochenergetischer Elektronenstrahl aus einer auf 20 kV eingestellten RHEED-Kanone (Reflective High Energy Electron Diffraction) fällt streifend auf die Halbleiteroberfläche und die reflektierte Strahlung wird auf einem fluoreszierenden Bildschirm sichtbar gemacht. Die Reflexionsstruktur auf dem RHEED-Schirm gibt Aufschluss über die Qualität der Epitaxieschicht. Eine detaillierte Beschreibung des Wachstumsmechanismus wird in Kapitel 4 gegeben.

¹ Die verwendete MBE ist eine RIBER, Typ 32 P.



Abbildung 3.1 Schema einer MBE-Anlage für III-V-Halbleiter.

3.2 Photolumineszenz

Absorbiert ein Halbleiter Photonen mit einer Energie größer als die Bandlücke des Halbleiters, dann kommt es zur Bildung von Elektronen- und Lochpaaren, die in die Bandminima bzw. niedrigsten exzitonische Zustände relaxieren. Die anschließende Emission eines Lichtquants mit der Energie entsprechend des energetischen Abstandes der elektronischen Zustände des Halbleiters, wird als Photolumineszenz (PL) bezeichnet.

Man erhält also Informationen über die an der strahlenden Rekombination beteiligten elektronischen Niveaus und die Effizienz von Ladungsträgereinfang und rekombination. Dabei bestimmt man insbesondere die energetischen Minima der Ladungsträger im Leitungs- und Valenzband.

Die Valenzbandstruktur der meisten III-V-Halbleiter ist schematisch in Abbildung 3.2 dargestellt: Das vierfach entartete Valenzbandmaximum befindet sich am Γ -Punkt (in Analogie zu den p-Orbitalen mit der Quantenzahl l = 1), also im Zentrum der Brillouinzone bei k = 0, was zusammen mit dem Leitungsbandminimum an derselben Stelle die direkten optischen Übergänge mit $\Delta k = 0$ hervorruft². Das vierfach entartete Band teilt sich für $k \neq 0$ in das Leichtlochband (*lh*) und das Schwerlochband (*hh*). Der Name erklärt sich daraus, dass die effektive Masse umgekehrt proportional zur Krümmung der Bänder ist, $d^2E/dk^2 = \hbar^2/m_{eff}$. Aufgrund von Spin-Orbit-Kopplung existiert noch ein energetisch verschobenes Band, welches spin-abgespaltenes Band (*so*) genannt wird. In der Abbildung 3.2 sind noch einmal die wesentlichen Prozesse bei der PL schematisch

² Die elektronischen Zustände sind Eigenfunktionen des Gesamtdrehimpulses j = l+s in z-Richtung für das *lh*- und *hh*-Band an der Stelle k = 0 mit folgenden Quantenzahlen: $|3/2, 3/2\rangle$; $|3/2, 1/2\rangle$; $|3/2, -1/2\rangle$; $|3/2, -3/2\rangle$; für das spinabgespaltene Band: $|1/2, 1/2\rangle$; $|1/2, -1/2\rangle$ [Yu96].

dargestellt: Anregung durch ein einfallendes Photon mit größerer Energie $\hbar\omega_0$ als die Bandlücke $E_G(1)$, Absorption durch ein Elektron im Valenzband. Anschliessend Besetzung des Leitungsbandes unter Zurücklassung eines Loches im Valenzband, Relaxation des Elektrons (Loches) zum energetisch niedrigsten (höchsten) Niveau im Band (2). Im Fall eines Quantenfilms können sich Ladungsträger im Film und in der Ebene senkrecht zur Wachstumsrichtung frei bewegen, für einen Quantendraht nur in einer Richtung, für Quantenpunkte ist keine Bewegung mehr möglich.

Die Elektron- bzw. Löcherrelaxation läuft durch Streuprozesse mit Phononen ab und kann bei Quantenpunkten dann zu dem "Phonon-Bottleneck-Effekt" führen, wenn sich die Niveauabstände wesentlich von den Energien der Phononen unterscheiden. Bei QF ist die Streuwahrscheinlichkeit der Ladungsträger an longitudinal optischen (LO)-Phononen noch ähnlich groß wie im Volumenhalbleiter, für QP reduziert sich die Streurate, da die Ladungsträger wieder in Zustände mit endlicher Zustandsdichte gestreut werden müssen. Das bedeutet, dass die Wahrscheinlichkeit, dass der Abstand ΔE zwischen zwei diskreten Energiezuständen gerade mit der Energie eines LO-Phonons $\hbar \omega_{LO}$, gering ist. Hinzu kommt, dass die Besetzungswahrscheinlichkeit für die tieferen Zustände der Löcher im Valenzband größer ist als für die Elektronen im Leitungsband, weil die Einergieaufspaltung wegen der größeren effektiven Masse im Valenzband kleiner ist. Die strahlende Rekombination zwischen Zuständen mit unterschiedlichen Quantenzahlen ist aber wegen der Auswahlregel $\Delta n = \Delta m = \Delta l = 0$ verboten³, so dass es möglich ist, dass die Relaxation in tiefere Zustände verzögert wird.

Für optisch stark gepumpte InP-QP wurde dieser Effekt auch schon diskutiert [Mor96]. Man hat für InP-QP/GaInP LO-Phononenenergien von 46 meV gefunden, die recht gut mit den theoretisch vorhergesagten Niveauabständen von 40 meV für einen 7 nm hohen InP-QP übereinstimmt [Vol96] und ist daher geneigt, den "Phonon-Bottleneck-Effekt" dem Materialsystem abzusprechen, zumal andere Mechanismen in der Literatur für die schnelle Relaxation der Ladungsträger in QP bekannt sind, z.B. Multiphononen- und Auger-Prozesse [Ino97], [Boc90].

Befinden sich die Ladungsträger jeweils am Valenzbandmaximum (Löcher) und Leitungsbandminimum (Elektronen), findet die Rekombination des Elektron-Loch-Paares mit der Photonenergie $E_G = hv_I$ (der Bandlückenenergie des Halbleiters) statt (3). Die Wechselwirkung dieses Elektron-Loch-Paares geschieht via Coulomb-Wechselwirkung und die Energieniveaus dieses Zweiteilchensystems ähneln denen des Wasserstoffatoms und befinden sich direkt unterhalb der Leitungsbandkante. Die Energiedispersion dieser sog. Exzitonen für ein parabolisches Band lautet:

$$E(n,K) = E_g - \frac{Ry^*}{n^2} + \frac{\hbar^2 K^2}{2M}, \text{ mit } R_y^* = 13,6eV \frac{\mu}{m_0 \varepsilon^2} \text{ und } \mu = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h} \text{ Gleichung 3.1.}$$

 R_y^* ist die Rydbergenergie des Exzitons, *n* eine Quantenzahl, *K* der Wellenvektor des Exzitons, $M = m_e + m_h$ die Gesamtmasse des Exzitons, μ die reduzierte effektive Masse des Exzitons, die sich aus der effektiven Masse m_e des Elektrons und m_h des Loches ergibt. Für InP ist $m_e = 0.0765m_0$; $m_{lh} = 0.089m_0$; $m_{hh} = 0.85m_0$; $\mu = 0.0678m_0$; $m_0 = 9.11 \times 10^{-31}$ kg [Lan82] (bei RT). Für Ga_{0.5}In_{0.5}P ist die Angabe der effektiven Massen nicht trivial, da diese sehr von den Wachstumsparametern abhängen. Das liegt daran, dass diese den Grad der Ordnung des ternären Materials bestimmen. Für MOVPE ge-

³ Das gilt so streng nur für hochsymmetrische QP mit unendlich hohen Potentialbarrieren.

wachsenes GaInP hat man für ungeordnetes GaInP eine effektive Elektronenmasse von $m_e = 0,092m_0$ und für teilweise geordnetes GaInP mit einer Bandlückenreduktion von 50 meV, das in etwa dem von uns bei MBE beobachteten Wert entspricht, eine effektive Elektronenmasse von $m_e = 0,088m_0$ [Ema94].⁴

Die Apparatur zur Messung der PL ist in Abbildung 3.3 gezeigt. Der Laserstrahl eines Ar⁺-Lasers (SPECTRA PHYSICS SERIES 2000) der Wellenlänge $\lambda = 488$ nm wird mit einer sphärischen Linse auf die Probenoberfläche fokussiert, so dass der angeregte Probenbereich einen Durchmesser von ca. 100 µm hat. Das Lumineszenzlicht wird mittels zweier Linsen auf den Eingangsspalt eines Monochromators (optische Länge 1 m, JOBIN YVON THR 1000) fokussiert, spektral zerlegt und mit einem Photonendetektor (engl.: photomultiplier) detektiert. Die Proben befinden sich während der Messung in einem He-Durchflußkryostaten, dessen Temperatur zwischen 8 K und Raumtemperatur mit einem Temperaturregler (CONDUCTS LTC-10) einstellbar ist.



Abbildung 3.2 Beispiel einer III-V-Bandstruktur im parabolischen Modell mit PL-Prozessen im k-Raum a) und im Realraum b): 1) Photon-Anregung, 2) Nichtstrahlende Rekombination, 3) Elektron-Loch Rekombintaion unter Aussendung eines Photons.

Die Photolumineszenzspektren von InP-QP besitzen aufgrund ihres selbstorganisierten Herstellungsprozesses eine endliche Linienbreite, denn die Spektroskopie solcher QP-Ensembles mit Strukturen unterschiedlicher Größe und Komposition ist eine Superposition der Lumineszenz aller einzelnen Quantenpunkte. Das haben ortsaufgelöste-PL-Messungen an z.B. InAs- und InP-QP gezeigt [Mar94], [Kur96]. Nehmen wir an, dass die Form der verschiedenen InP-QP dieselbe bleibt und nur die Höhe h gemittelt wird, dann kann das Spektrum mit einer einfachen Gauss-Verteilung P(h) beschrieben werden [Wu87]:

$$P(h) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_h}} \exp\left[\frac{-(h-h_0)^2}{2\sigma_h^2}\right]$$
 Gleichung 3.2.

mit der Standardabweichung $\sigma_h = \langle (h-h_0^2) \rangle^{-1/2}$. Die Halbwertsbreite HWB ergibt sich durch Multiplikation von 1,177× σ_h und wird auch als "inhomogene" Halbwertsbreite bezeichnet. Die Lumineszenz der QP ist ebenfalls gauss-verteilt, weil sich die PL-Übergangsenergien durch die verschiedenen Einschlusspotentiale der QP-Höhen im Ensemble ergeben [Leo95b].

⁴ Die effektive Elektronenmasse von GaAs ist $m_e = 0,0667m_0$.



Abbildung 3.3 Aufbau zur Photolumineszenz-Messung bei Temperaturen von 5 K bis 300 K.

3.3 Elektrolumineszenz

Bei der Elektrolumineszenz (EL) erzeugt man Elektronen-Loch-Paare in einem *pn*-Übergang einer Halbleiterstuktur durch das Anlegen eines elektrischen Feldes. Genau wie bei der PL wird die optische Emission spektral aufgelöst detektiert.

Die Apparatur zur Messung der Elektrolumineszenzspektren ist in Abbildung 3.4 gezeigt: Der QP-Laser befindet sich wieder in dem He-Durchfluss Kryostaten wie oben und wird mit einem Pulsgenerator mit einer typischen Pulslänge von 500 ns und einer Wiederholfrequenz von 20 kHz angeregt. Der Spannungspuls wird am Pulsgenerator (BERKLEY NUKLEONICS 6040 mit PULSE SOURCE 202H) selbst gemessen und der Strom durch die Laserdiode durch den Spannungsabfall in einem in Serie geschalteten 1 Ω Widerstand bestimmt und ebenfalls auf einem Oszillographen dargestellt. Die Ausgangsleistung im Laserbetrieb wurde mit einem Leistungsmeßgerät (geeichte Si-Diode, COHERENT FIELD MASTER GS, VISIBLE-RANGE-Messkopf) ermittelt.

Zur Bestimmung der Strom-Spannungs- (I-U) Kennlinien unter konstanter Anregung im DC- (engl.: <u>direct current</u>, Gleichstrom) Modus dient ein Halbleiter-Parameter-Analysator (HEWLETT PACKARD 4145B) als Strom/Spannungsquelle und zur elektrischen Charakterisierung der Dioden.



Abbildung 3.4 Versuchsaufbau zur Vermessung von EL-Spektren und zur Bestimmung der Laserkennlinien.

3.4 Röntgendiffraktometrie

Zur Bestimmung der Gitterfehlanpassung der ternären Phosphormaterialien $Ga_xIn_{1-x}P$ und $Al_yIn_{1-y}P$ wurden Rockingkurven mit einem Röntgendiffraktometer (D8 DISCOVER von BRUKER AXS) verwendet. Dabei wird die Winkellage des (001)-Reflexes festgehalten und die Winkelposition Θ der Probe durch Drehen des Probenaufnehmers variiert, siehe Abbildung 3.5. Man misst dadurch die Orientierungen der Epischicht um den (001)-Reflex des GaAs-Substrates aus. Der Abstand der Rockingkurve vom GaAs-Reflex liefert die Gitterfehlanpassung der Epischicht, die HWB ist ein Qualitätsmerkmal der Epischicht, auf die in dieser Arbeit nicht eingegangen werden soll.

Die Röntgendiffraktometrie-Messungen sind unerlässlich zur Bestimmung der Komposition im Phosphor-System, weil die Wachstumsrate von InP nicht direkt in situ auf GaAs erfolgen kann. Darum bestimmt man sie über die Schichtdicke, die man durch Querschnittsmessungen im REM (<u>Rasterelektronenmikroskop</u>) erhält, und der Gitterfehlanpassung aus Röntgendiffraktometriemessungen, siehe Abschnitt 4.1.



Abbildung 3.5 Θ -2 Θ -Messaufbau zur Bestimmung der Gitterfehlanpassung einer ternären Epischicht auf GaAs-Substrat. Während die 2 Θ -Winkellage des GaAs-(001)-Reflexes festgehalten wird, wird die Θ -Winkellage der Probe variiert.

3.5 Rasterkraftmikroskopie

Beim Vermessen der Oberfläche mit einem Rasterkraftmikroskop (engl.: atomic force microscope, AFM), erfolgt die Abtastung der Probe mit einer feinen Spitze über die Verbiegung eines Federarms (engl.: cantilever), an dem sie befestigt ist. Im sogenannten Kontaktmodus hat die Spitze nur einen Abstand von wenigen Nanometern von der Oberlfäche, so dass abstoßende und anziehende Kräfte wie die Van-der-Waals-Wechselwirkung sowie elektro- und magnetische Kräfte als Kopplung zwischen Spitze und Probenoberfläche wirken können. Dabei ist die Probe auf einem Aufnehmer befestigt, der durch ein Piezokristall in alle drei Raumrichtungen beweglich ist. Die Verbiegung des Federarmes durch die Auslenkung der Spitze wird durch die Ablenkung eines Laserstrahls, der auf einen segmentierten Photodetektor gerichtet ist, gemessen. Die gemessene Spannung des Photodetektors wird durch eine Rückkopplungsschaltung über einen Piezokristall an den Positionierungstisch der Probe weitergeleitet, deren Höhenposition daraufhin korrigiert wird. Diese Höheninformation der Probenoberfläche wird über die Ortskoordinaten aufgetragen. Im dynamischen Modus (engl.: tapping-mode) rastert die Spitze mehrere hundert Angström über der Oberfläche und erfährt dadurch eine viel schwächere Kraft als im Kontakmodus. Daher misst man nicht die statische Verbiegung des Federarmes, sondern regt ihn mechanisch zu Schwingungen nahe seiner Resonanzfrequenz ω_r an und wertet dabei die Verschiebungen der Resonanzkurve mit Änderung der Position der Spitze aus.

Um die Auflösung des Mikroskopes abschätzen zu können, muss man sich dessen bewusst sein, dass sich Oberfläche und Spitze gegenseitig abtasten [Kel91]. Daher muss der Durchmesser der Spitze deutlich kleiner sein als die Korrugation der Oberfläche. Das hier verwendete Mikroskop (NANOSCOPE 3A von DIGITAL INSTRUMENTS) verwendet geätzte Siliziumspitzen mit Durchmessern < 15 nm und sollte damit in der Lage sein, die in dieser Arbeit zu untersuchenden Oberflächen reproduzierbar wiederzugeben.

Kapitel 4 Strukturelle und optische Eigenschaften

Auf den folgenden Seiten wird das MBE-Wachstum von InP-Quantenpunkten auf GaAs-gitterangepaßtem GaInP bei verschiedenen Wachstumsbedingungen und unterschiedlichen Stapel-Konfigurationen vorgestellt und charakterisiert.

Die Abschnitte 4.1 und 4.2 beschäftigen sich mit dem Wachstum dieser Strukturen bei verschiedenen Wachstumsbedingungen im Phosphorsystem. Danach folgt eine Abhandlung über gestapelte InP-QP in Abschnitt 4.3. Mittels Photo- und Magnetolumineszenz werden Aussagen über die lokalen Eigenschaften der Bandstruktur gekoppelter InP-QP-Systeme getroffen.

In Abschnitt 4.4 beschäftigen wir uns mit den Ordnungsphänomenen von GaInP und den sich unmittelbar daraus ergebenden Konsequenzen für die darin eingebetteten InP-QP und kompressiv verspannten GaInP-QF. Wir lernen, dass InP-QP eine stark anisotrope Form besitzen und dass das von ihnen emittierte Licht in eine bestimmte Kristallrichtung polarisiert ist. Die mikroskopischen und optischen Eigenschaften der Quantenstrukturen in diesem geordneten System werden in einen Zusammenhang mit den für MOVPE schon bekannten Eigenschaften gestellt und verglichen.

Zum Abschluss werden die Lasereigenschaften des QP- und QF-Systems hinsichtlich der Polarisationseffekte untersucht und interpretiert.

4.1 Wachstumsbedingungen und Probenstruktur

Zur Epitaxie der Phosphorverbindungen wurde eine GaP-Sublimationszelle mit einem Fassungsvermögen von 1 kg verwendet⁵. In Abbildung 4.1 ist sie schematisch dargestellt. Sie besteht im Wesentlichen aus einem Bornitridtiegel als Reservoir mit Bornidtridrohr, das in die Wachstumskammer hineinragt und einem Graphitventil, mit dem man von aussen manuell den Phosphorfluss regeln kann.

Die kreisrunde PBN- (pyrolythisches Bornidtrid) Kappe des Reservoirs, zu sehen als schematische Zeichnung auf der rechten Seite der Abbildung, ist mit Löchern versehen, damit die aus dem aufgeschmolzenen GaP-Material freiwerdenden P₂-Dimere heraustreten können. Das Gallium kondensiert bei diesen Temperaturen vorzugsweise an der Innenseite der Kappe, was dazu führt, dass dieser ca. nach 6 bis 9 Monaten (bei intensiver Nutzung) gereinigt⁶ oder ersetzt werden muss. Jede Komponente wird gekühlt (Ventil und Rohr werden gemeinsam mit Kühlwasser versorgt, das Reservoir ist separat an einen Kühlwasserkreislauf angeschlossen.) Dabei schützt die Wasserkühlung im Wesentlichen den Edelstahl der Vakuumkammer vor zu großen mechanischen Beanspruchungen durch thermisch induzierte Ausdehnungen.

⁵ Karl Eberl MBE Komponenten, Weil der Stadt.

⁶ Die Reinigung der Tiegel geschieht mit einer Ätzlösung aus H₂SO₄:H₂O₂ im Verhältnis 4:1.



Abbildung 4.1 Schematische Darstellung der GaP-Zelle wie sie an der MBE Anlage verwendet wird. Rechts: Querschnittsansicht des mit einkristallinen GaP-Würfeln gefüllten Bornitridtiegels (PBN) und Kappe¹.

Das Reservoir – im Bereitschaftsmodus auf 320 °C – wird für den Wachstumsprozess auf ca. (950 + x) °C, mit $x \approx 1$ °C für jede neue phosphorhaltige Epischicht geheizt; bei $x_{max} \approx 100$ °C muss das GaP-Material gewechselt werden. Das Rohr wird ständig auf 400 °C und das Ventil auf 300 °C geheizt, was bewirkt, dass zusätzlich unerwünschte Ga-Moleküle an der PBN-Kappe kondensieren. Die Sublimationszelle bietet eine sehr elegante und einfache Methode zur Herstellung phosphorhaltiger Verbindungen und bietet einige Vorteile:

Im Vergleich zu den in der MOVPE verwendeten Gasquellen (PH₃) bedarf sie kaum Sicherheitsvorkehrungen, da keine giftigen Gase entstehen. Lediglich beim Öffnen der Zelle muss auf den "Streichholzeffekt" geachtet werden, denn P_2 ist roter Phosphor und somit leicht entzündlich.

Es gibt für die Feststoffquellen-MBE auch Phosphorzellen mit elementarem (rotem) Phosphor, welcher als P₄-Moleküle sublimiert und anschliessend aufgebrochen (engl.: to crack) werden muss. Das Verhältnis $P_2/P_4 = 3-6$ ist nicht sehr günstig: Die Phosphordimere sind aufgrund ihres höheren Haftkoeffizienten (engl.: sticking-coefficient) effizienter als die P₄-Moleküle [Mon85]. Hinzu kommt, dass P₄ als weißer Phosphor kondensiert leicht entflammbar und sehr giftig ist.

Bei der hier vorgestellten Zellenart beträgt das Verhältnis P₂/P₄ = 170 [Shi94]. Für den Wachstumsprozess von InP-QP auf Ga_{0,52}In_{0,48}P, wird zunächst eine ca. 200 nm dicke GaAs-Pufferschicht bei einer Substrattemperatur von $T_{ox} \approx 580$ °C⁷ auf den Wafer abgeschieden. Danach wird der Wafer mit einem konstanten Abkühlgradienten von

⁷ Die exakte Deoxidationstemperatur T_{ox} und die Übergangstemperatur T_{ii} ist von Waferhalter zu Waferhalter und je nach Größe des Wafers unterschiedlich und muss unbedingt vor jedem Wachstumsprozess möglichst genau bestimmt werden.

10 °C/min um etwa 100 °C abgekühlt und das RHEED-Bild genau beobachtet. Der Phasenübergang mit der Oberflächenrekonstruktion (2 × 4), die abrupt bei der Substrattemperatur T_{ii} in eine c(4 × 4) (engl.: "centered four by four") übergeht, dient als Temperatureichung [Daw90]. Die As-stabilisierte GaAs-Oberfläche wird anschliessend auf ca. 350 °C gesetzt, der As-Fluss abgestellt und die Phosphorzelle auf Wachstumstemperatur eingeregelt. Der Wechsel in das Phosphorsystem geschieht durch das gleichzeitige Öffnen der P-Zelle und der Hauptblende, siehe Abschnitt 3.1. Nach wenigen Sekunden beträgt der Phosphordruck ca. 8 × 10⁻⁶ Torr. Dann wird für ca. 5 s die Ga- und In- oder Alund In-Blende gleichzeitig geöffnet. Bei einer Wachstumsrate von 1,0 ML/s entspricht das einer Schichtdicke von ca. 15 nm. Durch diese Prozedur wird eine Vermischung der As- und P-Moleküle in der Grenzschicht minimiert. Danach wird das Substrat auf Wachstumstemperatur (in den meisten Fällen beträgt die Substrattemperatur $T_{sub} = 470$ °C) gebracht und das III-V- (BEP, engl.: <u>b</u>eam <u>e</u>quivalent <u>p</u>ressure) Verhältnis 12 eingestellt.

Die Zellenratenbestimmung für den Ga-Fluss erfolgt einfach durch RHEED-Oszillationen im As-System. Die Bestimmung des In-Flusses für Raten von ca. 0,5 ML/s kann so nicht direkt erfolgen, weil weder InAs noch InP an das GaAs-Gitter angepasst ist. Die Bestimmung über In_xGa_{1-x}As-QF ist ebenfalls schwierig, da die kritische Schichtdicke für x > 30 % nur wenige ML beträgt. Darum bestimmt man die In-Rate über die Schichtdicke, die man durch Querschnittsmessungen im REM (<u>Rastere</u>lektronen<u>m</u>ikroskop) erhält, und der Gitterfehlanpassung aus Röntgendiffraktometriemessungen.

Für die Bestimmung der Wachstumsrate von 0,01 ML/s wird auf die Kalibration durch Wachstum (und anschliessender Desorption) von InAs-Inseln zurückgegriffen. Bei T = 470 °C benötigt man ca. 100 s bis zur Ausbildung einer für 3-D-Wachstum charakteristischen RHEED-Rekonstruktion. Das entspricht der kritischen Schichtdicke von ca. 1,5 ML InAs [Kur96].

4.2 Einfluss der Wachstumsparameter

Das "Wachstumsfenster" für InP-QP, die für rotemittierende Laser verwendet werden können, ist relativ klein. Optimierungsversuche durch Variation der Wachstumsparameter wie Drücken von (4-9) × 10⁻⁶ Torr BEP, Wachstumstemperaturen von 440-500 °C und Wachstumspausen von 0,1-1000 s wurden von Kurtenbach [Kur96] und Zundel unternommen [Zun99a]. Hält man sich an die Wachstumsvorschrift Wachstumstemperatur (470 ± 10) °C, Wachstumspause von 1 s nach Abscheidung der QP und Phosphorfluss *BEP* = 8×10⁻⁶-1×10⁻⁵ Torr, dann erhält man InP-QP, wie sie in der Abbildung 4.3 (a) zu sehen sind. Bezüglich Intensität und HWB der Lumineszenz wurden unter diesen Bedingungen die bzgl. PL-Eigenschaften besten InP-QP hergestellt.

Für eine Wachstumsrate von 0,5 ML/s erhält man, wie man der Tabelle 4.1 entnimmt, mittlere Insellängen von (50 ± 10) nm, -breiten von (24 ± 6) nm und -höhen von (6 ± 1) nm. Man kann nicht von Inseldurchmessern sprechen, weil die InP-QP keineswegs kreisrund, sondern in [1-10]-Kristallrichtung elongiert sind. Bei genauem Hinschauen erkennt man in AFM-Aufnahmen auch die mögliche Ursache für diese Erscheinung: die Inseln wachsen bevorzugt in diese Richtung zusammen (Koaleszenz). Je größer die InP-Abscheidung, desto ausgeprägter ist der Effekt, welcher im Abschnitt 4.4.1 genauer untersucht werden soll. Für InP/GaInP gilt das Prinzip des Stranski-Kastranow-Wachstums, d.h. nach etwa einer Schichtdicke von 1,5 ML Benetzungsschicht (engl. "wetting-layer", im Folgenden daher mit WL abgekürzt) wachsen aufgrund der Gitterfehlanpassung von 3,7 % dreidimensionale Inseln auf. Die Größe der QP läßt sich über die Menge des abgeschiedenen InP beeinflussen, was zu einer Durchstimmbarkeit der Emissionsenergien von 1,83-1,53 eV führt [Kur96]. PL-und AFM-Studien haben allerdings gezeigt, dass die so hergestellten Inseln ab einer nominellen InP-Abscheidung von ca. 4 ML Versetzungen beinhalten. Das verringert die Intensität und erhöht die Halbwertsbreite (HWB) der Lumineszenz.

Der Zusammenhang zwischen der Energielage des spektralen PL-Maximums und der abgeschiedenen InP-Materialmenge ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Die nominelle InP-Schichtdicke ist in ML angegeben. Der Übergang 2D-3D ist nicht so abrupt wie man es beispielsweise bei InAs-QP beobachtet [Sei96]. Jedoch kann man deutlich eine Abnahme der Energie mit Zunahme der Depositionsmenge beobachten. Im Vergleich zur PL-Energie des InP-Volumenkristalls ist die eines 2 ML dicken InP-Quantenpunkt-Ensembles um 450 meV blauverschoben. Man erklärt sich diesen Effekt durch den Ladungsträgereinschluss innerhalb der Nanostrukturen und durch Bandverbiegung durch kompressive Verspannung. Mit Zunahme der InP-Depositionsmenge verschiebt die PL-Energie zunehmend in den roten Spektralbereich, weil die Verspannung in den größeren Inseln relaxiert und die Ladungsträger-Einschluss-Energie (engl.: confinement energy) mit wachsender Inselgröße abnimmt. Die genaue Bandstruktur in dem Materialsystem InP/GaInP ist recht kompliziert und wird in Kapitel 4.3.2.2 kurz angesprochen.



Abbildung 4.2 Energielage der InP-QP-Lumineszenz bei 8 K einer Einzel-QP-Schicht [Kur96] und einer Dreifach-QP-Schicht als Funktion der nominellen InP-Schichtdicke.

Reduziert man die Wachstumsrate von 0,5 ML auf 0,01 ML/s (bei gleichzeitiger Reduktion der Substrattemperatur auf $T_{sub} = 410$ °C), so entstehen sehr viel größere InP-QP als die herkömmlichen, wie man in Abbildung 4.3 (b) sehen kann. Ihre geometrischen Maße sind vergleichend neben den Inseln mit 0,5 ML/s Wachstumsrate in der Tabelle 4.2 wiedergegeben.



Abbildung 4.3 Rasterkraftmikroskopische Aufnahmen (0,5 μm^2) zweier Einzelschichten mit 3,0 ML InP QP. Wachstumsrate bei (a) 0,5 ML/s ($T_{sub} = 450^{\circ}$ C) und bei (b) 0,01 ML/s ($T_{sub} = 410^{\circ}$ C).

	l (nm)	<i>b</i> (nm)	ε	h (nm)	rms (nm)	$\rho (10^{-10} \text{cm}^{-2})$
0,5 ML/s	51±10	24±6	2±1	6±1	1,03	6-7
0,01 ML/s	75±15	50±5	1,5±0,5	8±1	1,26	2

Tabelle 4.1 Strukturdaten zweier Einzel-QP-Schichten mit 3,0 ML nomineller Schichtdicke, hergestellt mit einer Wachstumsrate von 0,5 ML/s und 0,01 Ml/s. Statistische Angaben über die mittlere Länge l, Breite b, Elongation ε , Höhe h, rms-Rauhigkeit und Flächendichte ρ .

Während die InP-QP mit 0,5 ML/s Wachstumsrate mittlere Längen von ca. $l = 51\pm10$ nm und Breiten von $b = 24\pm6$ nm besitzen, weisen die sehr langsam aufgewachsenen Inseln eine ca. dreifache Fläche auf, wie man anhand der AFM-Abbildungen sehen kann. Die mittlere Inselhöhe beträgt für die ersteren QP $h = 6\pm1$ nm, für die langsam aufgewachsenen Inseln $h = 8\pm1$ nm.

Die lateralen Dimensionen scheinen im Fall der QP mit Wachstumsrate 0,5 ML/s sehr diversifiziert: Man beobachtet bei genauer Betrachtung des Rasterkraft-Mikroskop-(AFM) Bildes der Abbildung 4.3 (a) drei unterschiedliche Inseltypen: 1. die höheren Inseln bis ca. 8 nm, welche relativ rund sind und typische Durchmesser von 45-65 nm besitzen, 2. die einzelnen niedrigeren QP mit mittleren Höhen von 3-4 nm, welche sehr unterschiedliche Längen von ca. 15-40 nm haben und 3. die koaleszierten, die bis zu etwa 80-110 nm lang werden können. Die Breite ist für alle QP relativ konstant 25 nm.

Die Inseln in Abbildung 4.3 (a) und (b) sind also nicht geometrisch isotrop⁸ wie z.B. InAs-QP/GaAs [Lip01], sondern unterschiedlich stark in [1-10]-Richtung elongiert. Das Verhältnis von Länge *l* des QP zu Breite *b*, Elongation ε genannt, beträgt bei den langsam aufgewachsenen QP mit ca. 3,0 ML im Mittel $\varepsilon = 1,5 \pm 0,5$. Bei den QP mit 0,5 ML/s Wachstumsrate dagegen eher > 2. Die sich daraus ergebene Konsequenzen für die Polarisationseigenschaften werden in Kapitel 4.4.4 besprochen.

Während die Flächendichte für 3,0 ML InP-QP mit 0,5 ML/s 7×10^{10} cm⁻² beträgt, ist sie für die "großen QP" nur noch 2×10^{10} cm⁻². Diese Tendenz steht im Einklang mit

⁸ abgesehen von den Facetten.

den Voraussagen des Abschnitts 2.2. Für beide QP-Systeme beobachtet man für diese nominelle Schichtdicke die jeweils maximale Flächendichte.

In Abbildung 4.4 ist das PL-Spektrum einer $(3,0 \pm 0,2)$ ML InP-QP-Probe für die Wachstumsraten 0,5 ML/s und 0,01 ML/s beispielhaft dargestellt. Obgleich nominell die gleiche Materialmenge InP abgeschieden worden ist, emittiert die langsam aufgewachsene Probe bei E = 1,70 eV und die schnelle bei 1,82 eV. Zudem ist die HWB stark verbreitert: 67 meV im Vergleich zu 29 meV deuten auf eine schlechtere Inselgrößenhomogenität bei den QP mit langsamerer Wachstumsrate hin. Das manifestiert sich in der erhöhten rms-Rauhigkeit, wie man Tabelle 4.1 entnehmen kann. Dabei ist die HWB ein Maß für die Höhenfluktuation, da die Höhe die kleinere, also die quantenmechanisch interessantere Größe ist.

Die nach Gauss-Anpassung bestimmten HWB für die beiden Inseltypen geben Aufschluss über die Inselgrößenfluktuationen (siehe Abschnitt 3.2, Gleichung 3.2), welche 16 % für die QP mit 0,5 Ml/s Wachstumsrate und 39 % für die QP mit 0,01 Ml/s beträgt. Nach den Berechnungen von Pryor *et al.* [Pry97] und den Extrapolationswerten von T. Riedl [Rie02] entspricht das für die QP mit 0,5 ML/s Inselhöhen von $h = (5 \pm 0,8)$ nm und für die Inseln mit 0,01 ML/s $h = (10 \pm 3,9)$ nm. Diese Werte stimmen ungefähr mit den Messungen mittels Rasterkraftmikroskop überein.

Im Einschub der Abbildung sind die Emissionsenergien der QP mit verschiedener Wachstumsrate in Abhängigkeit von der Schichtdicke aufgetragen. Für jede Schichtdikke, mit leicht abnehmender Tendenz für Schichtdicken < 2 ML, ist die Differenz der Emissionsenergien konstant ca. 100 meV.



Abbildung 4.4 Vergleich der PL-Spektren von nominal 3,0 ML InP-QP mit einer Wachstumsrate von 0,5 ML/s und 0,01 ML/s. Der Einschub zeigt die PL-Energielage der beiden QP-Typen in Abhängigkeit von der abgeschiedenen InP-Schichtdicke.

Die Tabelle 4.1 gibt noch Aufschluss über die Flächendichte ρ der beiden Inseltypen. Sie ist bei den mit 0,5 ML/s gewachsenen QP um einen Faktor 3 - 4 größer. Das ist auch der Grund, warum sich die QP mit der Rate 0,5 ML/s besser für Laserdioden eignen.

Hinzu kommt eine vergrößerte HWB des Emissionsspektrums der QP mit Wachstumsrate 0,01 ML/s, wenngleich der Ladungsträgereinschluss wegen der rotverschobenen Emissionsenergie stärker ist als für die QP mit 0,5 ML/s. Schliesslich hängt die optische Verstärkung stark von der Menge des aktiven Materials ab und nicht zuletzt gibt die HWB einen Hinweis auf die maximale optische Verstärkung [Mor97].

Die bisher gezeigten PL-Messungen entstammen von eingebetteten QP. In Abbildung 4.5 sind die PL-Spektren von Oberflächen- (OF) QP gezeigt, d.h. von freistehenden QP.



Abbildung 4.5 PL-Spektren von InP-Einzelschichten. Durchgezogene Linien: (Wachstumsrate 0,01 ML/s) Spektren von Proben mit 3,6 ML eingebetteten InP-QP und Oberflächen-QP sowie von 3,0 ML reinen Oberflächen-QP; gestrichelte Linien: (Wachstumsrate 0,5 ML/s) Spektren von Proben mit 3,2 ML eingebetteten InP-QP und Oberflächen-QP sowie von einer Probe mit nur freistehenden QP. Die Wachstumstemperatur betrug für alle QP T_{sub} = 410 °C.

Vergleicht man die Energielage der PL-Spektren der eingebetteten InP-QP mit Wachstumsrate 0,5 ML/s und 0,01 ML/s, dann beobachtet man eine Rotverschiebung der langsamer aufgewachsenen QP um ca. 120 meV, die Signale der freistehenden Inseln sind für beide Inseltypen bzgl. des Signals der eingebetteten Inseln um ca. denselben Energiebetrag rotverschoben und zusätzlich verbreitert. Um sicherzustellen, dass es sich bei den Signalen tatsächlich um die OF-QP (d.h. freistendenden QP) handelt, sind Schichtstrukturen mit nur OF-QP und solche mit eingebetteten QP und nach Aufwachsen einer 120 nm dicken Separationsschicht aus GaInP OF-QP hergestellt und vermessen worden. Die Schichtstrukturen sind schematisch in der Abbildung 4.5 eingezeichnet. Die Spektren verdeutlichen, dass die Interpretation der wahren Inselform der freistehenden QP auf AFM-Aufnahmen also nicht trivial ist, da die Verspannungssituation für freistehende Inseln anders ist als für eingebettete Inseln. Beim Aufwachsen der freistehenden Inseln wird die kompressive Verspannung, die durch die Gitterfehlanpassung des Inselmaterials bezüglich der Matrix entsteht, abgebaut, d.h. die Inseln relaxieren, weil das die elastische Energie der Inseln senkt. Da die Energielücke für reines InP 1,42 eV (4 K) beträgt [Lan82], ist eine Rotverschiebung der relaxierten OF-QP zu erwarten. Bei eingebetteten Inseln jedoch werden diese durch die umgebende Matrix komprimiert, so dass in der Umgebung direkt oberhalb der QP lateral ausgedehnte (und vertikal komprimierte) Bereiche und zwischen den Inseln lateral komprimierte (und vertikal ausgedehnte) Bereiche entstehen (siehe Abschnitt 2.2).



Abbildung 4.6 PL-Energielage für 3,0 ML InP-QP-Einzelschichten in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur T_{sub} für Wachstumsraten von 0,5 ML/s und 0,01 ML/s.

Die Abbildung 4.6 zeigt die Abhängigkeit der PL-Energie von der Substrattemperatur T_{sub} für die beiden Inseltypen mit Wachstumsrate 0,5 und 0,01 ML/s.

Während die QP mit der Wachstumsrate 0,5 ML/s eine ganz schwache Rotverschiebung mit zunehmender Substrattemperatur zeigen, ist die Tendenz bei den QP mit 0,01 ML/s Wachstumsrate sehr viel ausgeprägter und genau in die andere Richtung: Man beobachtet eine Blauverschiebung. Bei tiefen Wachstumstemperaturen ist die Emission der "langsamen" QP um 100 meV rotverschoben, bei hohen Wachstumstemperaturen 470 °C dagegen um 40 meV blauverschoben. Wie kann man sich das erklären?

Die Rotverschiebung der QP (0,5 ML/s) mit zunehmender Wachstumstemperatur ist plausibel, denn das Inselwachstum im kinetisch kontrolliertem Regime und der diffusions-getriebene Transport ist größer bei höherer Temperatur, während die Wahrscheinlichkeit der Keimbildung kleiner wird. Daher erwartet man größere Inseln bei höherer Temperatur und eine geringere Flächendichte und somit eine Rotverschiebung. Der Effekt ist bei unseren InP-QP sehr klein und kann experimentell nicht klar nachgewiesen werden, so dass die Interpretation der Daten schwierig ist.

Die abgesenkte Emissionsenergie der langsam aufgewachsenen QP gegenüber der QP mit größerer Rate ist ebenfalls sofort einleuchtend (Ostwaldreifung), denn der offensichtliche Größenunterschied führt wegen des "quantum size effects" bei den größeren QP zu einer kleineren Einschlussenergie. Die Absenkung der Inselflächendichte mit kleinerer Rate hat sich ebenfalls bestätigt. Bleibt der Effekt zu erklären, warum sich die Energie der langsam aufgewachsenen QP mit zunehmender Substrattemperatur blauverschiebt und bei 470 °C sogar höher ist als bei den QP mit höherer Wachstums-rate. Man kann leider anhand der AFM-Daten keinerlei Aussagen über einen Größeneffekt machen, außer, dass die OF ab Temperaturen > 460 °C in den allermeisten Fällen sehr rauh ist und "schlangenförmige" Inseln, die in Richtung [1-10] sehr stark elongiert sind, aufweist. Sie sind bis zu 15 nm hoch und im Mittel 150 - 200 nm lang und ca. 20 nm breit. Diese QP-Formation ist bis heute noch unerklärt⁹. Daher kann man nur vermuten, dass bei der Zunahme der Temperatur ein ganz ähnlicher Effekt wie bei dem langsamen Wachstum der InAs-QP auftritt [Lip01]. Je langsamer die Rate, desto mehr Zeit hat das System sich zu "reorganisieren." Ab einer bestimmten Temperatur wird der Reifungsprozess der Inseln von der Indium-Desorption dominiert. Im P-System scheint die Desorption eine rauhe OF hervorzurufen und für eingebettete QP bedeutet das eine Vermischung der Insel-Indium-Atome mit der umgebenen GaInP-Matrix. Dieser Effekt ist bekannt für seine Blauverschiebung, siehe Abschnitt 2.2.

4.3 Gestapelte Quantenpunkte

Im folgenden Abschnitt wollen wir elektronisch gekoppelte Stapel der langsam aufgewachsenen QP (Wachstumsrate 0,01 ML/s) untersuchen, um ihr Verhalten mit den QP mit Wachstumsrate 0,5 ML/s zu vergleichen. Danach werden verschieden dicht gestapelte QP-Systeme vorgestellt und mit PL- und Magneto-PL vermessen. Dabei soll das Kopplungsverhalten der Ladungsträger untersucht werden, woraus sich dann Schlüsse über die Bandstruktur des Systems InP-QP/GaInP im Ortsraum ziehen lassen.

4.3.1 Gekoppelte InP Quantenpunkte verschiedener Wachstumsraten

Abbildung 4.7 zeigt die PL-Spektren einer Einzel-QP-Schicht mit 3,7 ML nomineller InP-Schichtdicke, eines Zweifachstapels mit 3,9 ML/3,9 ML InP-QP mit einer Zwischenschicht aus $Ga_{0,52}In_{0,48}P$ der Dicke d = 4 nm und einem Dreifachstapel mit $3 \times 3,7$ ML InP-QP. Mit zunehmender Stapelzahl verschiebt sich das Spektrum um insgesamt 21 meV rot und die Halbwertsbreite nimmt ab. Dass die HWB des Dreifachstapels mit $3 \times 3,7$ ML InP-QP etwas größer ist als die des Zweifachstapels, kann mit dem ab dieser Schichtdicke einsetzenden Einbau von Versetzungen in den Inseln im Stapel zusammenhängen, siehe Tabelle 4.2. Die schmalste HWB im InP/GaInP QP-System beträgt 21 meV (8 K) für einen Dreifachstapel mit $3 \times 3,0$ ML InP-QP [Zun97]

⁹ kann aber in unmittelbarem Zusammenhang mit der CM-Ordnung des GaInP gesehen werden, siehe Abschnitt 4.4.1.

Bei den QP mit langsamer Rate (0,01 ML/s) erhält man die maximale Rotverschiebung von 50 meV beim Zweifachstapeln, siehe Abbildung 4.8. Beim dreifachen Stapeln erhält man dagegen nur eine Rotverschiebung von 15 meV. Das könnte auf Durchmischungseffekte aufgrund eines im Dreifachstapel aufgebauten großen kompressiven Verspannungsfeldes deuten. Für einen Dreifachstapel mit 3,0 ML nomineller InP-Schichtdicke erhält man eine Emissionsenergie von 1,69 eV mit HWB = 61 meV. Aus diesem Grund wollen wir uns bei den langsam gewachsenen QP auf die Zweifachstapel konzentrieren.



Abbildung 4.7 Einfach-, Zweifach- und Dreifachstapel von 3,7 \pm 0,2 ML InP-QP mit 0,5 ML/s Wachstumsrate. Zwischenschichtsdicke jeweils d = 4 nm.

	Einfach 3,7 ML	Doppel 3,9ML/3,9 ML	Dreifach 3 × 3,7 ML
PL-Energie (eV)	1,755	1,742	1,734
HWB (meV)	29	24	26

Tabelle 4.2 Emissionsenergie und Halbwertsbreite (HWB) eines Einfach-, Zweifach- und Dreifachstapels mit $3,7 \pm 0,2$ ML InP-QP mit 0,5 ML/s Wachstumsrate. Zwischenschichtsdicke jeweils d = 4 nm.

Abbildung 4.8 zeigt die PL-Spektren von zweifach-gestapelten InP-QP mit nomineller Schichtdicke von 3,6 ML, hergestellt mit einer Wachstumsrate 0,01 ML/s. Der Zwischenschichtabstand beträgt d = 4, 8, 12 und 20 nm. Der Pfeil deutet die Energielage einer Einzel-QP-Schicht an. Der Einschub zeigt die PL-Energiemaxima der Doppelschichtspektren mit verschiedener Zwischenschichtdicke.

Man beobachtet eine zunehmende Rotverschiebung mit abnehmendem *d*. Bei d = 20 nm kann das Spektrum durch zwei um ca. 50 meV verschobene Gauss-Funktionen angenähert werden, welche man den Emissionsspektren der unteren (höhernergetisches Signal) und oberen QP-Lage (niederenergetisches Signal) zuordnen kann. Es ist anzu-

nehmen, dass die QP in der oberen Lage aufgrund des Verspannungsfeldes der unteren QP etwas größer sind als die unteren, elektronisch aber nicht koppeln. Bei einer Dicke von d = 12 nm im Vergleich mit d = 20 nm hat die HWB von 77 meV auf 62 meV abgenommen, die QP-Lagen koppeln nun elektronisch miteinander. Warum die HWB für noch kleinere Zwischenschichtdicken wieder ansteigt, ist ohne TEM-Aufnahmen schwierig zu interpretieren.



Abbildung 4.8 PL-Spektren von InP-QP-Zweifachstapeln mit 0,01 ML/s Wachstumsrate. Die Zwischenschichtdicke variiert von d = 20 nm (völlige Entkopplung) bis d = 4 nm (gekoppelt). Der Pfeil über der QP-Lumineszenz zeigt die Energielage einer Einzel-QP-Schicht mit 3,6 ML. Der Einschub rechts oben zeigt den Zusammenhang der Energieverschiebung - ΔE in Abhängigkeit von der Zwischenschichtdicke d.

Insgesamt gesehen erreicht man mit der Stapelung der langsam aufgewachsenen QP zwar eine Rotverschiebung um bis zu $-\Delta E = 50$ meV, das Erreichen einer schmalen HWB erscheint aber wesentlich schwieriger als bei den QP mit 0,5 ML/s. Das grundsätzliche Verhalten bei den Zweifach-QP-Stapeln für QP mit Wachstumsrate 0,01 ML/s ist bis auf die rotverschobene Energielage des PL-Spektrums aufgrund des lokalen Quantisierungseffektes im Vergleich zu den InP-QP mit 0,5 ML/s dasselbe. Es ist bekannt, dass das Stapeln langsamer und damit vergrößerter InAs-QP zu einer Blauerverschiebung führt, die man mit einer verspannungsinduzierten Material-durchmischung der InAs-Inseln mit der umgebenen GaAs-Matrix erklärt [Lip01]. Man kann vermuten, dass die Vermischungstendenz bei dem InAs/GaAs-System zum einen wegen der um fast einen Faktor 2 größeren Gitterfehlanpassung und zum anderen wegen des größeren Indium-Konzentrationsunterschiedes zwischen InAs und GaAs im Vergleich zu InP/GaInP größer ist. Somit wird das unterschiedliche Verhalten in den beiden Material-systemen verständlich.

Im nächsten Abschnitt 4.3.2 wird das Kopplungsverhalten gestapelter InP-QP anhand der Inseln mit 0,5 ML/s noch genauer untersucht werden. Abbildung 4.9 soll beispielhaft das Verhalten der PL-Energielage für einen gekoppelten und einen ungekoppelten QP-Stapel anhand der langsam gewachsenen QP gezeigt werden. Die Energieverschiebung eines Zweifachstapels mit d = 4 nm und 20 nm bei Erhöhung der Anregungsdichte von 4×10^{-3} W/cm² auf 50 W/cm² ist in der Abbildung dargestellt.

Die Auffüllung der QP-Niveaus mit Elektronen im Leitungsband sind vereinfacht schematisch neben der Abbildung gezeigt. Der breite Quantentopf verkörpert einen QP in der oberen Lage, der schmale einen in der unteren. Bei geringen Anregungsdichten (kleine Ladungsträgerdichte) ist die Emissionsenergie des dicht gestapelten QP-Systems gegenüber der Zweifach-QP-Schicht mit d = 20 nm um ca. 50 meV rotverschoben. Das kann man sich anschaulich dadurch erklären, dass beim d = 4 nm QP-System die Ladungsträger sofort in die niedrigeren Energiezustände des größeren Topfes der oberen QP-Lage relaxieren können. Bei dem d = 20 nm System werden beide Lagen unabhängig voneinander aufgefüllt, weil die Töpfe elektronisch entkoppelt sind. Es findet also kein Ladungsträgertransfer zwischen den QP-Schichten statt. Verstärkt man die Anregungsleistung, dann werden höherenergetische Zustände in beiden Lagen aufgefüllt. Zwar tunneln die Ladungsträger anfänglich noch in die obere QP-Lage, ab einer bestimmten Ladungsträgerdichte aber sind alle Niveaus der oberen Lage besetzt und nun werden auch die höheren Energien der kleineren QP aufgefüllt. Die Energieniveaus der besetzten Zustände unterscheiden sich irgendwann nicht mehr. Das ist fast erreicht bei einer Anregungsdichte von 50 W/cm².



Abbildung 4.9 Anregungsleistungsabhängige Messung der PL-Energie von Zweifachstapeln InP-QP mit 0,01 ML/s Wachstumsrate. Zwischenschichtdicke d = 4 nm und 20 nm. Rechts: Schematische Darstellung der Verteilung der Ladungsträger bei geringer und bei hoher Anregungsdichte für das elektronisch gekoppelte und ungekoppelte System.

4.3.2 Elektron- und Locheinschluss in gekoppelten InP Quantenpunktsystemen und Magnetolumineszenz

Im Folgenden werden zunächst die Interpretationen aus den PL-Messungen bekannter InP-QP-Dreifachstapel kurz zusammengefaßt, bevor die an der Universität Leuven¹⁰ durchgeführten Magnetolumineszenzmessungen an einigen von uns hergestellten QP-Stapeln vorgestellt werden. Diese Messungen lassen eine erweiterte Interpretation unserer PL-Messungen zu und ermöglichen eine Vorstellung von der möglichen elektronischen Bandstruktur dieser InP/GaInP-Stapel, welche insbesondere für die Löcher recht komplex ist.

4.3.2.1 Gekoppelte Dreifachstapel



Abbildung 4.10 PL-Spektren einer Einzel-QP-Schicht im Vergleich zu Dreifachstapeln mit unterschiedlicher Zwischenschichtdicke d (aus [Zun97]).

In der Abbildung 4.10 ist die PL bei 8 K für eine Einfach-QP-Schicht und Dreifachstapel mit den Zwischenschichtabständen von d = 16, 8, 4, und 2 nm dargestellt. Wie in [Zun97] beschrieben, nimmt die Rotverschiebung mit Verkleinerung von d zu und die HWB ab. Zunächst läßt sich die Verschmälerung der PL-Spektren durch eine Homoge-

¹⁰ Zusammenarbeit mit Rik Provoost , Jochen Maes und Manus Hayne.

nisierung der QP in den höheren Stapelschichten erklären. Die Verspannungsfelder der QP der jeweils unteren Schicht wirken sich auf die obere QP-Schicht stärker aus und es kommt zu einer "Auslese" von QP-Größen [Ter96]¹¹. Mit zunehmender Stapelzahl und abnehmender Zwischenschichtdicke werden insbesondere große QP, deren Verspannungsfeld einen größeren Wirkungsquerschnitt besitzen als kleine, in den höheren QP-Schichten besser reproduziert. Das reduziert die QP-Größenfluktuation und verringert damit die HWB. Man hat mittels TEM-Querschnittsaufnahmen an gestapelten Ge/Si-Inseln gemessen, dass sich die Benetzungsschichtdicke mit jeder QP-Schicht verringert, weil die QP in den höheren Schichten aufgrund der Verspannungsfelder der darunterliegender QP schon auf verspanntem Substrat aufwachsen, so dass sich die kritische Schichtdicke mit jeder QP-Schicht reduziert [Schm99]. Somit werden die QP im Mittel mit jeder Schicht etwas größer. Durch die dichte Packung von InP auf engem Raum, kann sich die Gesamtverspannung in der mittleren QP-Lage verringern. Das konnte mit Hilfe von FE-Rechnungen gezeigt werden [Hao98]. Dadurch ist eine Rotverschiebung hin zur Bandkantenenergie des InP-Volumenkristalls von 1,42 eV (bei T = 6 K, [Lan82]) denkbar, elektronische Kopplung der Ladungsträger vorausgesetzt.

Ein ganz wichtiger Aspekt zur Deutung der Verschmälerung der PL-Spektren und für die Rotverschiebung mit abnehmender Zwischenschichtdicke ist die elektronische Kopplung zwischen den QP, die mit verkleinertem Abstand zunimmt. Ohne die Kenntnis der Magnetolumineszensmessungen ist es unmöglich, den genauen Kopplungsmechanismus der Löcher und Elektronen, d.h. der Exzitonen vorherzusagen. Anhand der PL-Spektren kann man vermuten, dass bei dichter Stapelung der Inseln die Elektronen in die größten Inseln mit tiefster Energie tunneln, was bei den Proben mit d = 4 nm und 2 nm sicherlich auch geschehen ist. Dabei befinden sich die Elektronen dann im jeweils obersten Stapel. Für die Proben mit $d \ge 8$ nm deutet die Verbreiterung des PL-Spektrums und das Auftreten einer Schulter auf der Hochenergieseite (bei d = 16 nm) auf eine elektronische Entkopplung der QP-Lagen, und das PL-Spektrum setzt sich aus einer Überlagerung von exzitonischen Übergängen der ungekoppelten QP-Systeme zusammen.

In der Abbildung 4.10 ist zu erkennen, dass, während die Übergangsenergie für den Einfachstapel (3,0 ML) 1,8 eV und die HWB 41 meV beträgt, die Werte für den Dreifachstapel mit d = 4 (2) nm 1,742 (1,728) eV und HWB 27 (26) meV annehmen.

In der Literatur wurde versucht diesen Effekt der vertikalen Ordnung durch die bevorzugte Nukleation von QP an den Stellen des Substrates, unterhalb derer sich schon QP in einer darunterliegenden Schicht befinden, zu erklären und experimentell nachzuweisen. Tersoff *et al.* sagten anhand eines einfachen eindimensionalen kontinuumsmechanischen Modells eine Vergrößerung der Inseln mit der Stapelzahl und einen lateralen Ordnungseffekt voraus [Ter96]. Spätere dreidimensionale Rechnungen von Holy *et al.*, welche nun auch die Form der Inseln und die Gittersymmetrie, d.h. ein realistischeres Model der Verspannungsfelder der Inseln berücksichtigt, liefern eine vertikale Stapelung von III-V-Halbleiter- und Ge/Si-Inseln. Es gibt allerdings auch Kristallstrukturen, bei welchen eine trigonale oder eine tetragonale vertikale Stapelfolge der QP entstehen kann [Hol99].

Allerdings werden wir anhand von AFM-Aufnahmen in Abbildung 4.29 im Abschnitt 4.4.3 erkennen, dass sich die InP-Inseln in eine bestimmte Kristallrichtung verlängern, weil benachbarte Inseln vorzugsweise in diese Richtung zusammenwachsen,

¹¹ und von Tersoff et al. "thinning effect" genannt.
d.h. dass sich für die hier betrachteten QP keines der vorgeschlagenen Modelle direkt übertragen läßt.

Die beiden anderen Schichten mit d = 16 nm und 8 nm sind viel breiter, als die dichter gestapelten, weil hier nur schwache bzw. teilweise Kopplung zwischen den QP-Schichten vorhanden ist. Besonders auffällig verhält sich die d = 16 nm Probe, dessen Spektrum aus einem Doppelsignal mit um 30 meV getrennten Maxima besteht. Eine naheliegende Interpretation ist, dass das höherenergetische Signal von den kleineren QP in der ersten Schicht und das niederenergetische von den größeren QP der beiden oberen Schichten herrührt. Ab einer bestimmten Zwischenschichtdicke reicht das Verspannungsfeld der QP der unteren Schicht nicht mehr bis in die QP der darüberliegenden Schicht und das Aufwachsen einer identischen QP-Schicht in der nächsten Lage kann nicht mehr erfolgen. Im Abschnitt 4.3.2.4 soll dieser Fragestellung noch einmal genauer nachgegangen werden, indem Dreifachstapel untersucht werden, bei denen die beiden unteren QP Schichten um d = 4 nm voneinander getrennt sind und die obere Schicht um d = 15 nm und 30 nm von den beiden unteren separiert ist.

Allgemein gilt für gestapelte QP-Schichten im Vergleich zur Einzelschicht, dass schon eine kleine Höhenvariation der Inseln in einer Einzelschicht das PL-Spektrum verbreitert, während dieselbe Höhenvariation in einem Mehrfachstapel gegenüber seiner Gesamthöhe, welche bei elektronischer Kopplung entscheidend ist, eine viel kleinere Rolle spielt, was sich vorteilhaft für die Verwendung von Mehrfachstapeln in optischen Bauelemente auswirkt.

Für InP-QP-Systeme mit nomineller Schichtdicke von 3,0 ML mit mehr als drei elektronisch gekoppelten Stapeln nimmt die PL-Intensität mit der Stapelanzahl ab und die HWB zu, was durch TEM Aufnahmen durch Versetzungsbildung in den höheren QP-Schichten erklärt werden konnte [Zun99a]. Auch Zweifachschichten sind nicht für Laser favorisiert, weil zwei QP-Schichten weniger aktives verstärkendes Material zur Verfügung stellen als Dreifachschichten. Zudem sind die HWB der spontanen Emissionsspektren eher breiter als die der Dreifachschichten und die Rotverschiebung und somit die Potentialbarriere zum Wellenleiter ist kleiner (siehe Abbildung 4.7).

Wie im folgenden Unterkapitel 4.3.2.3 noch zu sehen sein wird, hat ein Zweifach-QP-Stapel aber noch einen anderen Nachteil; er ist elektronisch unter Umständen nicht gekoppelt. Als Kompromiss zwischen kleinster HWB und größter Rotverschiebung (Abstand zur Barriere) wurde das Dreifachstapel InP QP-System mit d = 4 nm GaInP-Zwischenschichten für die Laserstruktur ausgewählt, siehe Kapitel 5.

Verhalten sich Löcher und Elektronen in gekoppelten QP-Systemen immer gleich? Sind beide Ladungsträgertypen gleichermassen lokalisiert oder gibt es einen Ladungsträger-Typ, der "freier" ist als der andere? Sind beide gleichermaßen am Kopplungsmechanismus beteiligt und unter welchen Umständen hat man Kopplung und wann nicht?

Für diese Fragen können Magnetolumineszenzmessungen aufschlussreich sein, wie im folgenden Abschnitt erläutert wird.

4.3.2.2 Vermessung der Dreifach-QP-Stapel mit der Methode der Magnetolumineszenz

Im folgenden Abschnitt soll kurz die Methode der Magnetolumineszenz erläutert werden: Das Anlegen eines Magnetfeldes an einen Halbleiter bewirkt durch die Lorentz-Kraft eine Verformung der Elektronen- und Löcherwellenfunktionen und erzeugt die sog. "Zeeman-Aufspaltung" der Energieniveaus, deren Aufspaltung der Zyklotronenergie entspricht. Es gibt zwei Bereiche: Für kleine Magnetfelder dominiert die Rydbergenergie der Exzitonen die Zyklotronenergie und man kann letztere als kleine Störung auffassen. Die Exzitonenergie E_{CM}^{12} verschiebt sich dann quadratisch mit der Stärke des angelegten Magnetfeldes bzw. mit der magnetischen Induktion **B** und es gilt [Hay00c]

$$E_{CM} = E_{CM}^{0} + \frac{e^2 \langle \rho^2 \rangle}{8\mu} B^2 \quad \text{für } B < \frac{2\hbar}{e \langle \rho^2 \rangle}$$
Gleichung 4.1

Dabei ist $\sqrt{\rho^2}$ der Exzitonenradius senkrecht zum angelegten magnetischen Feld, ähnlich dem Bohrschen Radius. μ ist die effektive Masse für die Exzitonen. E_{CM}^0 ist die in Gleichung 3.1 definierte Exzitonenenergie des PL-Übergangs. Für den Fall der QP bedeutet das Regime kleiner angelegter Magnetfelder, dass die Löcher- und Elektronenwellenfunktion weiterhin durch das Einschlusspotential der QP beschränkt sind. Mit wachsender magnetischer Induktion *B* sinkt der Zyklotronradius (oder die magnetische

Länge $l = \sqrt{\left(\frac{\hbar}{eB}\right)}$). Wenn dieser kleiner als die Größe der QP-radii wird oder die Zy-

klotronenergie größer als die Rydberg-Energie wird, werden die Ladungsträger nur durch das magnetische Feld eingeschlossen, und zwar immer senkrecht zu der Richtung des Magnetfeldes, während man das Einschlusspotential als kleine Störung Einfluss hat. Für diesen Fall ändert sich die Exzitonenenergie linear mit **B** und es gilt:

$$E_{CM} = E_{CM}^{0} - \frac{\hbar^{2}}{2\mu \langle \rho^{2} \rangle} + \frac{\hbar eB}{2\mu}, \text{ für } B > \frac{2\hbar}{e \langle \rho^{2} \rangle}$$
Gleichung 4.2.

Der Ausdruck $\frac{\hbar eB}{2\mu}$ ist die Zeemann-Abhängigkeit. Mit diesen beiden Gleichungen

kann man dann aus den gemessenen Abhängigkeiten der Energielage der spontanen Emissionsspektren von der Stärke der magnetischen Induktion B den Exzitonenradius und die effektive Masse bestimmen.

Das Magnetfeld wird durch zwei große Magnetspulen links und rechts von der Probe, die sich in einem Heliumbadkryostaten befindet, geliefert und von einem Steuer-PC kontrolliert. Die tatsächliche Magnetfeldstärke an der Probe direkt wird mittels einer Aufnehmerspule (engl.: pick-up coil) über einen Transientenrekorder überwacht. Dabei

¹² CM steht für "center of mass." Die Exziton-Energie bestimmt man aus der energetischen Lage des gaußförmigen spontanen Emissionsspektrums. Die Zeeman-Aufspaltung ist kleiner als die HWB der PL-Spektren. Man beobachtet daher nur den diamagnetischen Energieverschub ΔE_{CM} .

kann man hohe Magnetfelder bis 75 T mit Hilfe der Pulstechnik erzeugen: Eine Kapazität liefert einen Spannungspuls für einen Magnetfeldpuls von 20 ms Dauer. Eine Blende wird innerhalb eines solchen Magnetfeldpulses 3 Mal für maximal 0,15 ms bei maximaler Magnetfeldstärke (Abweichung < 1 %) geöffnet. In dieser Zeit können die optischen Messungen erfolgen. Dabei wird sowohl das anregende Laserlicht als auch die gemessene Photolumineszenz über je ein Bündel von optischen Glasfasern geleitet. Das Licht wird mit einer CCD-Kamera detektiert. Die PL-Messung findet bei einer He-Badtemperatur von 8 K und unter einer Anregungsleistung von ca. 6 mW/cm² (bei der Linie $\lambda = 532$ nm eines Nd:YAG-Lasers) statt. Eine genauere Beschreibung des Versuchsaufbaus findet man in der Dissertation von R. Provoost, siehe [Pro00].

In Abbildung 4.11 sind magnetfeldabhängige Messungen für eine Einzelschicht (A) und für Dreifach-QP-Stapel mit verschiedenen Zwischenschichtdicken d = 8, 4 und 2 nm (B, C und D) aus Abbildung 4.10 gezeigt. Die Energielage des PL-Maximums ("center of mass") ist gegen die magnetische Induktion **B** aufgetragen.



Abbildung 4.11 Energielage des PL-Maximums in Abhängigkeit der magnetischen Induktion **B** parallel(a) und senkrecht zur Wachstumsrichtung z (b) für eine QP-Einzelschicht (A) und Dreifachstapel mit verschiedenen Zwischenschichtdicken d = 8 nm (B), 4 nm (C), 2 nm (D). Die Pfeile deuten den Übergang in das Hochfeldregime an.

Mit den Messungen mit **B**-Feld senkrecht zur Wachstumsrichtung z ($B \perp z$) bestimmt man den Ladungsträgereinschluss der Löcher und Elektronen in Wachstumsrichtung. Für die Einfachschicht verschiebt die PL-Energie quadratisch mit **B** (bis 45 T: nur um 4 meV), kommt also nicht in das Regime der linearen Abhängigkeit. Man erhält für die Probe B (Dreifachstapel mit d = 8 nm) eine Energieverschiebung von 5,8 meV, für Probe C (Dreifachstapel mit d = 4 nm) die stärkste Energieverschiebung von 13,8 meV mit Magnetfeld und für Probe D (Tripel mit d = 2 nm) 7,7 meV. Die Pfeile in der Abbildung zeigen jeweils an, für welches Magnetfeld der Übergang von der parabolischen in die lineare Abhängigkeit stattfindet. Je stärker die Energieverschiebung wird, desto schwächer wird die quantenmechanische Lokalisierung der Ladungsträger in z-Richtung. Wie man in der Abbildung 4.11 (b) sehen kann, nimmt der lokale Ladungsträger-einschluss mit zunehmender Energieverschiebung, wie man es bei der Einzelschicht für alle Magnetfeldstärken beobachtet, bei den Dreifachstapeln ab. Für kleine Magnetfelder beobachtet man auch eine Abweichung von der erwarteten quadratischen Abhängigkeit der PL-Energie. Bei den Dreifachstapeln entsteht mehr oder weniger ausgeprägt, ein "Sattel", bevor der lineare Anstieg mit wachsendem Magnetfeld erreicht wird. Besonders beim Dreifachstapel mit d = 4 nm Abstand kommt es wegen der starken Kopplung der Ladungsträger zwischen den QP-Schichten zu einer starken Energieverschiebung und somit zu einer Ladungsträgerverteilung über den gesamten Stapel (in z-Richtung). Die Wellenfunktion der koppelnden Ladungsträger ist über den gesamten Stapel verteilt. Der Stapel mit d = 8 nm (Gesamthöhe h = 20 nm aus TEM-Messungen) zeigt wie auch der mit d = 2 nm eine schwächere Steigung der PL-Energie in Abhängigkeit vom Magnetfeld, weil im ersten Fall die Kopplung zwischen den QP-Schichten aufgrund des größeren Abstandes kleiner ist und im zweiten Fall, weil die Gesamthöhe (h = 8 nm) des Stapels und damit die Ausdehnung der Wellenfunktion der gekoppelten Ladungsträger kleiner ist als beim Dreifachstapel mit d = 4 nm (h = 12 nm).

In Abbildung 4.11 (a) sind PL-Energie-Abhängigkeiten vom Magnetfeld für den Fall für die *Feldrichtung parallel zu z* ($B \parallel z$) gezeigt. Man untersucht also den Ladungsträgereinschluss parallel zu den QP-Schichtebenen. Am auffälligsten ist hier, dass die PL-Energie der Einzelschicht wieder nur parabolisch von B abhängt, während die Dreifachstapel ab einer bestimmten Feldstärke von der parabolischen in die lineare Abhängigkeit wechselt, siehe Pfeile. Daraus kann man schließen, dass die Exzitonen in der Einzelschicht lokal eingeschlossen, d.h. innerhalb der QP-Radii lokalisiert sind. Aus den obigen Gleichungen können die effektive Masse der Ladungsträger und die Exzitonenradii bestimmt werden. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.3 zusammengestellt.¹³

Probe (Stapelzahl)	Schicht abstand d (nm)	Stapelhöhe (nm)	PL HWB (meV)	Verschub von E_{CM} $(\boldsymbol{B} \parallel \boldsymbol{z})$ (meV)	<i>m</i> (<i>m</i> ₀)	$\sqrt{\langle \rho^2 \rangle}$ (nm)	Verschub von E_{CM} $(B \perp z)$ (meV)
A (1)	-	-	43	6.3	-	-	3,6
B (3)	8	20	40	11,4	0,22	8,6	5,5
C (3)	4	12	28	19,4	0,12	8,0	13,8
D (3)	2	8,3	24	15,2	0,14	7,1	7,7

Tabelle 4.3 Übersicht über die Magneto-PL-Daten aus den Dreifachstapeln im Vergleich zur Einfachschicht. Man erhält die Werte für die effektiven Massen und Exzitonenradien aus Anpasskurven nach obigen Gleichungen [Pro98], [Pro99].

Die Exzitonenmassen sind hier wesentlich größer als im InP-Volumenkristall ($\mu = 0,0876m_0$, mit $m_0 = 9,31 \times 10^{-31}$ kg: Masse eines freien Elektrons), was nach Pseudopotential-Rechnungen von Pryor *et al.* [Pry97] durch die Überlappung der Löcherwellen-

¹³ Man macht hier die nicht ganz korrekte Annahme, dass die Exzitonenradii für Löcher und Elektronen dieselben sind. Wie sich zeigt, erreichen die Löcher das Hochfeldregime eher als die Elektronen (d.h. die Löcher besitzen eine ausgedehnte Wellenfunktion), so daß die lineare Abhängigkeit der PL-Energie von den Löchern dominiert wird.

funktion der InP-QP in das umgebene GaInP herbeigeführt wird. Die Kopplungseffekte werden also von den Löchern dominiert. Die Interpretation der Daten für $B \parallel z$ ist wesentlich schwieriger als in orthogonaler Richtung. Man kann aber so viel sagen, dass die unterschiedlichen Verspannungszustände der QP in den verschiedenen Schichtarten bei den Dreifachstapeln je nach Packungsdichte zu unterschiedlichen Exzitonradien führt und dass dieser für die stark gekoppelte Dreifachschicht am größten zu sein scheint. Man sieht nämlich, dass die lineare Steigung für Probe C am größten ist. Das heißt, dass die Löcher auch lateral ausgedehnter sind als in den anderen Proben. Eine reduzierte Masse und damit ein größerer Exzitonenradius ist auch ein Maß für das Eindringen der Wellenfunktion der Löcher vom GaInP ins InP. Somit ist es möglich, mit den Daten aus $B \parallel z$ für die effektiven Massen auf die Kopplungsstärke in Wachstumsrichtung zu schließen [Hay00a], [Hay00b]. Ist sie reduziert wie in Probe C, dann liegt das daran, dass der Überlapp der Löcherwellenfunktionen in das InP groß ist. Vergleicht man die effektiven Massen der Proben B-D miteinander, dann fällt auf, dass $\mu = 0.13m_0$ für die gekoppelte Probe C (Dreierstapel mit d = 4 nm) am kleinsten ist. Die eher schwach gekoppelte Probe B (d = 8 nm) besitzt fast dieselbe Exzitonenmasse wie GaInP ($\mu =$ $(0,22m_0)$, d.h. hier sind die Löcher im GaInP lokalisiert, während für Probe C die Löcher über die GaInP-Zwischenschichten über den ganzen Stapel miteinander koppeln, also ausgedehnt sind. Pryor et al. [Pry97] berechneten für MOCVD-hergestellte InP-QP, welche sich von den MBE-gewachsenen InP-QP durch ihre Größe (mittlere Höhe h_{OP} = 15 nm)und ihre pyramidale Form unterscheiden, die Elektronen- und Löcherwellenfunktionen sowie ihren Ladungsträgereinschluss (d.h. die Eigenenergien) in der Heterostruktur, siehe Abbildung 4.12.



Abbildung 4.12 Elektronen- und Lochpotentiale unter Berücksichtigung der Verspannung für einen InP/GaInP-QP mit h = 15 nm Höhe, (a) in Wachstumsrichtung, (b) in der QP-Ebene [Pry97].

Das Leitungsband zeigt einen Bandkantensprung von ca. 250 meV, d.h. die Elektronen sind stark lokalisiert. Die Elektronenwellenfunktionen sind *s*- und *p*-artig, ähnlich wie man das vom Volumenkristall her kennt. Die Wellenfunktionen der Löcher hingegen sind sehr komplex. Eine Extrapolation der Eigenenergiezustände für QP-Höhen h <15 nm von T. Riedl hat gezeigt, dass wir für h < 5 nm pro QP nur einen gebundenen Zustand zu erwarten haben, also ein Loch und Elektron pro QP mit je zwei möglichen Spinzuständen [Rie02]. Es gibt zwei verschiedene Klassen von Lochwellenfunktionen, eine ähnelt einem offenen Ring am Boden der QP und eine Klasse von Wellenfunktionen, die aus den QP in das umgebene Material hinausragen. Man erhält für den Löchereinschluss bei bestimmter kompressiver Verspannung negative Werte. Es gibt, wie man der Abbildung entnehmen kann, Lösungen der Schrödingergleichung mit schwach positven und negativen Eigenenergien. Das legt den Schluss nahe, dass unter bestimmten Verspannungen, wie das in den Dreifach-QP-Stapeln der Fall sein kann, die Elektronen lokal eingeschlossen sind, während die Löcher zwischen den QP-Schichten koppeln können, d.h. viel schwächer gebunden sind. Dieser Koppelmechanismus läuft bei den Dreifachstapeln über die beiden GaInP-Zwischenschichten ab, über welche die Löcherwellenfuntionen ausgedehnt sind, während die Elektronen durch die quantenmechanische Lokalisierung der QP gebunden sind. Man hat es also mit einem Typ-II-Heteroübergang InP/GaInP zu tun. Für InAs-QP (Typ I) hat man beobachtet, dass mit zunehmender Anzahl von gestapelten InAs-QP die Delokalisierung der Löcher ebenfalls zunimmt, was sich in einer Verlängerung der Rekombinationszeiten ausdrückt. Durch dichtes Stapeln ist der Heteroübergang also von Typ-I zu Typ-II geworden [Col99], [Pry98].

4.3.2.3 Zweifachstapel

Im Folgenden sollen Zweifachstapel untersucht werden. In der Abbildung 4.13 sind die PL-Messungen und in Tabelle 4.4 die Ergebnisse der Magnetolumineszenzmessungen gezeigt. Es wurden in E eine Doppelschicht mit 2×3.9 ML InP-QP mit einer d = 4 nm Zwischenschicht aus GaInP gewachsen, in F wurde die obere Schicht um 0,5 ML reduziert und in G um weitere 0,4 ML. Der Pfeil in Abbildung 4.13 E deutet die energetische Lage einer Einzelschicht mit 3,9 ML InP-QP an. Zunächst die Deutung ohne Magnetfeldmessung. In Probe G wurden in der oberen QP-Schicht, die von der unteren durch eine d = 4 nm dicke GaInP-Schicht getrennt ist, ca. 1 ML weniger InP abgeschieden. Man beobachtet ungefähr dieselbe Energielage bei E = 1,750 eV wie bei einer Einzelschicht und eine schmale HWB von 27 meV, siehe Tabelle 4.4. Man kann annehmen, dass die Rekombination nur von einer QP-Schicht herrührt und zwar von der mit den größeren QP, was bei G die untere Lage ist (Tunneln der Elektronen in die untere Schicht). In F sieht das PL-Spektrum fast gleich aus. Die obere Lage mit 3,4 ML wurde wiederum entvölkert und die Elektronen befinden sich unten. Die PL-Spektren von F und G sind dem der Einzelschicht sehr ähnlich. Für E beobachtet man eine Rotverschiebung des Lumineszenzspektrums im Vergleich zu dem der Einzelschicht und im Vergleich mit F und G (um 10 meV). Außerdem beträgt die HWB 24 meV und ist damit schmaler als für die Einzelschicht und die anderen Doppelschichten. Geht man davon aus, dass die QP in der 2. Lage durch Verspannung früher nukleieren (dünnere Benetzungsschicht) und damit etwas größer sind als die in der 1. Lage, dann kann man sich die Rotverschiebung durch Tunneln der Elektronen in die obere Lage erklären, wo sie dann strahlend mit den Löchern rekombinieren.

Zunächst soll die Frage geklärt werden, ob die Löcher in Zweierstapeln überhaupt koppeln wie in Dreierstapeln. In Tabelle 4.4 sind die Magneto-PL-Daten zusammengefasst. Aus der Messung $B \parallel z$ kann wieder die Exzitonenmasse und der Exzitonenradius für die Proben E - G bestimmt werden (siehe die letzen beiden Spalten). Aus den vorangegangenen Messungen wissen wir, dass die Exzitonenmasse $\mu \approx 0.23m_0$ beträgt, wenn die Löcher im GaInP lokalisiert sind und $\mu \approx 0.13m_0$, wenn sie ins InP hinein ausgedehnt sind. Man erhält für die Proben E und F eine Löcherausdehnung über den gesamten Stapel, während die Löcher für die Probe G nur in der GaInP-Zwischenschicht lokalisiert sind. Überhaupt verhalten sich die Proben E und F bzgl. Magnetfeldabhängigkeit in z-Richtung und senkrecht dazu sehr ähnlich (siehe Tabelle). Der Exzitonenradius, d.h. die Löcherausdehnung steigt mit zunehmender InP-Schichtdicke in der zweiten Schicht.

Für die Löcherausdehnung in Wachstumsrichtung betrachten wir wieder wie bei den Dreifach-QP-Stapeln die Energieverschiebung ΔE_{CM} mit der Magnetfeldstärke. Sie ist offensichtlich um so größer, je größer die InP-Schichtdicke in der oberen Schicht ist. Während in Probe G die Löcher nur im GaInP zwischen den QP-Schichten lokalisiert sind, dehnt sich ihre Wellenfunktion bei F und E über den ganzen Stapel aus. Das ist schematisch in Abbildung 4.13 dargestellt.



Abbildung 4.13 PL-Spektren von Doppelstapeln InP-QP ohne Magnetfeld. Der Pfeil deutet die Energielage einer Einzelschicht mit 3,9 ML InP-QP an. Die Zeichnungen zeigen schematisch die QP-Größen und die Wellenfunktionen der Elektronen und Löcher in den Stapeln.

Probe	PL Energielage	PL	Verschub von E_{CM}	μ (m ₀)	$\sqrt{\langle \rho^2 \rangle}$
(Stapelzahl)	(eV)	HWB	$(\boldsymbol{B} \perp \boldsymbol{z})$		(nm)
InP in oberer		(meV)	(meV)	(aus $\boldsymbol{B} \parallel \boldsymbol{z}$)	(aus $\boldsymbol{B} \parallel \boldsymbol{z}$)
Schicht (ML)					/
E 3,9	1,783	24	9,7	0,14	9,6
F 3,4	1,748	26	8,2	0,16	7,6
G 3,0	1,750	27	5,4	0,20	7,3

Tabelle 4.4 Daten der PL-Messungen mit und ohne Magnetfeld. Für Probe B konnte noch für $(\mathbf{B} \perp \mathbf{z}) \quad \mu = 0.27m_0$ und 7,5 nm für den effektiven Exzitonenradius gefunden werden [Hay01a], [Hay01b].



Abbildung 4.14 PL-Spektren von Zweifachstapeln mit d = 30 nm GaInP-Zwischenschichten. (a) ist eine Einzelschicht, (b) oben und unten 3,7 ML und (c) oben nur 2,7 ML InP-QP.

Zusammengefasst, lernt man aus der Untersuchung der dichtgestapelten Zweifach-QP-Schichten, dass mit Abnahme der InP-QP-Dicke in der oberen Lage die Ausdehnung des Verspannungsfeldes abnimmt. Das induziert eine zunehmende Lokalisierung der Löcher in der GaInP-Zwischenschicht mit abnehmender kompressiver Verspannung. Außerdem haben wir gesehen, dass sich die Elektronen immer nur entweder in der oberen QP-Schicht oder in der unteren befinden, auch wenn die nominelle QP-Schichtdicke oben und unten dieselbe ist.

Als nächstes wird ein ungekoppeltes Doppelschichtsystem besprochen: In Abbildung 4.14 sind wieder PL-Messungen von Zweifach-QP Schichten gezeigt. In (a) ist das PL Spektrum einer Einzel-QP Schicht mit 3,6 ML InP dargestellt, in (b) das einer Doppelschicht mit $2\times3,7$ ML, in (c) mit 3,7 ML/2,7 ML. Die Schichten sind hier immer durch eine d = 30 nm dicke GaInP-Schicht voneinander getrennt. Die Interpretation der PL-Spektren ist recht einfach: Die Energielage in (b) ändert sich gegenüber (a) nicht, weil weder das Verspannungsfeld der unteren QP, noch eine elektronische Kopplung aufgrund der dicken Zwischenschicht möglich ist. Die HWB ist größer, weil sie aus einer Überlagerung zweier Spektren von Einfachstapeln hervorgeht, die nicht exakt dieselbe Größenverteilung haben müssen. In (c) überlagern sich die PL-Spektren der oberen und unteren Schicht wieder. Hier rührt die niederenergetische Schulter von den größeren QP her, also von der unteren Schicht, die hochenergetische von der oberen Schicht. Die beiden einzelnen Verteilungen sind gestrichelt dargestellt.



4.3.2.4 Dreifachstapel mit variierter oberer Zwischenschichtdicke

Abbildung 4.15 PL-Spektren von Dreifach-QP-Stapeln mit variiertem oberen Zwischenschichtabstand (a) d = 30 nm, (b) d = 15 nm und (c) d = 4 nm wie die untere Zwischenschicht. Die gestrichelte Linie mit dem Pfeil deutet die Energielage eine Einzelschicht mit 3,9 ML InP-QP hin. Die Zeichnungen zeigen schematisch die QP-Größen und die Wellenfunktionen der Elektronen und Löcher in den Stapeln.

Die letzte QP-Serie ist nun ein Gemisch aus den bisher gezeigten Beispielen, siehe Abbildung 4.15. Es werden Dreifach-QP-Stapel mit veränderter oberer Zwischenschichtdicke d = 30 nm für (a), 15 nm für (b) und 4 nm für (c) untersucht. Die PL-Spektren der Proben (a) und (b) zeigen ein Hochenergie- (h) und ein Niederenergie- (l) Signal. Das Hochenergiesignal besitzt eine schmalere HWB und liegt für beide Proben praktisch auf derselben Energie. Die HWB des Niederenergiesignals nimmt ab, wenn die Zwischenschichtdicke der 3. Lage von 30 nm auf 15 nm abgesenkt wird. Bei d = 4nm ist das Niederenergiesignal ganz verschwunden und man sieht nur noch das (um 5-10 meV rotverschobene) Hochenergiesignal, das in (c) sehr schmal (26 meV) geworden ist. Von den Dreifachstapeln in Abbildung 4.10 haben wir gelernt, dass für Zwischenschichten d > 8 nm QP beim Wachstum in der oberen Lage nicht mehr aus der unteren reproduziert werden, weil das Verspannungsfeld stark abgeschwächt ist und deshalb ein PL-Spektrum wie das einer Einzelschicht zu erwarten ist. Hier stellt sich die Situation etwas anders da, weil das Verspannungsfeld der Doppelschicht stärker ist als einer Einzelschicht. Somit wächst die 3. OP-Schicht im Abstand d = 15 nm nicht völlig unabhängig von den beiden unteren auf. In Probe (b) kann man das Niederenergiesignal der obersten Einzellage zuordnen. Denn das Verspannungsfeld der beiden unteren läßt die QP wegen des schon besprochenen "thinning effects" etwas größer werden und das PL-Signal rotverschieben im Vergleich zum Doppelstapel. Erhöht man den Abstand dieser 3. Schicht, dann nimmt die Intensität dieser Niederenergieschulter ab, weil die Stärke des Verspannungsfeldes schwächer geworden ist. Aus diesem Grund ist die Energielage der Niederenergieschulter auch etwas höher für (a) als für (b). Die größere HWB in (a) im Vergleich zu (b) ist ein Hinweis für die stärkeren Größenfluktuationen in (a) durch den "thinning effect¹⁴." Erst wenn die Stärke des Verspannungsfeldes Null ist (bei noch größerem Abstand) ist die HWB mit dem einer unabhängigen Einzelschicht vergleichbar. Bei Betrachtung des TEM-Querschnittes der Probe (b) in Abbildung 4.16 allerdings kann man diese Vergrößerung der QP in der 3. Lage nicht ausmachen, was zeigt, dass die Interpretation nicht einfach ist.



Abbildung 4.16 TEM-Aufnahme in [1-10]-Richtung von Probe (b) in Abbildung 4.15. Während das Wachstum der QP in der obersten Lage nur schwach von dem Verspannungsfeld der beiden unteren QP-Schichten beeinflußt wird, koppelt die mittlere stark an die untere. Die beiden unteren QP-Schichten haben sehr ähnliche QP, die mittlere ansatzweise etwas größere als die untere.

Die Magnetolumineszenzmessungen liefern $\mu = 0.2m_0$ für das niederenergetische Signal, was zeigt, dass neben den Elektronen auch die Löcher in der Einzelschicht lokalisiert sind, bzw. in der stark verspannten Region direkt darunter [Mae02]. Die PL-Signale der Niederenergieschulter in (a) und (b) kommen also von einem örtlich direkten Übergang des Elektrons in der 3. Lage mit einem Loch in der 3. Lage. In (b) ist die Tunnelwahrscheinlichkeit des Elektrons in die 3. Lage noch etwas höher als in (a), so dass die Intensität der Niederenergieschulter etwas größer ist. Für das Hochenergiesignal ergibt sich aus den Magnetolumineszenzmessungen eine Ausdehnung der Löcher (Exzitonenmasse $0,14m_0$) über den Doppelstapel. Das Elektron tunnelt in die 2. Lage. Der optische Übergang findet zwischen dem delokalisierten Loch der Doppelschicht und dem Elektron in der 2. Lage statt.

¹⁴ vergleiche Abschnitt 4.3.1.

Für Probe (c) gilt wiederum aus den Messungen für die Exzitonenmasse und -radius: Die Löcher sind über den gesamten Stapel verteilt, denn, der anhand des diamagnetischen Verschubes in Abhängigkeit von der magnetischen Induktion bestimmbare Exzitonenradius beträgt $\sqrt{\langle \rho^2 \rangle} = 13,2$ nm, was ungefähr mit der aus TEM-Messungen bestimmten Stapelhöhe von h = 14 nm entspricht. Das Elektron befindet sich in der energetisch tiefsten QP-Schicht, also in der 3. Lage. Die Rekombination ist örtlich am indirektesten im Vergleich zu denen in (a) und (b).

4.3.2.5 Leistungsabhängige PL-Messungen im Vergleich: Einfachstapel vs. Dreifachstapel mit InP-Quantenpunkten

Um nachzuweisen, ob es sich beim dicht gestapelten Dreifach-QP-Stapel um einen Typ-I- oder Typ-II-Heteroübergang handelt, kann man anregungsleistungsabhängige Messungen an den InP-QP durchführen. Allgemein versteht man unter einem Typ-I-Heterobergang, dass sowohl die Löcher als auch die Elektronen lokalisert sind, beim Typ-II-Herteroübergang sind entweder die Löcher und die Elektronen nicht am selben Ort lokalisiert, siehe Abbildung 4.17.



Abbildung 4.17 Schematische Darstellung eines Typ-I- und eines Typ-II-Heteroüberganges.

In Abbildung 4.18 sind die anregunsabhängigen Spektren einer Einzel-QP-Schicht und einer dicht gestapelten Dreifach-QP-Schicht (d = 4 nm) von $P_0 = 200 \text{ W/cm}^2$ bis $P_3 = 3.8 \text{ kW/cm}^2$ gezeigt. Die optische Anregung erfolgte mit der blauen Linie eines frequenzverdoppelten Ti-Saphir-Lasers bei $\lambda = 400 \text{ nm}$.

Beim Einfachstapel verändert sich die energetische Lage des QP-Spektrums und des GaInP mit zunehmender Anregungsleistung nicht. Man beobachtet jedoch eine Blauverschiebung von $\Delta E = 7,6$ meV für das Signal des Dreifachstapels, während die HWB mit (30 ± 1) meV konstant bleibt. Die PL-Maxima des Einfach- und des Dreifachstapels in Abhängigkeit von der Anregungsleistung sind in Abbildung 4.19 dargestellt.



Abbildung 4.18 Leistungsabhängige PL-Messungen a) einer Einzel-QP-Schicht mit 3,7 ML InP und b) einer Dreifachschicht mit 3,7 ML InP-QP mit Zwischenschichtdicken von d = 4 nm bei 5 K.



Abbildung 4.19 Blauverschiebung der PL-Energielage des Einfach- und Dreifach-QP-Spektrums in Abhängigkeit von der Anregungsleistung aus Abbildung 4.18.

Obwohl man aufgrund der geringeren Zustandsdichte im Fall der Einfachschicht mit einem Sättigungsverhalten bei höheren Anregungspumpdichten, d.h. mit der Besetzung höherer Niveaus erwartet hätte, beobachtet man eine Blauverschiebung nur beim Dreifachstapel, bei welchem die Sättigungsleistungsdichte für den Grundzustand höher liegen müßte im Vergleich zur Einfach-QP-Schicht. Die Blauverschiebung läßt nur den Schluss zu, dass der Heteroübergang des Dreifachstapels InP/GaInP Typ II ist, während der Einfachstapel Typ I zugeordnet werden muß. Wir wissen schon aus den Pseudopotentialrechnungen von Pryor *et al.* und aus den Magnetolumines-zenzmessungen, dass die Elektronen in den QP lokalisiert sind und die Löcher im Dreifachstapel über den gesamten Stapel ausgeschmiert sind. Diese Vorstellung wird durch die beobachtete Blauverschiebung bestätigt. Man hat auch in anderen Materialsystemen wie GaSbQP/GaAs und SiGe-QP/Si die Blauverschiebung mit der Typ-II-Heterostruktur erklärt, z.B. [Hat95], [Mue01].

Ein Gedankenexperiment dazu ist in Abbildung 4.20 schematisch dargestellt. Durch die Bandverbiegung um den Betrag E_A verschiebt sich das elektronische Niveau im Leitungsband um diesen Betrag, während die Niveaus der Löcher nicht um diesen Betrag nach oben schieben können, weil sie sich mit höherer Anregungsleistung in einem immer engeren Dreieckspotential befinden¹⁵.



Abbildung 4.20 Schematische Darstellung des Erklärungsversuches für die beobachtete Blauverschiebung der QP-Lumineszenz beim dicht gestapelten Dreifachstapel. Durch verstärktes optisches Pumpen erhöht sich die Ladungsträgerdichte. Dadurch entsteht die dargestellte Bandverbiegung im Leitungs- und Valenzband. Der indirekte optische Übergang verschiebt blau, weil das Elektronenniveau stärker schiebt als das Löcherniveau.

¹⁵ Man kann sich die Blauverschiebung auch mit der Vorstellung plausibel machen, indem man sich vorstellt, dass das Lochniveau mit zunehmender Bandverbiegung in dem immer schmaler werdenden Dreieckspotential zu kleineren Energien hin nach unten verschiebt.

4.4 Polarisation

In diesem Abschnitt sollen die Polarisationseigenschaften von MBE gewachsenen InP-Quantenpunkten untersucht werden. Wir wollen der Frage nachgehen, inwiefern sich die intrinsische Ordnung der die QP umgebende GaInP-Matrix Einfluss auf die optischen Eigenschaften der QP nimmt. Überhaupt weiß man sowohl über die Kristallstruktur als auch über die innere elektronische Bandstruktur von MBE-gewachsenem GaInP im Vergleich mit MOVPE-hergestellten GaInP noch recht wenig.

Nach einer kurzen Einführung der Kristallstruktur und dern Konsequenzen auf die elektronische Bandstruktur und damit auch auf die optischen Eigenschaften von GaInP sollen einige wichtige Eigenschaften von MOVPE und MBE hergestellten GaInP-Schichten miteinander verglichen werden. Dann werden die Polarisationseigenschaften von MBE-gewachsenem GaInP und in ihm eingebetteten InP-QP beschrieben. Der Vergleich mit einem kompressiv verspannten GaInP-Quantenfilm zeigt, dass nicht die Matrix allein die optischen Eigenschaften der darin eingebetteten Nanostruktur determinieren kann.

Hinsichtlich der Applikation Quantenpunktlaser lernen wir, dass es sehr von Bedeutung ist, in welche Richtung der Resonator bezüglich der Orientierung der QP ausgerichtet ist, denn anders als beim QF-Laser ist die optische Verstärkung des QP-Lasers stark von der Kristallrichtung abhängig. Am Schluss des Abschnittes werden noch Polarisationsmessungen aus den Spaltkanten von Einzel- und Dreifachstapeln vorgestellt. Die schon aus den Magnetolumineszenzmessungen bekannte Tatsache, dass die dichte Stapelung der QP eine Kopplung der Ladungsträger in Wachstumsrichtung bewirkt, manifestiert sich in der [110]-Richtung sogar durch den Wechsel von TM- in TEdominierte Polarisation. Das bedeutet, dass sich ein gekoppelter Dreifachstapel von InP-QP optisch wie ein Quantendraht in Wachstumsrichtung verhält.

4.4.1 Oberflächenpolarisation

Ga_{0,52}In_{0,49}P ist ein ternärer Mischkristall, der sich aus GaP mit der Gitterkonstanten 5,451 Å und InP mit 5,868 Å zusammensetzt und in diesem Kompositionsverhältnis perfekt auf die Gitterkonstante von GaAs mit 5,653 Å angepaßt werden kann. In der Literatur gibt es unterschiedliche Erklärungsansätze für die Entstehung von Ordnung beim Wachstum ternärer Kristalle, wobei sich in unserem Fall speziell herausstellt, dass sich MBE-gewachsenes GaInP von MOVPE-gewachsenem unterscheidet. Über letzteres wurde schon viel in der Literatur geschrieben.

Allgemein versteht man unter Ordnung, dass sich die Atomsorten (z.B. Gruppe IIIoder Gruppe V-Atome) auf einem jeweiligen Übergitter nicht mehr statistisch auf ihre Gitterplätze verteilen, sondern in einer definierten Reihenfolge, die eine bestimmte kristallographische Richtung besitzt. Der perfekt geordnete Kristall besitzt eine Reihe von Ebenen, die jeweils nur von einer Atomsorte besetzt sind. Ungeordnetes GaInP kristallisiert in einer Zinkblende-Struktur. Hierbei handelt es sich um zwei kubisch flächenzentrierte (fcc) Gitter, die um ¼ der Gitterkonstanten in [111]-Richtung gegeneinander versetzt sind. Die Gallium- und Indiumatome besetzen die Gitterplätze des fcc-Gitters, während die Phosphoratome in den Tetraederlücken sitzen. Bei der Ebenenklasse {111}, die um 54,7° zur (001) Oberfläche verkippt ist, gibt es bei der Zinkblendestruktur vier äquivalente Richtungen. Man unterscheidet die (111)_A- von den (111)_B-Flächen. Dabei nennt man die Ebenen (111)_A, die in Richtung der (110)-Ebene verkippten Ebene (111) und die in die Richtung (-1-10) verkippte Ebene (-1-11), welche Gruppe-III-Elemente terminiert sind. Die anderen Ebenen (-111) und (1-11) heißen (111)_B und sind Gruppe V-Elemente terminiert (z.B. As oder P).

Zunächst soll die LR-Ordnung (engl.: long range ordering) beschrieben werden:

Für Ga_xIn_{1-x}P wiesen Gomyo *et al.* 1987 [Gom87] erstmalig Ordnung anhand von <u>T</u>ransimissions-<u>E</u>lektronen-<u>D</u>iffraktometrie-Aufnahmen (TED) nach. Dabei stellte man fest, dass die Ordnungsrichtungen stets die [111]_B-Richtungen und nie die [111]_A-Richtungen sind. Man nennt diese Ordnung CuPt_B-Struktur oder auch *LRO*. Die Gruppe III-Elemente Gallium und Indium besetzen hierbei die (1-11)- und (-111)-Ebenen und das Material bildet auf diese Weise ein Übergitter GaP/InP in diese Richtung. Die Besetzung der genannten Ebenen der Atome A,B und C erfolgt nach dem Muster ACBC, ACBC (GaPInP, GaPInP) usw. Welche der beiden Varianten bevorzugt wird, hängt beispielsweise von der Verkippung des Substrates ab [Bel89].

Die Einheitszellen für das ungeordnete und das dem entsprechenden $CuPt_B$ -Typgeordnete GaInP ist in Abbildung 4.21 zu sehen.



Abbildung 4.21 Einheitszelle der ungeordneten Zinkblende-Struktur des $Ga_{0,52}In_{0,48}P$ und der $CuPt_B$ geordnete Struktur. Die Atome der Gruppe III-Elemente im linken Bild sind alle grau dargestellt, um anzudeuten, dass sie statistisch auf die Tetraedergitterplätze verteilt sind [Gro96].

Ordnungseffekte haben Konsequenzen auf die Bandstruktur. Die ersten systematischen Untersuchungen wurden von Bernard *et al.* [Ber88] und die theoretische Bestimmung der Auswahlregeln für die optischen Übergänge in ternären III-V-Halbleitern von Wei *et al.* durchgeführt [Wei90]. Ich möchte an dieser Stelle nur kurz die wichtigsten phänomenologischen Effekte aufzählen, welche Ordnung hervorruft:

Das Leitungsband verschiebt sich zu niedrigeren Energien hin und das entartete Valenzband spaltet auf. Wegen der Bildung von Übergittern in {111} wird die Größe der Einheitszelle verdoppelt, was gleichbedeutend ist mit einer Reduzierung der Brillouinzone im reziproken Raum um einen Faktor zwei. Das heißt, die Zustände am Rand der Brillouinzone am L-Punkt werden in die Mitte (Γ -Punkt) zurückgefaltet. Da die zurückgefalteten Zustände dieselbe Symmetrie haben wie die im Γ -Punkt, stoßen sie sich ab und es kommt deshalb durch abstoßende Wechselwirkung zu einer Absenkung des untersten Leitungsbandes (Γ_{6C}) und einer leichten Anhebung des obersten Valenzbandes. Daraus folgt wegen $\Delta E_g = E_g \cdot \Delta E_C \cdot \Delta E_V$ eine Reduktion der Bandlücke E_G [Gro96] (s.Abbildung 4.22).



Abbildung 4.22 Bandstruktur am Γ -Punkt für die Zinkeblendestruktur des völlig ungeordneten GaInP und für das CuPt_B-geordnete GaInP [Gro96].

Weiterhin wird die kubische Symmetrie durch Ordnung gestört, was die Ursache für die Aufspaltung des obersten Valenzbandes ist. Das vierfach entartete Valenzbandmaximum spaltet in die beiden Zustände $\Gamma_{4,5v}$ (*hh*-artig, $m_j = \pm 3/2$) und den zweifach entarteten Zustand $\Gamma_{6v}(2)$ (lh-artig, $m_j = \pm 1/2$) auf. Das spin-bahn-abgespaltene Band benennt man mit $\Gamma_{6v}(1)$.

Polarisationseffekte lassen sich nun damit herleiten, dass unter gewissen Symmetriebedingungen nur bestimmte optische Übergänge erlaubt sind.

Unter Polarisation versteht man einen bestimmten Schwingungszustand vektorieller Wellen, wobei bei vollständig polarisierten Wellen eine feste Phasenbeziehung zwischen den Komponenten des Feldvektors besteht. Fehlt eine solche Beziehung völlig und ändert sich die Schwingungsrichtung des Feldvektors unregelmäßig, dann nennt man die Welle unpolarisiert. Elektromagnetische Wellen (z.B. Lichtwellen) sind in isotropen Medien oder im Vakuum transversale Wellen, während sie in anisotropen Medien auch Zwischenformen annehmen können. Bei Transversalwellen unterscheidet man je nach Phasendifferenz zwischen linear, zirkular und elliptisch polarisierten Wellen. Bei Lichtwellen bezeichnet man die Ebene, die die Ausbreitungsrichtung des Lichtes und den elektrischen Feldvektor enthält, als Schwingungsebene. Die dazu senkrecht stehende Ebene, die den Lichtstrahl und den magnetischen Feldvektor enthält, heißt Polarisationsebene. Unter dem Polarisationsgrad *P* versteht man das Verhältnis der Intensität des polarisierten Lichts zur Gesamtintensität der Lichtwelle. Er kann mit einem als Analysator benutzten Polarisationsfilter bestimmt werden. Durch Drehen des Analysators erhält man zwei zueinander senkrechten Stellungen mit maximaler und minimaler Intensität.

Der Polarisationsgrad *P* ist definiert als: $P = \frac{I_{[1-10]} - I_{[110]}}{I_{[1-10]} + I_{[110]}}$ Gleichung 4.3.

Mascarenhas und Mitarbeiter haben 1989 mittels polarisationsabhängiger Photolumineszensuntersuchungen experimentell den Zusammenhang zwischen Reduktion der Bandlücke (Verschiebung des PL-Signals) und Ordnungsgrad nachgewiesen [Mas89]. MOVPE-gewachsenes GaInP besitzt eine kleinere Bandlücke bei niedrig gewachsenen Substrattemperaturen und ist stärker geordnet als bei höheren Wachstumstemperaturen. Der niedrigste Übergang $\Gamma_{6c} \rightarrow \Gamma_{4,5v}$ in den Spektren ist dann dominant, wenn die Polarisation (der elektrische Feldvektor) senkrecht zur Ordnungsrichtung (oder parallel zu den Ordnungsebenen) orientiert ist. (Dabei besitzen die *z*-Komponenten des zweifach entarteten Valenzbandes $\Gamma_{4,5v}$ $J_z = \pm 3/2$, die des Leitungsbandes $\Gamma_{6v} J_z = \pm 1/2$ und es sind nur optische Übergänge mit $\Delta J = 1$ erlaubt.) Zum Beispiel ist für MOVPEgewachsenes GaInP eine Polarisation in [110]-Richtung zu beobachten, weil die Ordnungsrichtungen [1-11] und [-111] eine Ebene aufspannen, dessen Normale die [110]-Richtung ist. Der Polarisationsgrad ist ein Maß für den Ordnungsgrad.

Die bei uns verwendete Messmethode zur Ermittlung des Polarisationsgrades *P* ist in Abbildung 4.23 veranschaulicht.



Abbildung 4.23 PL - Aufbau mit Polarisator und Analysator zur Bestimmung des Polarisationsgrades.

Der optische Aufbau ist derselbe wie der in Abschnitt 2.2 beschriebene für Photolumineszenz bei tiefer Temperatur, bis auf die Ausnahme, dass man hintereinander einen Glen-Thomson-Polarisator und ein $\lambda/4$ Plättchen als Polarisationsanalysator vor den Monochromatoreingangsspalt stellt. Der Polarisator wird nun jeweils um einen gewissen Winkel gedreht, so dass man die Winkelabhängigkeit der PL-Intensität der Probe messen kann. Der Analysator dient dazu, das Licht zirkular zu polarisieren, um jegliche Polarisationsabhängigkeiten seitens des Monochromators auszuschalten. Gemessen wird also die spontane Emission aus der Probenoberfläche in Abhängigkeit von der Orientierung des Polarisators. Wichtig bei den Messungen ist, dass der Winkel zwischen Polarisator und Analysator immer 45 ° beträgt, das heißt, man dreht den Analysator bei jeder Winkeländerung des Polarisators mit. Um sicher zu gehen, dass die Messungen unabhängig von der Orientierung der Probe bezüglich des Versuchsaufbaus ist, drehen wir diese um 90 ° und stellen fest, dass die Polarisationsrichtung bezüglich des Kristalls davon unabhängig bleibt.

Im Folgenden soll die CM-Ordnung (engl.: <u>composition modulation</u>) erläutert werden: Während man sich mit der Ordnung ternärer Systeme bei MOVPE seit Ende der 80er Jahre intensiv beschäftigt hatte, tauchen erst einige Jahre später einige Artikel über Ordnungseffekte für MBE gewachsene III-V-Halbleiter auf. Dabei beschränken sich die meisten Artikel auf theoretische Beschreibungen, die davon ausgehen, dass GaInP nicht homogen aufwächst, sondern dass in Wachstumsrichtung, also [001], sukzessiv GaP/InP-Übergitter mit einer mittleren Periode von einigen nm entstehen. Dadurch bilden sich auf der Wachstumsoberfläche galliumreiche und indiumreiche Domänen, die man als "quantendrahtähnlich" beschreiben kann. Sie sind in [1-10]-Richtung orientiert und haben einen Abstand von 10 - 20 nm, s. Abbildung 4.24.



Abbildung 4.24 Schematische Illustration der CM-Ordnungsbildung durch ein GaP/InP-Übergitter (SPS: short period superlattice). Es kommt in [1-10]-Richtung zur Ausbildung von In- bzw. Ga-reichen "Quantendrähten"[Che93], [Che98].

Mattila und Mitarbeiter [Mat99] berechneten die elektronische Bandstruktur von GaAs/InAs, GaP/InP und AlP/GaP-Verbindungen mit lateraler Kompositions-Modulation *CM*. Nach ihren Berechnungen gilt, dass nur in dem System AlP/GaP CM zu einer Typ-II-Bandstruktur führt, während die anderen Materialsysteme Typ-I bleiben, d.h. dass die Elektronen und Löcher am selben Ort lokalisiert sind. Auch bei diesem Ordnungstyp findet man polarisiertes Licht für den niedrigsten optischen Übergang. Dabei ist die Komponente senkrecht zur CM die energetisch günstigere und die Übergangswahrscheinlichkeit in diese Richtung ist größer. Das bedeutet im Fall von GaInP, dass man eine Polarisation in [1-10]-Richtung erwartet. Die Größe der Rotverschiebung ist wieder ein Maß für den Ordnungsgrad.

Chen und Mitarbeiter entwickelten Anfang der 90er Jahre eine Methode, mit welcher man Quantendrähte aus Ga_xIn_{1-x}P herstellen konnte: Sie wachsen Übergitter aus ca. 20 Schichten mit ca. 10 nm dicken GaP/InP-Quantenfilmen. Durch die Verspannung in diesen Schichten bilden sich die lateralen Quantenstrukturen aus. Die Quantendrähte sind in [1-10]-Richtung orientiert und haben typische Längen von 300 nm, Dicken von 5 nm und Breiten von 20 nm. In Querschnitts-TEM Aufnahmen in [1-10]-Richtung sehen die Autoren lateral helle (indiumreiche) und dunkle (galliumreiche) Bereiche in Wachstumsrichtung im Bereich der Übergitter, welche sie auf die CM-Ordnung zurückführen. Die Quantendrähte zeigen Polarisation in [1-10]-Richtung [Che93], [Che98].

Sugisaki et al. haben nun festgestellt, dass sich diese Übergitter auch spontan während des Wachstums einer Pufferschicht Ga_{0,52}In_{0,48}P mittels Gas-Quellen-MBE (GSMBE, engl.: gas source MBE) ausbilden. Da hierbei der Effekt der Oberflächenmodulation schwächer ausgebildet sein wird, als bei einem künstlich hergestellten Übergitter, ist der experimentelle Nachweis schwieriger zu führen. Die Autoren zeigen Querschnitts-TEM-Aufnahmen in [110]- und [1-10]-Richtung und sehen tatsächlich die hellen In-reichen und dunklen Ga-reichen Domänen in [001]-Richtung des Puffers im [1-10]-Querschnitt. Anhand von TED-Aufnahmen in beide Richtungen konnten die Autoren eine CuPt_B–Ordnung mit Ordnungsebenen in [-111]- und [1-11]-Richtungen nachweisen. Zusätzlich weisen die Reflexe der höheren Ordnungen im [1-10]-Querschnittsbild Elongationen in [110]-Richtung auf, was mit der Existenz von Kompositionsmodulationen in diese Richtung interpretiert wird. Diese GSMBE gewachsenen $Ga_{0.52}In_{0.48}P$ -Schichten besitzen also beides, die CuPt_a-Ordnung und die CM-Ordnung, wobei die Polaristionsrichtung zeigt, dass der Effekt der CM-Ordnung dominant zu sein scheint. Je nach Wachstumsbedingung erreichen die Polarisationsgrade Werte zwischen 40 % und 80 % [Hon99].

Mittels Querschnitts-TEM-Aufnahmen von unseren GaInP-Schichten können wir keine solche CM-induzierten Domänen feststellen, siehe Abbildung 4.25. Die Pufferschicht sieht sehr schön glatt aus, lediglich direkt oberhalb des Dreifach-QP-Stapels, bis ca. 30 nm in den Puffer hinein, sind verspannungsbedingte Kontraste erkennbar.





Abbildung 4.25 TEM-Aufnahmen in [110]- und [1-10]-Richtung eines 3,3 ML InP-Dreifachpunktstapels eingebettet in einem 120 nm dicken $Ga_{0,52}In_{0,48}P$ -Wellenleiter. Dieser ist umgeben von n- und p- dotierten $Al_{0,53}In_{0,47}P$ -Mantelschichten. Keinerlei Hinweise auf CM.

In unseren TED-Aufnahmen deuten {111}-Übergitterreflexe auf eine schwache Existenz einer LRO-Ordnung, siehe Abbildung 4.26. Die schwache Elongation bei den höherinduzierten Gitterreflexen kann nicht eindeutig einer CM-Struktur zugeordnet werden. Somit erweist sich der mikroskopische Nachweis des Ordnungstyps in unseren Strukturen als schwierig. Lediglich die Tatsache, dass alle PL-Messungen eindeutig eine Polarisation in [1-10]-Richtung zeigen, lassen zumindest auf eine Dominanz der CM-Ordnung schließen.





Abbildung 4.26 TED-Aufnahmen unserer Ga_{0.52}In_{0.48}P-Proben in [110]- und [1-10]-Richtung.

Bei MOVPE-gewachsenem GaInP wird eine starke Abhängigkeit des Ordnungsgrades von den Wachstumsbedingungen [Scho98] wie III/V-Verhältnis [Gom86], Wachstumsrate [Kur90], GaAs-Substratverkippung [Min89] und Substrattemperatur [Ohb86], [Son01] beobachtet. Der Ordnungsgrad steigt z.B. von ca. 20 % auf 50 % bei Änderung der Wachstumstemperatur von 500 °C auf 650 °C, wo er maximal ist. Die Erhöhung des Ordnungsgrades geht einher mit einer Absenkung der Bandlücke bei 500 °C auf ca. 1,90 eV bei 650 °C [Ohb86]. Für höhere Substrattemperaturen sinkt der Ordnungsgrad wieder leicht ab. Dieses Verhalten ist bekannt unter dem Begriff "U-förmige Abhängigkeit der Bandlücke von der Wachstumstemperatur." Andere Gruppen berichten von einem maximalen Ordnungsgrad von ca. 50 % bei einer Wachstumstemperatur von 680 °C und einer Substrattverkippung von 6 ° \rightarrow {111}_B [Gen97].

Bei SSMBE-gewachsenen GaInP-Schichten beobachten Song *et al.* [Son01] tendenziell ein ähnliches, wenngleich abgeschwächtes Verhalten. Der maximale Ordnungsgrad von 35 % wird bei einer Substrattemperatur von 490 °C erreicht. Bei 420 °C beträgt er noch ca. 22 %. Den Abfall des Ordnungsgrades bei noch höheren Wachstumstemperaturen deuten die Autoren mit der Abnahme der Anzahl der Phosphoratome auf der Wachstumsoberfläche, was eine Veränderung der Oberflächenrekonstruktion zur Folge hat. Allerdings wird nicht ersichtlich, ob der Phosphordruck für höhere Temperaturen erhöht wurde oder ob der Haftkoeffizient beim Wachstum abnimmt. Nach meinen Erfahrungen reicht ein fünffaches V/III-Verhältnis bei Wachstumstemperaturen von > 500 °C nicht aus, um noch eine glatte GaInP-Schicht zu wachsen, d.h. mit ausgeglichenem V/III-Verhältnis. Weiterhin kann ich bei unseren GaInP-Proben keine eindeutige Korrelation zwischen Wachstumstemperatur und Polarisationsgrad feststellen. In den meisten Fällen nimmt der Polarisationsgrad für unser Ga_{0,52}In_{0,48}P einen Wert zwischen 50 % und 60 % an, siehe Abbildung 4.27.



Abbildung 4.27 PL-Spektrum eines $Ga_{0,52}In_{,48}P$ -Puffers, gewachsen bei $T_{sub} = 460 \text{ °C}$.

4.4.2 Konsequenzen der Ordnungsphänomene in GaInP auf die intrinsische Bandstruktur

Wie man von MOVPE-gewachsenem GaInP schon weiß, taucht in den PL-Spektren je nach Temperatur und Wachstumsbedingung neben dem schwerlochartigen direkten Exzitonübergang bei ca. 2,0 eV [DeL95], [Vur01] auf der Niederenergieseite ein weiteres Signal auf, das die folgenden Eigenschaften aufweist und "moving emission" genannt wird:

- 1.) PL-Energie ca. 20-50 meV unterhalb des freien Exzitionenüberganges innerhalb der Bandlücke und HWB = 10-20 meV (bei tiefen Temperaturen) im Vergleich zu der schmalen HWB = 5 meV bei 2,0 eV [Kop00].
- 2.) Das PL-Signal zeigt eine Blauverschiebung mit steigender Anregungsleistung [DeL90].
- 3.) "inverted S-shape": bei Detektionstemperaturen von 2-100 K steigt die PL-Energie dieses Signals zunächst, bevor es für höhere Temperaturen wieder bei kleineren Energien aufgrund der Bandlückenreduktion gemessen wird.
- 4.) Die Zerfallszeiten der PL sind extrem lang (meistens > 1000 ps, aber abhängig von Temperatur, Energie und Stapelzahl) und nicht exponentiell, d.h. energieabhängig [Ern96], [Chr00], für MBE-gewachsene InAs-QP: [Col99].
- 5.) Multi-Emissionsmaxima des PL-Signals [Flue02], [Kop00].
- 6.) Lineare Magnetfeldabhängigkeit des PL-Signals [Hay03].

Für MOVPE-gewachsenes GaInP wurde viel darüber diskutiert, ob der räumlich indirekte Übergang zwischen Elektronen und Löchern in Domänen mit unterschiedlichem Ordnungsgrad für die beobachteten Effekte verantwortlich sein kann. Das würde einem Typ-II-Heteroübergang innerhalb der GaInP-Matrix entsprechen. Bis heute wird die Diskussion kontrovers geführt [Flue02], [Kop00].

Neuere Pseudopotentialrechnungen von Wei und Zunger liefern etwas andere Werte als die von Pryor *et al.* vorgeschlagenen für die Heterobandsprünge ΔEc und ΔEv : Für unverspanntes InP in GaInP ist $\Delta Ec = 521$ meV und $\Delta Ev = 55$ meV [Su98]. Setzt man voraus, dass das PL-Maximum von MBE gewachsenem GaInP 50 meV unterhalb der ungeordneten Bandkante erscheint, dann skaliert sich der Leitungsbandsprung auf 45 meV und der des Valenzbandes auf 5 meV für In-reiche QP in der GaInP-Matrix. Diese Daten zeigen in der Tat einen sehr schwachen Ladungsträgereinschluss für die Löcher, beweisen aber immer noch nicht einen Typ-II-Heteroübergang.

Bei GaInP aus der MBE beobachtet man bei jeder Temperatur nur ein PL-Maximum, das nichts anderes zu sein scheint als das Signal der "moving emission", denn die meisten der obigen Eigenschaften konnten bisher experimentell nachgewiesen werden¹⁶. MBE-gewachsenes GaInP emittiert bei tiefen Temperaturen bei 1,95 eV, d.h. 50 meV unterhalb der total ungeordneten Bandlücke und hat eine HWB von 15 meV. Neben der Beobachtung einer Blauverschiebung des GaInP-PL-Signals um 2,3 meV bei Anregungsdichten von 0,5-50 W/cm² ist der glaubhafteste Nachweis einer intrinsischen Typ-II-Bandstruktur durch die lineare Abhängigkeit des PL-Signals von der Magnetfeldstärke ab $B \approx 5$ T bei 4 K gezeigt. Dieses Verhalten ist, wie wir schon gesehen ha-

¹⁶ Davon für unsere MBE gewachsenen GaInP-Schichten: (1), (2), (6), mittels MBE hergestelltes GaInP anderer Gruppen: alle, außer (3), [Sug00].

ben, charakteristisch für nur schwach gebundene Exzitonen. Aus der Steigung erhält man die effektive Masse von $m^* = (0,20 \pm 0,05)m_0$ (m_0 ist die Masse des freien Exzitons). Dieser Wert wurde auch von MOVPE-gewachsenem GaInP für die effektive Masse der freien Ladungsträger veröffentlicht [Kop00]. Es ist anzunehmen, dass es sich bei der Masse der freien Ladungsträger nicht um die Elektronen handelt, denn dieser Wert wurde von Emanuelsen *et al.* für schwach CuPt-geordnetes GaInP schon mit $0,092m_0$ beziffert [Ema94]. Eine Mittelung der von Zhang und Mascarenhas theoretisch bestimmten kristallrichtungsabhängigen Lochmassen liefert ziemlich genau den durch die Magnetolumineszenzmessung bestimmten Wert [Hay03].

Abbildung 4.28 zeigt diesen Zusammenhang für verschiedene Temperaturen bis 18 K. Für hohe Magnetfelder ändert sich die Steigung nicht, für kleine Magnetfelder läßt sich die Tendenz erkennen, dass der Übergang von der parabolischen zur linearen Abhängigkeit der PL-Energie vom Magnetfeld mit zunehmender Temperatur zu höheren Feldstärken hin verschiebt. Das bedeutet, dass die Exzitonen für höhere Temperaturen örtlich weniger indirekt werden, d.h. die Exzitonen-Bindungsenergie steigt.

Dieser Vorstellung folgend sind dann die Elektronen in den In-reichen Gebieten lokalisiert, während die Löcher wegen der Kopplung zwischen Leicht- und Schwerlochband für die Polarisationseigenschaften verantwortlich sind.

Die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen Leitungsband und Valenzband ist durch das sog. Matrixelement $\langle \Psi_L | H | \Psi_V \rangle$ gegeben, wobei *H* der Hamilton-Operator und $\Psi_{L,V}$ die Wellenfunktion der Ladungsträger im Leitungs- oder Valenzband ist. Die Intensität der spontanen Emission ist zum Quadrat diese Matrixelementes proportional. Dieses ist für den leichtlochartigen und schwerlochartigen Übergang unterschiedlich anisotrop für die Kristallrichtungen. Die Kopplung zwischen den Valenzbändern bedingen den Ordnungsgrad. Die Lumineszenzspektren des stark CuPt- geordneten GaInP (MOVPE) bestehen aus dem schwerlochartigen Hochenergiemaximum und dem leichtlochartigen Niederenergiemaximum, welches mit "moving emission" bezeichnet wird. Das in [110]-Richtung polarisierte Licht dominiert für LRO-geordnetes GaInP, für CMgeordnetes GaInP das dazu orthogonal polarisierte Licht.

Für das schwach CuPt-geordnete (CM-geordnete) GaInP aus der MBE existiert nur dieses niederenergetische PL-Spektrum (moving emission), das stark polarisationsabhängig ist. Die Intensität in [1-10] dominiert deutlich und wird daher als CM-dominierte Ordnung bezeichnet.



Abbildung 4.28 Energetisches Maximum des PL-Spektrums von GaInP in Abhängigkeit von der magnetischen Induktion B in [001] bei unterschiedlichen Temperaturen. Der Abstand zwischen den Kurven ergibt sich durch Messungen an unterschiedlichen Stellen auf der Probe [Hay03].

4.4.3 Polarisation von MBE gewachsenen InP-Quantenpunkten

Wie verhalten sich InP-Quantenpunkte, die in einer hochanisotropen GaInP-Matrix eingebettet sind? Im Gegensatz zu InAs/GaAs-Quantenpunkten, bei denen maximale Polarisationswerte von (15-30) % gemessen worden sind [Nab94], beobachtet man bei InP/GaInP-Quantenpunkten sowohl starke geometrische als auch starke optische Anisotropie. In Abbildung 4.4 sind rasterkraftmikroskopische Aufnahmen von Oberflächen der InP-Quantenpunkte gezeigt. Abbildung 4.29 (a) zeigt die Dimensionen von 3,0 ML InP-Inseln: Sie haben typischerweise Längen von (50 ± 15) nm (wegen der starken Tendenz zu koaleszieren, ist die Angabe der exakten Insellänge schwierig, siehe Abschnitt 4.2) und Breiten von (25 ± 5) nm, d.h. sie sind nicht rotationssymmetrisch, sondern elongiert in [1-10]-Richtung. Abbildung 4.29 (b) zeigt eine AFM-Aufnahme einer Oberfläche der obersten Insellage eines Dreifach-QP-Stapels, dessen Einzelschichten durch d = 4 nm dicke GaInP-Pufferschichten voneinander getrennt sind. Die mittlere Insellänge hat sich erhöht auf (110 ± 60) nm, während die Breite im Vergleich zur Einzel-QP-Schicht unverändert bleibt. Wie schon in Kapitel 4.3.2.1 angesprochen, wächst die Inselgröße von Insellage zu Insellage, weil der Nukleationsprozess aufgrund der erhöhten Verspannung in der oberen Schicht zu einem früheren Zeitpunkt, d.h. bei einer noch geringeren abgeschiedenen InP-Materialmenge, stattfindet [Schm99]. Man kann auf den AFM-Bildern erkennen, dass sich die Insellängen vermutlich deshalb so vergrößert haben, weil benachbarte Inseln vorzugsweise in [1-10]-Richtung zusammengewachsen sind (Koaleszenz). In Abbildung 4.29 (c) und (d) sind die entsprechenden PL-Messungen für Quantenpunktproben ohne Oberflächeninseln gezeigt. Die Energieposition der Einzelquantenpunktschicht liegt bei 1,76 eV, die von GaInP bei 1,94 eV. Die Energieposition des Dreifachstapels ist erwartungsgemäß rotverschoben, weil die optischen Übergänge der Exzitonen der größeren Inseln in den oberen Lagen des Stapels zum Lumineszenz-Signal beitragen. Sie liegt für Licht, das in [1-10] polarisiert ist bei 1,730 eV und liegt damit 3 meV niedriger als die des Lichtes in [110]-Richtung. Die Bandlückenreduktion kann man sich erklären durch die Anisotropie der Verspannung in den stark elongierten Inseln, und möglicherweise trägt eine Austauschwechselwirkung zwischen je zwei benachbarten zusammenwachsenden Inseln in [1-10]-Richtung zu der beobachteten Rotverschiebung bei. In Abbildung 4.29 (c) und (d) ist der Polarisationsgrad ebenfalls in Abhängigkeit von der PL-Energie aufgetragen. Bei der Einzel-Quantenpunktschicht ist der Polarisationsgrad von Quantenpunkten und dem GaInP-Puffer gleich groß, während P auf knapp 60 % für den Dreifachstapel anwächst. Auffällig ist, dass die Polarisation immer auf der Niederenergieseite der Quantenpunkte maximal wird. Das kann darauf zurückgeführt werden, dass die größeren Inseln im Ensemble, welche ja nach obigen Ausführungen und wie man in Abbildung 4.30 sehen kann, stärker elongiert sind, einen größeren Polarisationsgrad aufweisen als die kleineren.



Abbildung 4.29 (a) AFM-Aufnahmen von $(0,5 \times 0,5) \mu m^2$ Oberflächen von einem Einfachstapel mit 3,3 ML InP-QD und (b) einer Oberfläche der obersten Insellage einem Dreifach-QP-Stapels, dessen Einzelschichten durch d = 4 nm dicke GaInP-Pufferschichten voneinander getrennt sind. (c) PL- und Polarisations-Spektren, gemessen in [1-10]- (gestrichelte Linie) und [110]-(durchgezogene Linie) Richtungen für eine Einzel-QP-Schicht mit 3,7 ML InP und (d) für eine Dreifachschicht mit 3,7 ML InP (Zwischenschicht 4 nm GaInP). Rote Linie: Polarisationsgrad P(E).

Wir haben gesehen, dass sich größere Inseln in den höheren Stapeln ausbilden, welche stärker polarisiert sind als die in der ersten Lage. Die Feststellung, dass der Polarisationsgrad der Inseln, welcher für die Einzelschicht gleich dem des GaInP entspricht, bei Stapelung der Inseln ansteigt, zeigt schon, dass nicht die Anisotropie des Puffers allein für die optische Anisotropie der Inseln verantwortlich sein kann. Die Form der Inseln, d.h. der Elongationsgrad ε in eine bestimmte Kristallrichtung, trägt wesentlich zu der Stärke der optischen Anisotropie bei.

In Abbildung 4.30 ist dargestellt, wie sich der Elongationsgrad ε mit steigender nomineller InP-Schichtdicke einer Einzellage von Inseln erhöht. ε läßt sich verstehen als das gemittelte Verhältnis zwischen Länge *l* und Breite *w* der Inseln, welche man aus den AFM-Aufnahmen ermitteln kann. Im Einschub der Abbildung ist die gemessene PL-Energie in Abhängigkeit von der InP-Schichtdicke aufgetragen.



Abbildung 4.30 Abhängigkeit der Elongation ε (im Einschub die PL - Energie) von der nominellen InP Schichtdicke.

Sugisaki *et al.* beobachten bei ihren GSMBE- und MOVPE-gewachsenen Inseln hingegen einen direkten, fast linearen Zusammenhang zwischen Polarisationsgrad der InP-Inseln und dem des GaInP-Puffers [Sug01], so dass sie zu dem Ergebnis gelangen, dass die Anisotropie des GaInP-Puffers allein die Anisotropie der Inseln bedingt [Sug99]. Bei den von Zwiller und Mitarbeitern [Zwi01] hergestellten InP-Inseln mittels MOVPE wurde widerum keine Korrelation zwischen der Polarisation des GaInP und der Inseln beobachtet. Ihre Inseln sind allerdings auch ca. 3-fach so hoch wie die von Sugisaki. Einig ist man sich in der Literatur jedoch darüber, dass MOVPE-gewachsene InP-Quantenpunkte und GaInP-Puffer in [110]-Richtung und mittels MBE-hergestellte in [1-10]-Richtung polarisiert sind. Es ist also anzunehmen, dass das Wachstum der Inseln durchaus von der Ordnung der darunterliegenden Schicht beeinflusst wird. Wie stark deren Einfluss noch ist, wenn die Inseln so groß sind, dass sie beginnen miteinander z.B. durch Koaleszenz in Wechselwirkung zu treten, ist bis dato noch nicht ganz geklärt.

Im Folgenden soll nun das Polarisationsverhalten von QF mit denen der QP verglichen werden. Wir werden sehen, dass das Ergebnis ein weiteres Indiz dafür ist, dass der GaInP-Puffer allein nicht das Anisotropieverhalten des eingebetteten Quantensystems bestimmen kann.

In Abbildung 4.31 (a) ist das PL-Spektrum einer Einzelschicht von InP-QP und in (b) das eines Einzel-QF bei 5 K gezeigt. Als optische Anregungsquelle diente hier das gepulste Licht eines frequenzverdoppelten Titan-Saphirlasers (100 fs, 76 MHz) mit $\lambda = 400$ nm und einer Anregungsdichte von 3,8 kW/cm².



Abbildung 4.31 PL Spektren (a) einer 3,7 ML dicken Einzel-QP-Schicht und (b) eines 8 nm dicken $Ga_{0,4}In_{0,6}P$ -QF bei 5K. Die Polarisationsgrade P sind aus den maximalen Intensitäten in [1-10]- (gestrichelte Linien) und [110]- (durchgezogene Linien) Richtung berechnet worden. Die Werte sind für die QP, den QF und den $Ga_{0,52}In_{0,48}P$ -Wellenleiter gezeigt.

Der Polarisationsgrad wurde hier einfach aus dem Verhältnis der Intensitätsmaxima der Richtungen [110] und [1-10] bestimmt. Das liefert im Vergleich zu Abbildung 4.29 leicht verschiedene Werte für P, da hier keine Rücksicht auf die spektrale Abhängigkeit der Polarisation genommen wird. Die Quantenpunkte liefern P = 0,45 (zu 45 % polarisiert) der GaInP-Puffer ist zu 60 % polarisiert. Der Quantenfilm dagegen ist nur zu 8 % polarisiert, während der ihn umgebene 120 nm dicke GaInP-Puffer zu 36 % polarisiert ist. Mit einem Fehlerbalken von (5-10) % bedeutet das, dass der Quantenfilm sich isotrop verhält. Um die Vergleichbarkeit von Quantenfilm und -punkten zu gewährleisten, wurde die Dicke und Komposition des Films so gewählt, dass er bei ca. derselben Energie emittiert wie die QP, d.h. bei ca. 1,8 eV. Dieser Film ist 8 nm dick und enthält 60 % Indium. Aber auch andere Quantenfilme, die bei 1,8 eV emittieren, zeigen dasselbe isotrope Verhalten, z.B. ist ein 4,5 nm dicker Ga_{0,3}In_{0,7}P-Quantenfilm sogar nur zu 2,5 % polarisiert.

4.4.4 Polarisationsgrad von InP-QP mit 0,01 ML/s Wachstumsrate



Abbildung 4.32 PL-Spektren von einer Einzelschicht mit 3,0 ML InP-QP mit Wachstumsrate von 0,01 ML/s (oben) und einer elektronisch gekoppelten Doppel-QP-Schicht mit je 3,0 ML InP-QP unter denselben Wachstumsbedingungen wie oben, Zwischenschichtabstand d = 4 nm.

Im Vergleich zu den InP-QP mit der klassischen Wachstumsrate von 0,5 ML/s ist der Polarisationsgrad der langsam aufgewachsenen QP (siehe Kapitel 4.2) deutlich kleiner : P = 35 %. Das hatte man hinsichtlich des Elongationsgrades auch nicht anders erwartet. Stapelt man die QP dicht, dann tritt der gleiche Effekt auf wie bei den herkömmlichen QP: Die Elongation nimmt zu und somit der Polarisationsgrad ebenfalls. Mit diesem Beispiel kann man noch einmal sehen, dass die Elongation der Inseln einen Einfluss auf die Polarisationseigenschaften hat, ohne dass sich der Polarisationsgrad des GaInP-Puffers verändert hat.

4.4.5 Polarisationsabhängige optische Verstärkung beim Quantenpunkt- und Quantenfilmlaser

In diesem Abschnitt soll beschrieben werden, welchen Einfluss die optische Anisotropie der eben besprochenen Quantensysteme für die Lasereigenschaften haben. Es wird eine Einzelquantenfilmlaser-Struktur mit einer Dreifachquantenpunktlaser-Struktur verglichen. In Abbildung 4.33 ist die Winkelabhängigkeit der spontanen Photolumineszenz dieser beiden Laserstrukturen dargestellt.



Abbildung 4.33 Winkelabhängigkeit der PL-Intensität der GaInP-Puffers, der InP-QP und des kompressiv verspannten Ga_{0.3}In_{0.7}P-QFs bei Polarisatorstellung in [110]- oder in [1-10]-Richtung.

Während das Quantenpunktsystem und der GaInP-Puffer eine zweifache Symmetrie mit Symmetrieachsen in [1-10] für 0° - und in [110] für 90 °- Winkel aufweisen, ist die Abstrahlung des Quantenfilms richtungsunabhängig. Das Licht der MBE-gewachsenen InP-Quantenpunkte und des GaInP-Puffers ist in [1-10] polarisiert, die MOVPE-hergestellten Strukturen orthogonal dazu [Sug99], [Sug01], [Zwi01].

In Abbildung 4.34 ist gezeigt, wie man sich vorstellen kann, warum ein kompressiv verspannter Quantenfilm, eingebettet in einem völlig anisotropen Puffer, optisch isotrop sein kann. Nach dem CM-Modell besitzt die GaInP-Pufferoberfläche Ga-reiche und Inreiche Domänen, welche in [1-10] ausgerichtet sind ähnlich wie Quantendrähte. So eine Oberfläche ist in Abbildung 4.34 (b) zu sehen: die AFM-Aufnahme einer 120 nm dicken Ga_{0,52}In_{0,48}P-Oberfläche zeigt tatsächlich erhöhte und abgesenkte Streifen, die in [1-10]-Richtung ausgedehnt sind; die Oberflächenrauhigkeit beträgt 8 nm. In Abbildung 4.39 (c) ist der TEM-Querschnitt eines 4,5 nm dicken, kompressiv verspannten Ga_{0,3}In_{0,7}P-Quantenfilms gezeigt. Offensichtlich ist seine Unterseite relativ rauh, während er zur Oberfläche hin geglättet ist. Wir können uns das modellhaft so erklären wie in Abbildung 4.34 (b) gezeigte Ga_{0,52}In_{0,48}P-Oberfläche indium-reiches GaInP unterhalb einer kritischen

Schichtdicke abgeschieden, dann kann es zu einem diffusiven Materialstrom zwischen den In- und Ga-reichen Domänen kommen. Dadurch werden die Höhenkorrugationen ausgeglichen und der Quantenfilm wird glatter. Das heißt, dass die Ordnung des darunterliegenden Puffers in einem dünnen verspannten Quantenfilm nicht aufrecht erhalten wird. Solche Beobachtungen wurden mit verspannten $Ga_xIn_{1-x}P/AlGaInP$ -Schichten, die mit MOCVD hergestellt worden sind, auch schon gemacht worden [Gen97]. Wie man im unteren Teil der Abbildung 4.34 (a) sehen kann, ist der QF in den Ga-reichen Gebieten dicker, dafür in den In-reichen Gebieten dünner. Da der Ladungsträgereinschluss in den In-reichen Gebieten größer ist, dafür aber die spontane Emission mit verringerter QF-Dicke energetisch hoch schiebt, gleichen sich die Effekte der beiden Gebiete gerade aus. Damit hat der QF überall ungefähr eine konstante effektive Schichtdicke d_{eff} und verhält sich somit wie ein klassischer QF, der optisch isotrop ist [Zor93]. Diese Beobachtungen sind ein weiterer Hinweis dafür, dass nicht automatisch die Anisotropie des Puffers auf die Eigenschaften des in ihm eingebetteten Quantensystems übertragen wird.



Abbildung 4.34 (a) Schematische Darstellung des Wachstums eines kompressiv verspannten Quantenfilms auf einer höhenkorrugierten $Ga_{0,52}In_{0,48}P$ -Oberfläche und Glättung durch diffusive Materialströme zwischen den In- und Ga-reichen Bereichen. Durch die unterschiedlichen Kompositionen und Dicken des QFs in den Ga-reichen und In-reichen Gebieten, verhält sich der QF optisch isotrop wie ein klassischer QF konstanter effektiver Dicke d_{eff} . (b) AFM-Bild einer Oberfläche eines 120 nm dicken $Ga_{0,52}In_{0,48}P$ -Puffers mit Höhendifferenzen bis zu 8 nm. (c) Querschnitts-TEM eines 4,5 nm dicken $Ga_{0,3}In_{0,7}P$ kompressiv verspannten Quantenfilms, eingebettet in 120 nm $Ga_{0,52}In_{0,48}P$. Seine Unterseite ist rauh, während die obere Grenzfläche geglättet ist.

Werden die Lasereigenschaften durch diese Beobachtungen beeinflusst? Im Folgenden werden Verstärkungsmessungen (engl.: gain) eines Quantenfilm- und eines QP-Lasers gezeigt. Dazu wurden die Proben mit dem gepulsten Licht eines frequenzverdoppelten (q-switched) Nd:YAG-Lasers der Wellenlänge 532 nm (Lichtpulsbreite 250 ns, Wiederholfrequenz 2,5 kHz, Tastverhältnis 1: 1600) auf ein strichförmiges Gebiet bis zu einer Länge von maximal 300 μ m senkrecht zu einer ihrer Bruchkanten angeregt. Die Anregungsdichte beträgt ca. 10 W/cm². Diese Methode wurde 1971 von Shaklee und Mitarbeitern erstmalig angewendet und hat den Vorteil, dass man neben einer planaren Wellenleiterstruktur keinerlei Prozessschritte durchzuführen braucht [Sha71]. Die detaillierte Versuchsbeschreibung befindet sich in der Dissertation von Thomas Riedl, welcher diese Messungen auch durchgeführt hat. Das verstärkte spontane Emissionssignal (ASE, engl.: amplified spontaneous emission), das aus der Probenkante austritt, wird durch zwei Linsen auf den Eingangsspalt eines Monochromators abgebildet. Es wird spektral aufgelöst und als Funktion der Strichlänge detektiert. Je nachdem, ob die Verstärkung gleich Null ist (Transparenz), kleiner Null ist (Absorption) oder größer Null (Verstärkung), wird das Licht, das durch spontane Emission weiter hinten im Strich entstanden ist, bei seinem Durchlauf durch den optisch gepumpten Bereich ungeschwächt durchgelassen, absorbiert oder verstärkt.

Dieser Zusammenhang wird durch folgende Intensitätsverteilung beschrieben:

$$I(\hbar\omega, L) = \frac{\beta R_{sp}(\hbar\omega)}{g_{net}(\hbar\omega)} (e^{g_{net}(\hbar\omega)L} - 1)$$
 Gleichung 4.4

Dabei gibt $\beta R_{sp}(\hbar\omega)$ die spontane Emission in die geführte Welle an. Durch eine Anpassung der gemessenen Intensitätsspektren $I(\hbar\omega, L)$ in Abhängigkeit von der Strichlänge L, kann das Spektrum der Nettoverstärkung $g_{net}(\hbar\omega) = g(\hbar\omega) - \alpha_i$ berechnet werden. Bedingt durch das Messprinzip enthält das Verstärkungsspektrum bereits die intrinsischen Verluste α_i des Wellenleiters [Rie02]. Dieses Spektrum wird in [110]- oder [1-10]-Richtung gemessen, d.h. entweder in Richtung der Inselelongation oder orthogonal dazu. Ein Polarisator vor dem Eingangsspalt des Monochromators, entweder parallel zur Wachstumsrichtung oder in die Wellenleiterebene gedreht, selektiert noch zwischen transversal magnetischer Mode (TM-Mode) und transversal elektrischer Mode (TE-Mode). Bei unseren Proben ist die TM-Mode aufgrund der starken kompressiven Verspannungen stark unterdrückt [Rie99], so daß wir uns bei dem Vergleich der beiden Quantensysteme auf die TE-Mode beschränken. Prinzipiell kann man aber auch bei den TM-Moden dieselben Beobachtungen machen wie bei den TE-Moden. Der grob skizzierte Versuchsaufbau und die Probenorientierungen sind in Abbildung 4.35 verdeutlicht.



Abbildung 4.35 Versuchsaufbau-Skizze nach der Strichlängenmethode zur Messung der Polarisationsabhängigkeit der Verstärkungsspektren einer Laserstruktur. Gezeigt sind ebenfalls die Kristallrichtungen relativ zur Anregungsrichtung.



Abbildung 4.36 Verstärkungsspektren eines (a) kompressiv verspannten 4,5 nm dicken $Ga_{0,3}In_{0,7}P$ -Quantenfilmlasers und (b) eines dreifach gestapelten 3,3 ML dicken InP-Quantenpunktlasers bei verschiedenen Anregungsleistungsdichten. Es sind die TE-Moden in [110]- und [1-10]-Richtung gezeigt.

In Abbildung 4.36 (a) sind die anregungsabhängigen Verstärkungsspektren für die [110]-und [1-10]-Richtungen des Quantenfilms gezeigt. Das Verstärkungsmaximum liegt bei Anregungsstärken von 2,2 kW/cm² bei 1,74 eV für beide Richtungen und verschiebt blau für Anregungsstärken von 3,7 kW/cm², weil die höherenergetischen Zustände in den Bändern aufgefüllt werden. Man erhält für 3,7 kW/cm² Verstärkungen bis zu 60 cm⁻¹. Die Spektren sind völlig orientierungsunabhängig. Dieses Verhalten ändert sich für den Quantenpunktlaser, siehe Abbildung 4.36 (b): Zunächst beobachtet man ebenfalls eine Blauverschiebung mit höherer Anregungsleistungsdichte, was auf die zunehmende Beteiligung optischer Übergänge der höher angeregten Zustände hindeutet. Hier ist aber die Verstärkung in [110]-Richtung deutlich stärker als senkrecht dazu, denn mit der ca. halben Anregungsleistung in [110] kann annähernd die gleiche Verstärkung von 50 cm⁻¹ erreicht werden wie in [1-10]-Richtung. Das Verstärkungsspektrum bei 50 cm⁻¹ in [1-10] ist gegenüber dem in [110] um ca. 20 meV blauverschoben, weil das Quantensystem für diesen Verstärkungswert schon viel stärker gepumpt werden muß, d.h. schon höhere Zustände angeregt werden. Zusammengefasst bedeuten diese Beobachtungen, dass die Oszillatorstärke der TE-Mode senkrecht zur Elongationsrichtung der Inseln stärker ist als parallel zu ihrer Ausdehnung. Die Abstrahlcharakteristik der Inseln ähnelt der von Hertzschen Dipolen: sie strahlen immer orthogonal zu ihrer Ausdehnungsrichtung ab [Man03].

Die Abhängigkeit der Lasereigenschaften von der Orientierung des Resonators bezüglich der QP-Ausrichtung läßt sich auf einfache Weise auch schön zeigen, indem man eine PI-Kennlinie aufnimmt für einen QP-Laser mit prozessierten Mesen in [110]-und [1-10]-Richtung¹⁷, siehe Abbildung 4.37.



Abbildung 4.37 Maximale optischen Leistung eines gepulsten Lasers der Länge L = 1 mm (f = 20 kHz, $\tau = 500 \text{ ns}$) in Abhängigkeit des injizierten Stromes bei RT für Mesaorientierungen in [110]- und [1-10]-Richtung. Für Resonatoren, die orthogonal zur Orientierung der InP-QP prozessiert sind, ist die Schwellstromdichte deutlich (ca. 45 %) kleiner.

¹⁷ Details zur Auswertung für die optische Leistung befinden sich in Abschnitt 5.2.1 und insbesondere im Text zu Abbildung 5.16.

Die prozessierten Laserstrukturen mit Resonatororientierung orthogonal zur QP-Ausrichtung, d.h in [110]-Richtung, zeigen deutlich geringe Schwellstromdichten (ca. 45 % Verbesserung) gegenüber den Lasern in der anderen Orientierung. Dasselbe Verhalten konnte für verschiedene Resonatorlängen verifiziert werden.

Dieses Experiment unterstreicht die durch die Verstärkungsmessungen gewonnene Aussage, dass die InP-QP-Laser aufgrund ihrer Polarisationseigenschaften orientierungs-abhängig sind und dass es sehr wichtig ist, die Mesen immer orthogonal zur QP-Orientierung zu prozessieren.

4.4.6 Polarisationsabhängigkeit bei Emission von gestapelten QP aus der Spaltkante

Der im vorigen Abschnitt beschriebene Versuchsaufbau zur Bestimmung des Polarisationsgrades der PL-Emission aus der Probenoberfläche wird nun ein wenig abgeändert. Man regt die Probe wie gehabt auf der Oberfläche an, jedoch werden die Proben so auf den Kupferblock im Kryostaten geklebt, dass man die Emission aus ihrer Spaltkante messen kann. Die Justage ist hierbei besonders kritisch, weil man vermeiden muss, dass man Oberflächenstreulicht mitmisst.

In der folgenden Abbildung 4.38 sind die PL-Spektren einer Einzel-QP-Schicht mit 3,7 ML InP, einer Doppel-QP-Schicht aus 3,9 ML InP und einer Dreifach-QP-Schicht aus 3,7 ML InP mit jeweils 4 nm Zwischenschichten aus GaInP, eingebettet in 200 nm GaInP, dargestellt. Die Emission erfolgte entweder aus der Spaltkante in [1-10] Richtung (linke Spalte) oder aus der [110]-Richtung (rechte Spalte). Die PL-Messung bei T = 10 K wurde mit Polarisator in Wachstumsrichtung z oder Polarisatorstellung senkrecht dazu in Wachstumsebene gemessen.

Die rotgefärbten Spektren wurden gemessen mit der Polarisatorstellung in z-Richtung, bei den schwarzen Spektren ist der Polarisator in Wachstumsebene gedreht, senkrecht zu z. Die verrauschte blaue Kurve gibt den spektralen Polarisationsgrad Pwieder, der in diesem Fall bestimmt wird aus $P = (I_z - I_{x,y})/(I_z + I_{x,y})$ in Abhängigkeit von der PL-Energie, wobei z die Wachstumsrichtung [001] bedeutet und x, y die Richtungen in der Ebene senkrecht dazu.

Wir betrachten zuerst die (1-10)-Spaltkante, d.h. nach Erkenntnissen aus Abschnitt 4.4.1, die Seite, bei welcher die laterale Ausdehnung der Inseln kleiner ist, d.h. man die "Kopfenden" der elongierten QP sieht. Im Vergleich zur (110)-Spaltkante fällt zunächst auf, dass der Polarisationsgrad sowohl der QP als auch des GaInP-Puffers sehr hoch ist. GaInP ist zu (80 ± 4) % polarisiert. Nimmt die Anzahl der gestapelten Inseln von 1 bis 3 zu, so beobachtet man eine leichte Zunahme der Polarisation in z-Richtung von 73 % auf 83 %. Wie schon in Abschnitt 4.3.2.1 beschrieben, koppeln die Inseln elektronisch in Wachstumsrichtung, wenn sie nur durch eine 4 nm dicke GaInP Zwischenschicht voneinander getrennt sind. Die Wellenfunktion dehnt sich in z-Richtung über den ganzen Stapel aus, d.h. die Ladungsträger-Aufenthaltswahrscheinlichkeit erstreckt sich über den ganzen Stapel. Dieses konnte mit Hilfe von Magnetolumineszenzmessungen nachgewiesen werden, siehe Abschnitt 4.3.2.2. Man kann den Inselstapel also betrachten wie eine große, in z-Richtung ausgedehnte Insel, oder besser, wie einen Quantendraht. Wie wir bei der OF-Polarisation der InP-QP schon gesehen haben, ist die Polarisation in die Elongationsrichtung am größten, d.h. hier in Richtung des "Quantendrahtes" in [001]-Richtung. Auf diese Weise wird verständlich, warum der Polarisationsgrad mit der An-
zahl der Stapel zunimmt. Das aus der (1-10)-Spaltkante emittierte Licht der QP als auch des GaInP-Puffers ist also sehr stark TM-polarisiert.

Auf dieser Spaltkante ist immer der maximale Polarisationsgrad auf der niederenergetischen Seite des Inselsignals zu finden. Das bedeutet, dass die größeren Inseln im Ensemble stärker in Wachstumsrichtung polarisiert sind als die kleineren.



Abbildung 4.38 Polarisationsabhängige PL-Spektren bei 10 K aus den Spaltkanten (1-10) und (110), oben: Einzel-QP-Schicht mit 3,7 ML InP, eingebettet in 200 nm GaInP, mitte: 3,9 ML InP-Doppel-QP-Schicht in GaInP mit d = 4 nm Zwischenschicht aus GaInP, unten: Dreifachstapel aus 3,7 ML InP mit 4 nm Zwischenschicht. Rote Kurve: Polarisator in z-Richtung, schwarze Kurve: Polarisatorstellung in Wachstumsebene, senkrecht zu z und blaue Kurve: Polarisationsgrad P.

Die (110)-Spaltkante verhält sich dagegen ganz anders. GaInP ist auf der Hochenergieseite mit (40 ± 5) % nur noch halb so stark polarisiert, während es auf der Niederenergieseite sogar größtenteils schwach TE-polarisiert ist. Ähnlich verhält es sich mit den Polarisationsgraden der QP. Auch hier ist die niederenergetische Seite TE und die hochenergetische Seite TM-polarisiert. Zudem nimmt die TM-Polarisation tendenziell mit der Anzahl der Stapel von 42 % auf 20 % ab. Das läßt sich wie folgt deuten. Mit zunehmender Zahl übereinander gestapelter Inseln nimmt die Elongation der einzelnen Inseln aus zweierlei Gründen zu. Erstens durch bevorzugtes Wachstum in [1-10]-Richtung, zweitens durch Koaleszenz in diese Richtung. Damit erhöht sich der Polarisationsgrad in der Wachstumsebene im Vergleich zur Wachstumsrichtung z. Damit nimmt der Polarisationsgrad P ab. Je größer die Inseln sind, d.h. je elongierter sie in [1-10]-Richtung sind, desto schwächer ist das emittierte Licht in z-Richtung polarisiert. Es kommt zu einem Richtungswechsel der Polarisation von TM nach TE, was sich in den Spektren als negative Polarisationsgrade widerspiegelt. Der Dreifachstapel ist zu 20 % TE-polarisiert, siehe Pfeile in Abbildung 4.38.

Eine schematische Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse aus den Polarisationsmessungen aus der Spaltkante und eine Verdeutlichung der Geometrie, ist in Abbildung 4.39 dargestellt. Die Ellipsen deuten die Polarisationsrichtung an. Ein Kreis würde zirkular polarisiertes Licht bedeuten. Beispiel: In [110]-Richtung ist das Licht des Dreifachstapels für die Hochenergieseite, d.h. für die kleineren Inseln TM, also in z-Richtung polarisiert. Für die Niederenergieseite, d.h. für die größeren Inseln dreht sich das Vorzeichen: Man beobachtet TE-Polarisation, der elektrische Feldvektor liegt in der Stapelebene (x, y).

Ähnliche Arbeiten gibt es in der Literatur auf diesem Gebiet recht wenig. Langbein und Mitarbeiter haben In_{0.5}Ga_{0.5}As-QP bis zu zwanzigfach gestapelt und die spektralen Polarisationsgrade in Wachstumsrichtung und in Richtung der Spaltkanten untersucht [Yu99]. Sie erkannten, dass für InAs-QP die oberste Insellage eines Dreifachstapels im Oberlächen-TEM eine leichte Elongation in [1-10]-Richtung aufweisen. Dieser Effekt verstärkt sich durch Mehrfach-Stapelung erheblich. Der maximale Polarisationsgrad des emittierten Lichtes aus der Oberfläche eines Zwanzigfach-QP-Stapels wurde mit 70 % angegeben. Dabei wird die verspannungsinduzierte Kopplung von Stapellage zu Stapellage als Grund dafür genannt, dass die Elongation der QP in [1-10]-Richtung immer mehr zunimmt und damit auch der Polarisationsgrad in diese Richtung. Im Gegensatz zum Zehnfach-Stapel konnte bei dem Zwanzigfach-Stapel ein Vorzeichenwechsel der sonst üblichen TE-Polarisation in TM-Polarisation auf der (1-10)-Spaltkante gemessen werden. In diesem Materialsystem InAs/GaAs ist also der Effekt viel schwächer als in unserem System. Auch hier wurde die stärkste Polarisation in Wachstumsrichtung in der (1-10)-Kante und für die Niederenergieseite der QP-Lumineszenz gemessen. Die Autoren sprechen ebenfalls von einer Elongation der elektronischen Zustände in z-Richtung, welche zu einem in z-Richtung elongierten "Quantendraht"-Zustand führt. Der Polarisationsgrad des untersten gebundenen Zustandes ist also immer in Richtung des schwächsten Ladungsträgereinschlusses maximal.



Abbildung 4.39 Modell zur Deutung der Abbildung 4.38. Von oben nach unten: Einzel-QP-Schicht, Zweifachstapel, Dreifachstapel. Die Inseln sind in [1-10]-Richtung elongiert und auf der (1-10)-Spaltkante sind die "Kopfenden" der Inseln zu sehen. Die roten Ringe geben qualitativ den Polarisationsgrad P in den beiden Spaltkanten an. Ein kreisrunder Ring bedeutet keine Vorzugsrichtung.

4.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden InP-QP mit Wachstumsraten von 0,5 ML/s und 0,01 ML/s bei verschiedenen Wachstumstemperaturen mittels MBE hergestellt und charakterisiert. Anhand von AFM-Messungen an nicht-überwachsenen Inseln konnte festgestellt werden, dass die QP in diesem Materialsystem in die Kristallrichtung [1-10] stark ausgedehnt sind. Anhand von optischen Untersuchungen konnte neben der geometrischen Anisotropie auch eine starke optische Anisotropie nachgewiesen werden.

Durch dichte Stapelung der QP wird eine Homogenisierung der Größenverteilung beobachtet [Zun97]. Um die für Laseranwendungen optimale Stapelkonfiguration zu finden, wurden Einfach-QP-Schichten, Doppelschichten und Dreifachschichten mit jeweils unterschiedlich dicken GaInP-Zwischenschichten hergestellt und die spontanen Photolumineszenz-Spektren gemessen. Mit Hilfe von Magnetolumineszenzmessungen ist es möglich gewesen, Aussagen über die Ausdehnung der Wellenfunktionen von den Elektronen und Löchern an den verschiedenen Quantenpunktstapeln zu treffen. Die gemessenen diamagnetischen Verschiebungen der PL-Energielagen liefern die Exzitonenmasse und -radius. Es stellte sich heraus, dass sich die Löcherwellenfunktion im dicht gestapelten Dreifach-QP-Stapel in Wachstumsrichtung über den gesamten Stapel erstreckt, während die Elektronen in die obersten QP-Lage tunneln, weil sich hier aufgrund der vertikalen Stapelung die größten Inseln mit dem stärksten Lokalisierungspotential befinden. Das heißt, dass bei einem dichtgestapelten InP-QP-Stapel an der Grenzschicht zwischen den QP und der Zwischenschicht GaInP ein Typ-II-Heteroübergang vorliegt. Das konnte durch anregungsabhängige PL-Messungen an einer Einzelschicht und einer Dreifachschicht von InP-QP nachgewiesen werden: Während sich die Emissionsenergie der Einzelschicht mit zunehmender Anregungsleistung nicht ändert, zeigt die PL-Energie des Dreifachstapels eine Blauverschiebung.

InP/GaInP-QP sind geometrisch anisotrop und emittieren Licht mit Polarisationsrichtung in die Richtung ihrer Ausdehnung ([1-10]). Stapeln der Punkte mit dünnen Zwischenschichten führt durch Verspannungskopplung zu einer Verstärkung der Elongation der Inseln in [1-10]-Richtung und damit zu Polarisationsgraden bis zu 60 % in [001]. Die Frage, ob die Inseln sich nur deshalb optisch so anisotrop verhalten, weil sie in einem hoch anisotropen Material wie GaInP eingebettet sind, konnte zusätzlich noch dadurch entkräftet werden, dass nachgewiesen werden konnte, dass dünne, kompressiv verspannte Quantenfilme in GaInP nahezu isotropes Licht emittieren. Das heißt, dass das optische Verhalten des Puffers nicht zwangsläufig zu demselben Verhalten des in ihm eingebetteten Quantensystems führt. Das Polarisationsverhalten hängt ganz stark von den mikroskopischen Gegebenheiten an den Grenzflächen des Quantensystems ab.

Das aus den Spaltkanten emittierte Licht der QP ist in [1-10]-Richtung stark TMpolarisiert, in [110]-Richtung sehr viel schwächer und bei einem Dreifachstapel klappt die Polarisationsrichtung um und das Licht ist TE-polarisiert. Diese Effekte können so gedeutet werden, dass die Polarisationsrichtung von der Orientierung der Ladungsträgerwellenfunktion abhängt.

Kapitel 5 Vergleich: InP-Quantenpunktlaser und GaInP-Quantenfilmlaser

Im folgenden Kapitel wird der Quantenpunkt- (QP) und Quantenfilm- (QF) Laser vorgestellt und in Abschnitt 5.4 miteinander verglichen. Nach einer kurzen theoretischen Einführung niederdimensionaler Laserstrukturen und einem kurzen Abriss über die in diesem Zusammenhang wichtigsten schon in der Literatur vorgestellten QP-Laser, wird in den Abschnitten 5.1.3 und 5.1.5 die prinzipielle MBE-Schichtstruktur und die Prozessierung dieser zu Breitstreifen-Laserbautelementen vorgestellt. Es folgt ein Abschnitt über Lasercharakteristika bei Raumtemperatur wie Schwellstromdichte, Quantenausbeute, interne Verluste usw. Danach befassen wir uns mit der Temperaturabhängigkeit einiger Laserparameter von QP- und QF-Lasern. Das Teilkapitel 5.1 wird abgerundet durch eine Untersuchung der Modenstruktur des Elektrolumineszenzspektrums eines QP- und eines QF-Lasers und Auswertung nach der spektralen optischen Verstärkung nach der Methode von Hakki und Paoli.

5.1 Niederdimensionale Laserstrukturen

Mitte der 70er Jahre wurde der Quantenfilmlaser eingeführt und wurde seit Beginn der 90er Jahre zum Standardprodukt der Halbleiterindustrie. Möglich geworden ist das durch die ständige Verbesserung der Materialeigenschaften durch MBE- und MOVPE-Wachstumsoptimierungen. Für die Verwendung von QP als aktives Material anstatt von höherdimensionalen Strukturen wie z.B. QF sind beeindruckende Eigenschaften vorhergesagt worden, was die Forschung stimulierte, diese Effekte experimentell zu realisieren und daraus u.a. optische Bauelemente herzustellen.

Welche theoretischen Voraussagen die QP so attraktiv machen, soll im folgenden Abschnitt erläutert werden.

5.1.1 Theorie niederdimensionaler Laserstrukturen

Wenn die Abmessungen von Halbleiterstrukturen in einer oder mehreren Dimensionen so klein werden, daß sich grundlegend veränderte elektronische Eigenschaften ergeben, dann spricht man von niedrigdimensionalen Systemen. Eine typische Größe für den Übergang von makroskopischer klassischer Physik zu mikroskopischen Quanteneffekten ist die de-Broglie-Wellenlänge bei einer Teilchenenergie $E = k_BT$:

1

mit *h* Plancksche Konstante, m_{eff} effektive Masse der Ladungsträger, k_B Boltzmann-Konstante und *T* die Temperatur.

Bei T = 300 K ergibt sich beispielsweise für InP eine de-Broglie-Wellenlänge von ca. 30 nm für die Elektronen und ca. 10 nm für die schweren Löcher. Die Ladungsträger erfahren in ihrer Bewegung, die im Volumenmaterial frei ist eine Einschränkung, wenn die Dimension wenigstens in eine Richtung die Strukturgröße der de-Broglie-Wellenlänge aufweist.

Bedingt durch die auf eine/mehrere Raumrichtungen eingeschlossene Wellenfunktion der Ladungsträger und die daraus resultierenden diskreten Energieeigenwerte verändert sich die entsprechende Zustandsdichte. Im isotropen 3D-Volumenkristall eines Halbleiters gilt für die Energie der Elektronen, die sich wie freie Teilchen mit einer effektiven Masse m_{eff} bewegen können:

$$E^{3D} = E_{kin}^{3D} = \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_{eff}} \left(k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 \right)$$
 Gleichung 5.2

mit den Wellenvektorkomponenten k_x , k_y , k_z für die einzelnen Raumrichtungen x, y, z.

Reduziert man die Bewegung der Elektronen in einer Raumrichtung (hier: z-Richtung) auf eine wenige Nanometer lange Strecke L_z , dann erhält man als Lösung des quantenmechanischen Potentialtopfproblems die folgenden diskreten Energieeigenwerte für den **2D-Quantenfilm (QF)**:

$$E^{2D} = E_{kin}^{2D} + E_z = \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_{eff}} \left(k_x^2 + k_y^2\right) + E_z$$
 Gleichung 5.3
mit $E_z = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2 \cdot m_{eff}} \left(\frac{l}{L_z}\right)^2$, mit der ganzzahligen Quantenzahl $l = 1, 2, 3...$

Für unendlich hohe Wände des Potentialtopfes ist das Energieeigenwertproblem für die einzelnen Raumrichtungen entkoppelt. Dies gilt näherungsweise auch für endlich hohe Potentialtöpfe, so daß die einzelnen Raumrichtungen nach dem Superpositionsprinzip getrennt betrachtet werden können. Die Gesamtenergie der in einer Raumrichtung eingeschränkten Elektronen kann dann als Summe der Beiträge der einzelnen Richtungen geschrieben werden.

Wird die Bewegung der Elektronen in einer weiteren Raumrichtung (hier: y-Richtung) auf die sehr kleine Länge L_y eingeschränkt, so ergibt sich für die Gesamtenergie des **1D-Quantendrahtes (QDR):**

$$E^{1D} = E_{kin}^{1D} + E_z = \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_{eff}} (k_x^2) + E_{y,z}$$
 Gleichung 5.4
mit $E_{y,z} = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2 \cdot m_{eff}} \left[\left(\frac{l}{L_z} \right)^2 + \left(\frac{m}{L_y} \right)^2 \right]$, mit der ganzzahligen Quantenzahl $m = 1, 2, 3...$

mit l als ganzzahliger Quantenzahl der Zustände in y-Richtung.

Durch die Verkleinerung des letzten Raumrichtung L_x wird ein **0D-Quantenpunkt** (**QP**) verwirklicht, für dessen Dispersionsrelation gilt:

$$E^{0D} = E_z$$
 Gleichung 5.5,

Gleichung 5.6

wobei gilt:
$$E_z = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2 \cdot m_{eff}} \left[\left(\frac{l}{L_z} \right)^2 + \left(\frac{m}{L_y} \right)^2 + \left(\frac{n}{L_x} \right)^2 \right],$$

mit der ganzzahligen Quantenzahl n = 1, 2, 3...

Für die Quantenpunkte sind die Energieeigenwerte in jeder Raumrichtung vorgegeben, so daß man auch von "künstlichen Halbleiteratomen" mit diskreten Energieniveaus sprechen kann.

Die schrittweise zunehmende Diskretisierung der Energieeigenwerte mit abnehmender Dimensionalität wirkt sich auch auf die Zustandsdichte $\rho(E)$ der niedrigdimensionalen Systeme aus. Die Zustandsdichte, die die Gesamtzahl der besetzbaren Energieniveaus im Energieintervall $[E, E+\delta E]$ angibt, hat für das uneingeschränkte 3D-Volumenmaterial einen wurzelförmigen Verlauf (**3D-Volumenmaterial**):

Durch die Einschränkung der Elektronenbewegung ergeben sich die folgenden Zustandsdichten für **2D-Quantenfilme**:

$$\rho^{2D}(E) = \sum_{n} \frac{m_{eff}}{\pi \hbar^2 L_z} \Theta(E - E_z(l))$$
 Gleichung 5.8

mit $\Theta(x) = 0$ für x < 0 und $\Theta(x) = 1$ für $x \ge 0$ (Heaviside Sprungfunktion).

1D-Quantendrähte:

$$\rho^{1D} = \sum_{n,l} \frac{1}{\pi L_y L_z} \left(\frac{m_{eff}}{2\hbar^2} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{1}{\sqrt{E - E_y(m) - E_z(l)}}$$
Gleichung 5.9

0D-Quantenpunkte:

$$\rho^{0D} = \sum_{l,m,n} \frac{1}{L_x \cdot L_y \cdot L_z} \delta(E - E_x(n) - E_y(m) - E_z(l))$$
 Gleichung 5.10,

mit der Deltafunktion $\delta(E)$.



Abbildung 5.1 Zustandsdichte $\rho(E)$ für verschiedene Dimensionen [Ara82].

In Abbildung 5.1 sind die Zustandsdichten des Volumenmaterials und der niederdimensionalen Strukturen anschaulich dargestellt. Die Zustandsdichte ändert sich dabei vom wurzelförmigen Verlauf für das Volumenmaterial zu einem stufenförmigen Verlauf mit sprunghaftem Anstieg bei den Energieniveaus E_l des in z-Richtung eingeschränkten Quantenfilms. Für den in y- und z-Richtung eingeschränkten Quantendraht finden wir bei den Energien $E_{l,m}$ Singularitäten der Zustandsdichte. Die Zustandsdichte bei den Quantenpunkten ist diskret und besteht aus Deltafunktionen für die Energiewerte $E_{l,m,n}$. Betrachtet man die jeweiligen Grundzustandsniveaus (l = m = n = 1), so findet man mit zunehmendem Ladungsträgereinschluss eine Verschiebung des Zustandes niedrigster Energie, d.h. dem Grundzustand, zu höheren Energien. Ein weiterer wichtiger Effekt ist der, daß mit abnehmender Dimensionalität die Zustandsdichte des Grundzustandes deutlich zunimmt und für die Quantenpunkte unendlich groß wird.

Während man für InAs-QP die Diskretisierung der Zustände sehr einfach z.B. mittels Elektrolumineszenz nachweisen kann [Lip00], kann der Nachweis für InP-QP nicht geführt werden. Extrapolation von Bandstrukturrechnungen für kompressiv verspannte, MBE-typisch kleine InP-QP (h < 10 nm), angelehnt an die Berechnungen von Pryor *et al.* [Rie02], haben ergeben, dass Inseln mit h < 5 nm nur ein gebundenes Niveau aufweisen. Für höhere Inseln ($h \ge 8$ nm) beträgt der energetische Abstand im Leitungsband zum ersten angeregten Zustand nach dieser Abschätzung (40-50) meV. Die Interpretation der leistungsabhängigen PL-Messungen an InP-QP/GaInP ist, wie wir in Abschnitt 4.3.2.5 gesehen haben, nicht trivial, u.a. auch deshalb, weil die Inselinhomogenität und dichte größer ist als bei den InAs-QP. Somit wird beispielsweise der Verstärkung g, welche direkt mit der Zustandsdichte $\rho(E)$ im Zusammenhang steht, ein um mindestens einen Faktor 10 größerer Wert für einen QP-Laser zugeschrieben als für einen Volumenkristall-Laser [Ara82]. Ebenso wird theoretisch vorausgesagt, dass die differentielle Verstärkung dg/dn (n: Ladungsträgerdichte), also der Zuwachs der Verstärkung mit zunehmender Ladungsträgeranzahl, erhöht wird [Asa86]. Asada *et al.* [Asa86] haben die Verstärkungsspektren von niederdimensionalen Strukturen ohne Berücksichtigung inhomogener Verbreiterung miteinander verglichen: Die Verstärkung eines Volumenkristalls, eines 10 nm dicken Quantenfilms, eines (10×10) nm² Quantendrahtes mit quadratischem Querschnitt und von (10×10×10) nm³ QP aus GaInAs/InP-Material, siehe Abbildung 5.2.

Gleichzeitig mit der Verschmälerung der Verstärkungsspektren mit abnehmender Dimensionalität der Zustandsdichte, wächst das Verstärkungsmaximum.



Abbildung 5.2 Theoretisch berechnete optische Verstärkungsspektren für Strukturen unterschiedlicher Dimensionalität [Asa86].

Verspannt man niederdimensionale Strukturen¹⁸, so wurde theoretisch vorausgesagt, dass man die Verstärkung und deren Ableitung noch weiter erhöhen kann [Yam93]. Wie wir aus Kapitel 4 wissen, ändern sich die Energiebänder durch den Einfluss von biaxialer Verspannung (kompressiv und tensil). Das bezieht sich auf die Änderung der effektiven Masse verschiedener Subbänder und relativer Bandverschiebungen. So bewirkt beispielsweise eine kompressive Verspannung einer QF-Laserstruktur eine Reduzierung

¹⁸ abgesehen von QP

der schweren Valenzbandmasse in Wachstumsrichtung¹⁹. Das hat zur Folge, dass die für die Besetzungsinversion benötigte Ladungsträgerdichte aufgrund der stärkeren Krümmung des Valenzbandes reduziert wird und somit kann sich die Schwellstromdichte reduzieren, siehe Abschnitt 5.3 zur genaueren Erläuterung.

Die Herabsetzung der Dimensionalität der Strukturen kann aber auch Nachteile haben. Die eben angesprochene Verstärkung ist die materielle Verstärkung g_{mat} . Sie unterscheidet sich von der modalen Verstärkung g_{mod} um einen Faktor Γ , dem "optischen Füllfaktor", welcher in Kapitel 5.1.4 definiert wird. Da die optische Welle bei niederdimensionalen Laserstrukturen eine größere Ausdehnung als die mikroskopische Quantenstruktur hat, kann nur der Bruchteil Γ in das niederdimensionale optisch aktive Medium eingeschlossen werden. Diesen Nachteil versucht man durch geeignete Wahl der Laserwellenleiterstruktur oder durch Erhöhung des aktiven Volumens wieder wett zu machen [Schm96], siehe Abschnitt 5.1.4.

Die oben genannten Eigenschaften der Zustandsdichte der Quantenpunkte liefern also theoretischen Voraussagen zufolge zusammengefasst folgende verbesserte Lasereigenschaften:

- hohe Materialverstärkung
- niedrige Schwellstromdichten
- eine scharf definierte Emissionsenergie
- geringe (idealerweise keine) Temperaturabhängigkeit des Schwellstromes
- verbesserte dynamische Eigenschaften wie "Chirp-freien Betrieb" [Koc86]
- Unabhängigkeit von Punktdefekten am Übergang zwischen aktivem Material und Bautelement-Substrat. Letzteres ist vorteilhaft für die Verwirklichung von z. B. einer QP-Diode auf Silizium, wie wir in Kapitel 5.1.4 sehen werden.

Abbildung 5.3 zeigt ein numerisches Beispiel zur Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichten von Laserdioden mit Strukturen unterschiedlicher Dimensionalität. Als quantitatives Maß für diese Temperaturabhängigkeit wird die charakteristische Temperatur T_0 bei einer absoluten Temperatur von 0° C angegeben. T_0 bestimmt man gemäß der folgenden Gleichung: $j_{thr}(T) = j_{thr}(0) \exp(T/T_0)$

 T_0 nimmt mit abnehmender Dimensionalität der laseraktiven Strukturen stark zu. Für QP-Laser wurde eine unendliche charakteristische Temperatur berechnet, d.h. die Laserschwelle ist für diese Art von Lasern – theoretisch – völlig temperaturunabhängig.

¹⁹ oder in die Richtung der größten Ordnung wie z. B. beim GaInP, siehe Kapitel 4.



Abbildung 5.3 Berechnungsbeispiel für die Temperaturabhängigkeit des Schwellstroms für Strukturen verschiedener Dimensionalität: (a) 3D-Volumenmaterial, (b) 2D-Quantenfilm, (c) 1D-Quantendraht, (d) 0D-Quantenpunkt [Ara82].

5.1.2 Historische Motivation

Die ersten Quantenpunktlaser wurden ab Ende der 80er Jahre hergestellt, wobei die Strukturierung der QP mittels lithographischer Methoden erfolgte. So wurden eine In_{0,33}Ga_{0,67}As-Schicht elektronen-lithographisch auf eine MOVPE-gewachsene In-GaAsP/InP-Schicht gebracht und anschließend nasschemisch geätzt und danach wieder überwachsen. Diese QP-Laser emittierten bei 1,26 μ m bei 77 K und hatten Schwellstromdichten von 7,6 kA/cm², was hauptsächlich auf prozessinduzierte Störungen der Strukturen zurückzuführen ist [Hir94].

1994 wurde von Kirstaedter und Mitarbeitern der erste Quantenpunktlaser mit selbst-organisierten Quantenpunkten vorgestellt. Das Bauelement wies bei 77 K bei einer Emissionswellenlänge von 942 nm eine Schwellstromdichte von 120 A/cm² und 950 A/cm² bei RT auf [Kir94]. Die damals noch recht hohe Temperaturabhängigkeit der Schwelle war vor allem eine Folge des geringen Ladungsträgereinschlusses durch die hohe Quantisierungsenergie kleiner QP. Die charakteristische Temperatur T_0 wurde bei Temperaturen zwischen 150 K und RT mit 120 K beziffert.

Um den geringen optischen Füllfaktor Γ (engl.: confinement factor) (Definition, siehe Abschnitt 5.1.4) einer Einzel-QP-Schicht zu erhöhen und um die Ladungsträgerdichte an der Schwelle abzusenken, wurden 1996 erstmals elektronisch gekoppelte vertikal gestapelte QP-Schichten entwickelt, [Schm96] und folgende Arbeiten [Ust97], [Sho97].

In den letzten Jahren wurden im Wesentlichen die Eigenschaften wie Ladungsträgereinschluss, Homogenität und Kristallqualität so stark verbessert, dass man heute mit InGaAs/GaAs-QP Rekordschwellstromdichten von 19 A/cm² bei $\lambda = 1,3 \mu m$ erreichen kann [Gyo00].

Im Bereich der rot-emittierenden Laser konkurrieren GaxIn_{1-x}P/AlGaInP-QF-Laser mit den Al_xGa_{1-x}As/GaAs-QF-Lasern. Die Weiterentwicklung von der Doppelheterostruktur zum Ouantenfilmlaser hat bei letzteren eine stärkere Reduzierung der Schwellstromdichte bewirkt im Vergleich zu den Lasern im Phosphorsystem. Wir haben es bei den Phosphorlasern mit einem Material höherer Bandlücke und höherer effektiver Masse zu tun. Die effektive Valenzbandmasse der Löcher im hh-Band ist für GaInP um einen Faktor 2,6 größer, für das Ih-Band um 1,6 und das Massenverhältnis der Elektronen nur um einen Faktor 1,4 [Lan82]. Das bewirkt, dass die Zustandsdichte der Ladungsträger an der Valenz-Bandkante im P-System größer ist, also mehr Ladungsträger gepumpt werden müssen, um Transparenz zu erreichen. Wegen der größeren effektiven Masse sind die Energieabstände zwischen den Subbändern kleiner, so dass die Ladungsträger z.B. im Grundzustand nicht so stark lokalisiert sind und somit durch thermische Anregung zu höheren Subbändern angeregt werden können. Das wiederum erhöht die erforderliche Transparenz-Ladungsträgerdichte und erhöht die Temperatursensibilität der Schwellstromdichte [Zor93]. Wenngleich gilt, dass die sog. "reduzierte Zustandsdichte", d.h. das Verhältnis der für strahlende Rekombination zur Verfügung stehenden Ladungsträger im Leitungs- und Valenzband, im GaInP-System optimaler ist als im GaAs-System, d.h. eine pauschale Voraussage basierend auf diesen Daten unmöglich ist.

P-dotierte AlGaInP-Schichten, insbesondere mit hohem Aluminium-Anteil, zeichnen sich durch eine ausgesprochen schlechte elektrische Leitfähigkeit im Vergleich zu AlGaAs-Schichten aus [Bou94]. Die Folge ist, dass sich über der optisch aktiven Schicht eine hohe interne Spannung aufbaut, welche die schwach lokalisierten Elektronen ("leaky electrons") in Richtung *p*-Kontakt driften läßt. Das erhöht den Schwellstrom und trägt bei den phosphorhaltigen Lasern zu der starken Temperaturabhängigkeit der Schwellströme bei.

Die besten unverspannten Ga_{0,5}In_{0,5}P/AlGaInP-QF-Laser haben typischerweise Schwellstromdichten in der Größenordnung von 250 A/cm². Durch kompressive Verspannung kann der oben besprochene Effekt der schwachen Ladungsträger-lokalisation durch Bändermischung verbessert werden. Man konnte mittels MOVPE für einen In-Gehalt x = 0,6 und einer optimierten QF-Dicke von 8 nm und CW (engl.: continous wave) bei RT Schwellstromdichten von nur 175 A/cm² erreichen. Die externe Quantenausbeute beträgt $\mu_{ext} = 75$ %, d.h. die interne Quantenausbeute beträgt annähernd 100 %. Die maximale Ausgangsleistung bei ca. 1,5 A Strom beträgt 1,8 W [Bou94]. Die mittels MBE-gewachsenen QF-Laser besitzen vergleichsweise etwas schlechtere Kenndaten. Das kann in der sehr viel niedrigeren Wachstumstemperatur bei SSMBE liegen, was sich insbesondere beim Wachstum von quaternären Schichten negativ auswirkt, weil das System bei dem Zusammenspiel von vier Zellenflüssen dazu neigt, Defekte auszubilden [Jal97], [Zun99a]. Für einen 7 nm dicken Ga_{0,4}In_{0,6}P-QF-Laser mit GRINSCH-Struktur (engl.: graded index seperate confinement heterostructure), eingebettet in eine $(Al_{0,6}Ga_{0,4})_{0,53}In_{0,47}P$ -Schicht, erhält man unter gepulsten Messbedingungen bei RT beste Schwellstromdichten von 490 A/cm² für ein 2,5 mm langes Bauteil (ohne Spiegelbeschichtung) und eine charakteristische Temperatur $T_0 = 100$ K. Die interne Quantenausbeute wird mit 75 % beziffert. Diese Laserdaten konnten erst nach einer ex-situ RTA-Behandlung erzielt werden. Ohne RTA war die Schwellstromdichte für z.B. ein 1 mm langer Laserresonator dreifach so hoch [Jal97].

Der Beginn der Geschichte der roten QP-Laser wurde 1995 in Stuttgart geschrieben: Ein optisch gepumpter Einzellagenlaser aus 3,0 ML InP-Quantenpunkten in $Ga_{0,52}In_{0,48}P$ zeigte stimulierte Emission unter optischer Anregung bei RT mit einer optischen Leistung von 25 kW/cm² an der Schwelle [Kur96], [Mor96].

Aber auch im As-System wurden QP-Laser hergestellt, welche im roten Wellenlängenbereich emittieren: Im Jahr 1996 stellten Fafard *et al.* ihren QP-Laser aus 4,5 ML Al_{0,36}In_{0,64}As/Al_{0,25}Ga_{0,75}As vor [Faf96]. Er zeigte Lasen bei 77 K bei einer Schwellstromdichte von 700 A/cm² (Kavitätslänge 0,4 mm). Vier Jahre später erreichten sie Lasertätigkeit bei RT, bei einer Schwelle von 4,5 kA/cm² und einem $T_0 = 50$ K [Hin00]. Allerdings konnte kein Grundzustandslasen erreicht werden, d.h. nur die angeregten QP-Niveaus zeigten stimulierte Emission.

Ein grundsätzliches Problem bei diesem Materialsystem aus Sicht des MBE-Wachstums ergibt sich daraus, daß man die Strukturen, um Diffusionsprozesse und Desorptionsprozesse des Indiums beim Wachsen der QP zu vermeiden, bei recht niedrigen Substrattemperaturen von ca. T_{ox} - 100 °C wachsen muss²⁰. Das optimale Wachstumsfenster für Al_xGa_{1-x}As liegt aber bei entweder T_{ox} oder bei ca. T_{ox} + 80 °C [Ale85]. Damit ist die Kristallqualität des Wellenleiters nicht optimal und das führt zu Bildung von Defekten, die nichtstrahlende Zentren ausbilden und somit den optischen Verlust und damit die Schwelle erhöhen.

Die InP-QP-Laser zeigten 1998 erstmals stimulierte Emission durch elektrisches Pumpen. Ein Dreifach-QP-Stapel mit 3,0 ML InP-QP hatte bei 90 K eine Schwellstromdichte von 172 A/cm² [Zun98]. Heute funktionieren diese Laser bei RT mit Schwellstromdichten von 1,8 kA/cm² (Resonatorlänge L = 2 mm) [Man00].

In den folgenden Abschnitten wird der InP-QP-Laser vorgestellt und verglichen mit den bisher entstandenen niederdimensionalen Lasern (QP-, QF-Laser) in diesem Materialsystem. Ein fairer Vergleich ist natürlich nur möglich, wenn man Laser mit denselben Rahmenbedingungen wählt. Da der direkte Vergleich eines InP-QP-Lasers mit einem GaInP-QF-Laser mit den gleichen ternären Wellenleitern/ Mantelschichten, gewachsen in *derselben Wachstumskammer unter denselben Wachstumsbedingungen* in der Literatur noch fehlt, soll das in den folgenden Abschnitten geschehen.

 $^{^{20}}$ T_{ox} ist die Deoxidationstemperatur. Die Defintion wird in Abschnitt 4.1 gegeben.

5.1.3 Prinzipieller Aufbau

Die MBE-gewachsene Separate Confinement Heterostructure (SCH) Laserstruktur besteht aus mehreren Einzelschichten, die jede separat optimiert werden muss und die in der Querschnitts-Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM)-Aufnahme der Abbildung 5.4 deutlich zu sehen sind. Die Tabelle 5.1 zeigt eine detailliertere Gliederung einer solchen typischen Laserstruktur. Als Substrat wird ein mit Tellur (Te) dotierter GaAs (001) Wafer ($n = 3 \times 10^{18}$ cm⁻³) verwendet. Die Epischicht besteht aus einem Dreifachstapel aus ca. 3 ML InP-QP, die in eine 120 nm dicke Wellenleiterschicht²¹ aus Ga_{0,52}In_{0,48}P eingebettet sind, welche sich wiederum in je 1 µm dicken dotierten Al_{0,53}In_{0,47}P-Mantelschichten befindet. Diese Mantelschichtdicke garantiert, dass die geführte optische Mode nicht bis in das GaAs-Substrat verschmiert ist [Mor97]. Die hochdotierte GaAs-Deckschicht ermöglicht eine ohmsche Kontaktierung der Laser und schützt die Al-haltige Mantelschicht vor Oxidation.



GaAs n⁺ substrate

Abbildung 5.4 Transmissions-Elektronen-Aufnahme (TEM) einer MBE-Laserstruktur mit $3 \times 3,3$ ML InP-Quantenpunkten im Querschnitt [Zun99a].

²¹ Die Wellenleiterdicke ist so gewählt, dass die optischen Verluste durch Überlappung der geführten optischen Mode in die benachbarten Mantelschichten möglichst gering sind, siehe folgenden Abschnitt.

120 nm GaAs-Deckschicht $p = 3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$			
650 nm Al _{0,53} In _{0,47} P-Mantelschicht $n = 2 \times 10^{18}$ cm ⁻³			
550 nm (Al _{0,1} Ga _{0,9}) _{0,53} In _{0,47} P-Mantelschicht $p = 2 \times 10^{18}$ cm ⁻³			
250 nm (Al _{0,1} Ga _{0,9}) _{0,53} In _{0,47} P-Mantelschicht $p = 1 \times 10^{18}$ cm ⁻³			
200 nm Al _{0,53} In _{0,47} P-Mantelschicht undotiert			
60 nm Ga _{0,52} In _{0,48} P-Wellenleiter undotiert			
$3 \times (3,3 \text{ ML InP-QP mit 4 nm Zwischenschicht Ga}_{0,52}\text{In}_{0,48}\text{P})$			
60 nm Ga _{0,52} In _{0,48} P-Wellenleiter undotiert			
350 nm Al _{0,53} In _{0,47} P-Mantelschicht $n = 7 \times 10^{17}$ cm ⁻³			
200 nm GaAs-Pufferschicht $n = 3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$			
n^+ GaAs-Substrat (001)			

Tabelle 5.1 Gliederung einer typischen MBE-Quantenpunkt-Laserstruktur.

Tabelle 5.2 und Tabelle 5.3 zeigen die elektrische Eigenschaften der dotierten Mantelschichten bei gegebenen Dotierzellentemperaturen. Um die Mantelschichten in unmittelbarer Nähe zum Wellenleiter schwächer zu dotieren, wird die Si-Zellentemperatur von 1100 °C um 30 K abgesenkt und die *p*-Dotierung nach dem 200 nm dicken undotierten AlInP-Puffer erst langsam erhöht. Mit einer Be-Temperatur von 840 °C erreicht man eine maximale effektive Ladungsträgerdichte von 2×10^{18} cm⁻³.

T_{Si} (°C)	$n ({\rm cm}^{-3})$	$\mu (\text{cm}^2/\text{Vs})$
1100	$1.5 \times 10^{-18} \text{ cm}^{-3}$	30
1070	$7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$	50

Tabelle 5.2 Typische Dotierung mit Silizium einer $Al_{0,53}In_{0,47}P$ -Mantelschicht bei einer Wachstumsrate von 1,0 ML/s bei Raumtemperatur.

T_{Be} (°C)	$p ({\rm cm}^{-3})$	$\mu (\text{cm}^2/\text{Vs})$
820	$1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$	7.5
840	$2 \times 10^{-18} \text{ cm}^{-3}$	11

Tabelle 5.3 Typische Dotierung mit Berillium einer $(Al_{0,1}Ga_{0,9})_{0,53}In_{0,47}P$ -Mantelschicht bei einer Wachstumsrate von 1,0 ML/s bei Raumtemperatur.

Berillium (Be) ist ein für AlInP-Schichten gern verwendetes *p*-Dotiermaterial, weil es für dieses Materialsystem keine Kompensationseffekte wie vergleichsweise Kohlenstoff aufweist. Allerdings erweist sich die starke Diffusionstendenz sowie das Auftreten von Kristallfehlern bei der Dotierung mit Be (Stapelfehler, Be-Prezipitate, Be-Segregation an der Oberfläche und daraus resultierende Degradation der Oberflächenmorphologie) bei hohen Dotierstoffkonzentrationen als sehr störend [Duh81], [Ham89]. Gerade im Phosphorsystem muss man das Dotierangebot sehr hoch ansetzen, weil die Einbaueffizienz, die wir mittels SIMS-Messungen bestimmen können, hier im Vergleich zum Arsensystem mit (10-30) % sehr niedrig ist. Und gerade wegen der hohen Diffusionsfreudigkeit muss in der Laserstruktur deshalb eine relativ dicke undotierte AlInP-Pufferschicht oberhalb des Wellenleiters eingefügt werden, um zu verhindern, dass Be-Atome in die optisch aktive Schicht gelangen.

Die tiefe Wachstumstemperatur der Mantelschichten ist ein Grund für das Auftreten von Punktdefekten und für die relativ niedrige Effektivität des Dotierstoffeinbaus in das Kristallgitter. Die schnelle Temperung (RTA, engl.: rapid thermal annealing) nach dem Wachstumsprozess ex situ heilt Punktdefekte aus und erhöht die Einbaueffizienz der Dotieratome von den Zwischengitterplätzen auf Gitterplätze. Ein auf die InP-QP-Laserstrukturen optimierter Prozess ist die Temperung mit Zweistufenprozess: Die Epischicht wird für 30 s auf 500 °C und dann für 1 s auf 750 °C erhitzt. Danach wird sie so schnell wie möglich abgekühlt. Dieses Verfahren bildet einen Kompromiss zwischen dem optimalen Ausheileffekt der Gitterfehler und Aktivierung der Dotieratome und dem Indiumdiffusionsprozess, der die Form und damit die optischen Eigenschaften der InP QP zerstört.

Die Eindringtiefe der Be-dotierten AlInP-Zone vergrößert sich durch den RTA-Prozess von ca. 100 nm auf 200 nm in Richtung Wellenleiterschicht, so dass die undotierte AlInP-Schichtdicke direkt oberhalb des Wellenleiters von ca. 200 nm sicherstellt, dass die optisch aktive Zone dotierstoff-frei bleibt.

Die schlechten elektrischen Eigenschaften für *n*- und *p*-Dotierung im AlInP erklären sich zum einen durch die hohe Konzentration von Sauerstoff im GaP-Material, zum anderen durch den anfänglich hohen Gehalt an Kohlenstoff-Sauerstoff-Verbindungen nach einer MBE-Kammeröffnung. Man erkennt den Sauerstoff- und Kohlenstoffgehalt an der Intensität für die Massenzahlen 12, 16 und der Kombination aus beiden im Massenspektrum. Auffällig hoch ist das Signal bei der Masse 28 nach einer Öffnung, was auf einen hohen Gehalt an Kohlenmonoxid (CO) schließen läßt. Im besonderen bei Alhaltigen Verbindungen entstehen tiefe Störstellen durch Bildung von Aluminium-Sauerstoff-Komplexen (Al-O), welche die Ladungsträger einfangen (engl.: "traps") und sie somit elektrisch inaktiv machen. Während reine GaAs-Schichten eine Hintergrundsdotierung von maximal $p = 5 \times 10^{14}$ cm⁻³ aufweisen sollten, sind Werte von $\le 2 \times 10^{19}$ cm⁻³ in AlGaAs/GaAs-Schichten typisch [Cho93]. Sogar Al- freie InP-Schichten weisen gegenüber den GaAs-Schichten schon Hintergrundsdotierungen von $(2-3) \times 10^{16}$ cm⁻³ auf, was darauf zurückzuführen ist, dass die angegebene Volumenkonzentration an Sauerstoff im GaP-Material vom Hersteller schon mit 1×10^{16} cm⁻³ beziffert wird. Daher ist zu erwarten, dass Al-haltige Phosphorverbindungen ganz besonders empfindlich auf den Sauerstoff-Partialdruck in der Wachstumskammer ist. Wie in der Dissertation von M. Zundel beschrieben, können die in der Tabelle 5.3 gezeigten Werte erst nach einer Betriebszeit der GaP-Zelle von > 70 h erzielt werden. Bei einem Dotierstoffangebot von 1×10^{20} cm⁻³ können schätzungsweise nur 1×10^{19} cm⁻³ Al-O Komplexe elektrisch neutralisiert werden, damit dennoch Überschussladungsträger zur Verfügung stehen können. Bei Be-Zellentemperaturen von > 880 °C beobachtet man im RHEED nach einigen Minuten eine Degradation der (1×2) -Oberflächenrekonstruktion: aus den langen, leicht milchigen Streifen (engl.: Streaks) werden kurze helle Streifen, die sich am Ende zu einem Punktmuster (engl.: "spotty pattern") verwandeln. REM- (Raster-Elektronen-Mikroskop) Aufnahmen bestätigen eine sehr rauhe Oberfläche mit Rauhigquaternären von > 50 nm. Das Wachsen von Mantelschichten keiten (Al_{0.9}Ga_{0.1})_{0.53}In_{0.47}P verbessert die elektrischen Eigenschaften: der Schichtwiderstand kann immerhin um bis zu einem Faktor sechs gesenkt werden, und die gewünschten Dotiereigenschaften können nach einer kürzeren Betriebszeit der GaP-Zelle erreicht werden [Zun99a]. Auf eine Erhöhung des Ga-Gehaltes in den quaternären Mantelschichten ist in dieser Arbeit verzichtet worden, weil damit eine Absenkung des optischen Einschlusses der Laserstruktur einhergeht.

Erst die Verwendung von korngrenzenfreiem (d.h. einkristallinem) GaP-Zellenmaterial brachte eine Reduzierung des Sauerstoffgehaltes um ca. 1,5 Größenordnungen bei unverändertem Kohlenstoffgehalt. In der Abbildung 5.5 sind die Sekundär-Ionen-Massen-Spektroskopie (SIMS) Profile für eine 300 nm dicke AlInP-Schicht, die bei einem Hintergrundsdruck von 3.4×10^{-8} Torr hergestellt wurde, gezeigt.



Abbildung 5.5 SIMS-Analyse einer 300 nm dicken AlInP-Schicht, gewachsen mit einkristallinem GaP-Material.

Man erkennt, dass der Sauerstoff- und Kohlenstoffgehalt an der Grenzfläche Substrat/Epischicht sehr hoch ist. Das liegt am Deoxidationsprozess, welcher vermutlich nicht den gesamten Restsauerstoff von der Oberfläche des fabrikfrischen Wafers entfernen kann. Zudem befinden sich noch organische Reste auf der Oberfläche, die zu diesem SIMS-Signal beitragen kann. Während des Wachstums des GaAs-Puffers mit frischem Material aus den Ga- und As-Zellen verringert sich die Kontaminationskonzentration auf die Nachweisgenauigkeit von 1×10^{17} cm⁻³. In der AlInP-Schicht ist dann das SIMS-Niveau für beide Stoffe konstant und für Sauerstoff etwa eine halbe Größenordnung höher als für Kohlenstoff. An der Grenzfläche zu Luft erhöhen sich die Niveaus wieder aufgrund von Verunreinigungen, die außerhalb der Kammer auf die Oberfläche gelangt sind.

Durch die Verwendung von einkristallinem GaP ist es also möglich geworden, die Be-Zellentemperatur um ca. 60 K abzusenken, um die gleichen Dotierniveaus wie vorher zu erhalten. Der direkte Vergleich zweier Laserstrukturen vor und nach der Befüllung der Zelle mit korngrenzenfreiem GaP liefert die gleiche effektive Ladungsträgerkonzentration von $(5 \times 10^{17} - 1 \times 10^{18})$ cm⁻³ bei gleichzeitiger Reduktion des Be-Zellenflusses von $BEP = 5 \times 10^{-6}$ Torr um einen Faktor 6 auf 8×10^{-7} Torr. Hierbei wurde die Temperatur des Berilliums von 880 °C auf 820 °C herabgesetzt.

Mit gleichzeitiger Erhöhung der Substrattemperatur beim Wachstum von den *p*- und *n*- dotierten AlInP-Schichten, konnte die Kristallqualität verbessert werden, was sich z.B. in der Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichte der Laserstrukturen widerspiegelt und überhaupt erst die Realisierung des Lasers bei RT ermöglicht hat, siehe Abschnitt 5.2.2. Für die GaInP-Wellenleiterschichten haben wir ebenfalls eine Verringerung des Sauerstoffgehaltes von 1,5-2 Größenordnungen auf 1×10^{17} cm⁻³ beobachtet.

Die elektrischen Eigenschaften der Laserdioden bei RT haben sich ebenfalls verbessert: In Abbildung 5.6 sind die Strom-Spannungskennlinien zweier QP-Laser-dioden mit unterschiedlichem GaP-Zellenmaterial und angepaßten Be-Dotierprofilen sowie für den in Abschnitt 5.4 folgenden Vergleich die IU-Kennlinie eines QF-Lasers dargestellt. Dabei handelt es sich bei den Abbildungen auf der linken und rechten Seite um dieselben Abhängigkeiten, jedoch einmal linear und einmal logarithmisch aufgetragen. Zunächst zur linken Seite: Während der Strom bei einer früheren Laserdiode (#91390) bei einer Einsatzspannung von 1,5 V sehr flach exponentiell ansteigt und der serielle Widerstand, bestimmt aus der inversen Steigung der Kennlinie im linearen Teilbereich, ca. 40 Ω beträgt, steigt der Diodenstrom bei den neueren Lasern (z.B. #91766) ab einer Spannung von 1,9 V viel schneller exponentiell an und der typische serielle Widerstand beträgt auch nur noch 3 Ω . Die elektrischen Eigenschaften des QF-Lasers sind dem des neueren QP-Lasers sehr ähnlich. Für die Sperrströme wurden im Fall der alten Laserdiode bei angelegter Sperrspannung von $U_{sperr} = -1V$ ein Sperrstrom von $I_{sperr} = -0.24$ mA gemessen, während bei der neuen Laserdiode nur -0,26 µA fließen. Dieser Sperrstrom erhöht sich auch nicht bei Spannungen von -3 V, siehe Abbildung 5.6.



Abbildung 5.6 Strom-Spannungskennlinie zweier QP-Laserdioden und einer QF-Laserdiode mit unterschiedlichem GaP- Zellenmaterial und angepaßten Be-Dotierprofilen, links linear und rechts logarithmisch aufgetragen. Die Kennlininien wurden bei Dunkelheit gemessen.

Aus der Auftragung auf der rechten Seite kann man den Idealitätsfaktor *n* für die Laserdioden bestimmen, welcher definiert ist als:

$$n = \frac{q}{k_B T} \cdot \frac{\partial U}{\partial(\ln I)}, \text{ mit } n > 1$$
Gleichung 5.11

~ - -

Hierbei ist k_BT die thermische Energie. In allen aufgezeigten Fällen dominiert der Rekombinationsstrom den Generationsstrom, so dass $n \ge 2$ ist [Sze81].

5.1.4 Optischer Füllfaktor

Der optische Füllfaktor Γ gibt das Verhältnis aus Moden-Intensität (Feldstärkequadrat E^2_{mode} für ebene Wellen) in der aktiven Schicht und gesamter Intensität an und entspricht dem Überlapp der optischen Mode mit der aktiven Zone in Wachstumsrichtung.

$$\Gamma = \frac{\int E_{mode}^2 dz}{\int E_{mode}^2 dz}$$

Gleichung 5.12

Dabei ist E der elektrische Feldvektor und z ist die Wachstumsrichtung.



Abbildung 5.7 Brechungsindexprofil n in Abhängigkeit vom Ort z einer typischen QP-Laserstruktur. Die Intensitätsverteilung der geführten Mode im Wellenleiter wurde mittels Transfermatrixmethode berechnet.

Durch den in der Abbildung 5.7 gezeigten Indexverlauf (Daten wurden aus der Tabelle 5.4 entnommen) wird die optische Welle im Zentrum der Laserstruktur geführt. Im Folgenden soll für dieses Materialsystem die Wellenleiterdicke so optimiert werden, dass die Photonendichte in der optisch aktiven Schicht maximal wird. In Abbildung 5.8 ist der optische Füllfaktor Γ für einen Dreifach QP Stapel aus $3 \times 3,7$ ML InP mit je 4 nm Zwischenschichtdicke aus GaInP in Abhängigkeit von der Wellenleiterdicke dargestellt. Die Photonendichte ist für ca. (100 – 120) nm maximal. Bei der Bestimmung des Füllfaktors von QP muss noch die Bedeckung ξ , d.h. die von den QP bedeckte Fläche bezogen auf die gesamte Probenoberfläche, berücksichtigt werden. Man bestimmt also den Füllfaktor $\Gamma^* = \Gamma \times \xi$

Aus den rasterkraftmikroskopischen Oberflächen der Inseln konnte eine mittlere Inselhöhe von ca. 4 nm und eine Bedeckung von $\xi = 15$ % ermittelt werden. Für eine Einzellage QP erhält man ohne Berücksichtigung der Bedeckung $\Gamma = 2,2$ % für einen 120 nm dicken Wellenleiter und $\Gamma^* = 0,35$ % mit Berücksichtigung der Bedeckung. Der Dreifachstapel liefert $\Gamma = 10,2$ % ($\Gamma^* = 1,5$ %) für dieselbe Wellenleiterdicke. Durch die Stapelung der QP kann der optische Einschluss also deutlich verbessert werden. Aus Sicht der Epitaxie [Zun99a] ist es in diesem Materialsystem unpraktikabel, die Stapelzahl auf > 3 zu erhöhen, weil sich die Lumineszenz der InP-QP durch das Auftreten von Versetzungen verschlechtert, so dass bei der folgenden Diskussion immer ein Dreifachstapel als optisch aktive Schicht in der Laserstruktur enthalten ist. Obwohl die Wellenleiterdicke mit d = 120 nm für den Einschluss der optischen Welle des im Inselstapel emittiertem Lichtes optimiert ist, wie man in Abbildung 5.8 sehen kann, würde der Anteil der optisch geführten Welle im Wellenleiter für eine dickere Wellenleiterschicht steigen. Die Wellenleiterschicht soll trotzdem d = 120 nm betragen.

Material	Gitterkonstante <i>a</i> [Å] [Lan82]	Energielücke $E_G[eV]$ [Lan82]	Brechungsindex <i>n</i> [Ada94], [Zwi93]
InP	5,868	1,35 (dir.)	3,488
Ga _{0,52} In _{0,48} P	5,6533	1,88 (dir.)	3,406
Al _{0,53} In _{0,47} P	5,6533	2,35 (indir.)	3,021
GaAs	5,6533	1,42 (dir)	3,65

Tabelle 5.4 Materialcharakteristika für unverspannten Volumenkristall bei RT bei einer Wellenlänge von $\lambda = 710$ nm.



Abbildung 5.8 Optischer Füllfaktor in Abhängigkeit von der Wellenleiterdicke d. (a) im Wellenleiter und (b) in der aktiven dreifach gestapelten QP-Schicht ($3 \times 3,7$ ML InP, GaInP-Zwischenschichtdicke 4 nm, Gesamtstapeldicke 18 nm).

5.1.5 Prozessierung der Breitstreifenlaser

Nach Beendigung der Epitaxie, die in den Abschnitten 4.1 und 4.2 beschrieben worden ist, werden kantenemittierende Laserdioden prozessiert. Dazu wird ein typischerweise $5 \times 5 \text{ mm}^2$ großes Probenstück aus der Kristallscheibe (engl.: wafer) gespalten. In Abbildung 5.9 sind die Prozessschritte bis zur Erhaltung der Mesen auf der pkontaktierten Seite dargestellt. Nach einer Reinigung mit den Lösungsmitteln Azeton und Isopropanol wird die Probe mit Fotolack (S1805) beschichtet, dieser ausgeheizt, und Streifen von typischerweise 50 µm Breite in den Lack belichtet. Schon bei diesem Prozessschritt muss auf die Kristallrichtungen achtgegeben werden. Es ist sinnvoll die Orientierungen der Gräben in [110]-Richtung zu legen, siehe Abschnitt 4.4.5. Um eine verbesserte Haftung des noch aufzudampfenden p-Kontaktmetalls zu erreichen, wird die Probe anschliessend in ein Chlorbenzolbad gegeben (Es entsteht ein sog. "Undercut", wie er in Abbildung 5.9 (d) gezeigt ist). Nach einem weiterem Ausheizschritt wird der Fotolack entwickelt. Lackreste in den Gräben werden mit einem Sauerstoffplasma entfernt, an die sich eine kurze Reinigung mit Semicoclean[®] und DI-Wasser anschließt. Die Probe wird dann sofort in eine Aufdampfanlage eingebaut, deren Aufdampfschiffchen entweder mit den Kontaktmaterialien Au/Zn/Au oder Ti/Pt/Au befüllt sind. Die Aufdampfrate beträgt ca. 1 Å/s. Die Schichtdicken betragen im ersten Fall 5/12/200 nm, im zweiten Fall 30/40/200 nm. Je nach Dotierungsgrad der abschliessenden Deckschicht der Laserdiode (in unserem Fall GaAs: Be), wählt man die Materialien entsprechend. Dotiert man stark ($p > 1 \times 10^{19}$ cm⁻³), so kann das unproblematischere Materialsystem Ti/Pt/Au verwendet werden. Anderenfalls muss man die p-Dotierung durch Zn erhöhen, wofür ein spezieller Einlegierschritt notwendig wird. Nach dem Aufdampfen erfolgt das Abheben (engl.: Lift-Off) des überschüssigen Metalls zwischen den mit Metall aufgefüllten Gräben in einem warmen Azetonbad. Zum Abschluss wird die Probe mit Isopropanol gereinigt. Je nach Dotierungsgrad der Deckschicht ist nun das Wegätzen der hochdotierten GaAs:Be-Schicht zwischen den Streifen sinnvoll, weil dadurch die vom Strom durchsetzte Fläche auf die Fläche unterhalb der Mesen beschränkt bleibt (Strompfad-Einschnürung). Man konnte auf diese Weise die Schwellstromdichten bei RT für manche Laserdioden um einen Faktor vier absenken. Wir haben auch versucht, den Strompfad weiter einzuengen und in die Mantelschicht AllnP naßchemisch hineinzuätzen. Allerdings waren die Ergebnisse für die Laserfunktion negativ, vermutlich weil die Ätzlösung zu stark lateral unterätzt hat, siehe Abbildung 5.10. Für das naßchemische Ätzen in die GaAs:Be Schicht hat sich die Lösung NH₃: H₂O₂: H₂O, im Verhältnis 1 : 2 : 100 mit einer mittleren Ätzgeschwin-digkeit von 2 nm/sec, als sehr nützlich erwiesen. Für Deckschichten mit $p > 1 \times 10^{19}$ cm⁻³ wird dieser Schritt eingefügt. Als Ätzlösung für das AlInP wurden verschiedene Chemikalien ausprobiert. Am besten reproduzierbare Ätztiefen konnte mit HCL : H₂0, im Verhältnis 1 : 3 erzielt werden. Allerdings kann man am REM-Querschnitt sehr gut sehen, dass die laterale Ätzlänge fast 10 µm beträgt, also viel größer ist als die Ätztiefe. Da die Laserstreifen insgesamt nur 50 µm breit sind, bleibt noch maximal 30 µm übrig, wobei unbekannt ist, welche Schäden die Ätzlösung am Kristall noch verursacht hat. Keine Laserdiode, bei dem dieser Ätzschritt vorgenommen wurde, hat je bei RT Lasertätigkeit gezeigt.

Für die *n*-Kontaktseite wird im nächsten Schritt das Substrat rückseitig ausgedünnt, um den späteren Spaltprozess zu vereinfachen. Dafür wird die Probenvorderseite belackt und die Probe mit der *p*-Seite nach unten mit Lack aufgeklebt, der dann ausgehärtet wird, um die Vorderseite in den folgenden Schritten zu schützen. Das Rückdünnen des GaAs n^+ Substrates von nominell (300-500) µm auf etwa 150-200 µm erfolgt in einer temperaturstabilisierten naßchemischen Ätzlösung aus H₂SO₄ : H₂O₂ : H₂O, im Verhältnis 1 : 8 : 10 bei T = 22 °C. Danach wird der Objektträger mit der Probe in DI-Wasser gespült und kurz in HCL und Semicoclean gereinigt. Dann wird sie in eine Aufdampf-anlage eingebaut und der *n*-Rückseitenkontakt aus 107,2 nm Au, 52,8 nm Ge und 40,0 nm Ni mit ca. 1Å/s Aufdampfrate aufgebracht. Eine anschließende Reinigung in Azeton und Isopropanol löst die Probe von dem Objektträger.

Es folgt das Einlegieren der Kontakte (30 s bei 250 °C, dann mit 10 K/sec auf 350 °C hochrampen und sofort wieder schnell mit Formiergasspülung auf RT abkühlen). Anschließend wird die Probe senkrecht zu den p-Kontaktstreifen angeritzt, was ein definiertes Spalten der Laserfacetten ermöglicht. Ein gespaltenes Stück wird mit leitfähigem Epoxykleber mit dem n-Kontakt in ein Laserchipgehäuse geklebt und ausgeheizt. Die Laserstreifen werden durch direktes Bonden auf dem Laserstreifen mit dem Chipgehäuse verbunden. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.9 zu sehen.



Abbildung 5.9 Prozessschritte der p-Kontakt-Strukturierung [Mat00]: (a) Reinigung und Belacken, (b) Lithographie, (c) Chlorbenzolbad für (d) Undercut, (e) p-Kontakt-Aufdampf-Prozess, (f) Lift-Off zur Freilegung von Mesen.





Abbildung 5.10 (a) Querschnitt durch eine Quantenfilm-Laserstruktur, bei der das hochdotierte GaAs Material an der Oberfläche zwischen den Laserstreifen nasschemisch weggeätzt wurde. (b) Ätzprofil nach 14 minütiger Einwirkung der Ätzlösung.



Abbildung 5.11 Blick von oben auf einen fertig prozessierten Chip mit fünf Laserresonatoren. Man erkennt die Bonddrähte, die jeden Laserstreifen-Frontkontakt mit einem "Chipcarrierkontakt" verbindet und das Leitsilber, das den Rückkontakt des Halbleiterchips mit dem "Carrier" elektrisch über Masse verbindet.

5.2 Der Quantenpunktlaser

5.2.1 Lasercharakteristika von Quantenpunktlasern bei Raumtemperatur

Im Folgenden sollen hier, wenn es nicht extra erwähnt wird, Quantenpunktlaser mit dreifach gestapelten InP-QP, die mit je 4 nm dicken Ga_{0,52}In_{0,48}P-Zwischenschichten voneinander getrennt sind, besprochen werden. Wie in Kapitel 3.4 beschrieben, wurden die Laser elektrisch angeregt durch elektrische Pulse der Länge $\tau = 500$ ns und Wiederholungsfrequenz von f = 20 kHz. Abbildung 5.12 zeigt typische QP-Laserkennlinien bei RT, aus der sich der Schwellstrom aus dem Schnittpunkt der Tangente an die *P-I*-Kennlinie knapp oberhalb der Schwelle und der x - Achse (P = 0) graphisch extrapolieren läßt. Die Stromdichte j errechnet sich aus dem durch die Laserdiode fließenden Strom I:

$$j = \frac{I}{b \cdot L}$$
 Gleichung 5.13,

wobei *b* und *L* die Resonatorbreite bzw. -länge bedeuten.

Für einen 1 mm langen Laser beträgt die Schwellstromdichte $j_{thr} = 2,6$ kA/cm². Aus Abschnitt 5.1.3 ist bekannt, dass die schnelle Temperung (RTA) die elektrischen Eigenschaften verbessern kann, dafür aber die Gefahr besteht, die optischen Eigenschaften der QP zu verschlechtern. Man kann in der Abbildung 5.12 erkennen, dass eine schnelle Temperung der Laserstrukturen entgegen der Erwartungen eher eine Verschlechterung der untersuchten Laser-Eigenschaften bewirkt. So beträgt die Schwellstromdichte für die gleiche Laserstruktur nach einer RTA-Behandlung $j_{thr} = 5,2$ kA/cm². Es ist zu vermuten, wie man früher anhand von TEM-Aufnahmen gesehen hat [Zun98], dass die RTA-Behandlung zu starke Kristalldefekte in der optisch aktiven Schicht induziert, was zu einer Reduktion der optischen Ausbeute führen kann, wenngleich man die elektrischen Eigenschaften der dotierten Mantelschichten mit dieser Methode verbessern kann. Aus diesem Grund wurde für alle folgenden Experimente auf eine RTA-Behandlung verzichtet. Die externe Quantenausbeute η_{ext} erhält man aus der Steigung der optischen

Kennlinie oberhalb der Schwelle: $\eta_{ext} = \frac{q}{\hbar\omega} \frac{dP}{dI}$

Gleichung 5.14.

Sie gibt an, wieviele Photonen pro injiziertem Ladungsträger den Laser durch eine der beiden Facetten verlassen. Für den 1 mm langen Laser mit (ohne) RTA-Behandlung wurde aus der Steigung eine externe Quantenausbeute von $\eta_{ext} = 8,7 \%$ (15 %) bestimmt.

Die maximale optische Leistung der QP-Laser bei RT ist beachtlich: Der 1 mm lange Laser ohne RTA-Behandlung erreicht knapp 400 mW ohne Sättigungseffekte. Für die Berechnung dieses Wertes wurde das Tastverhältnis von 1:100, der Strahlungsverlust durch die Linsen von schätzungsweise einem Faktor 2, sowie die Messung der optischen Ausgangsleistung aus nur einer der beiden Laserfacetten (wiederum Faktor 2) berücksichtigt. Der mit RTA behandelte Laser zeigt ab Leistungen von ca. 250 mW Sättigung. Wie schon angesprochen, ist anzunehmen, dass die thermische Behandlung die internen Verluste erhöht hat. Aus der Spannung U_{Diode} , die direkt über der Diode abfällt, und dem Strom, der durch die Diode fließt, kann man die elektrische Leistung bestimmen, die für die gemessene optische Leistung für das Bauelement aufgewendet werden muss. Bei einem Strom durch die Diode von I = 2 A und einer über der Laserdiode abfallenden Sättigungs-Spannung von $U_{Diode} = 6$ V, erhält man ca. $R_{Diode} = 3 \Omega$. Das stimmt mit dem berechneten Widerstandswert aus der *I-U*-Kennlinie in Abbildung 5.6 überein.



Abbildung 5.12 Optische Ausgangsleistung über injizierten Strom bei RT für einen QP-Laser mit 1 mm Kavitätslänge mit und ohne RTA-Schritt sowie die Spannung U_{Diode} in Abhängigkeit vom Strom I, die über der Diode (ohne RTA) abfällt.

Auffällig in Abbildung 5.12 ist, dass die über der Diode abfallende Spannung U_{Diode} für einen Injizionsstrom von I = 2 A Sättigung erreicht, während die optische Leistung erst für viel größere Stromstärken Sättigung zeigt. Man kann sich diesen Effekt durch das Auftreten von Leckströmen in WL und Barriere erklären, welche zunächst den elektrischen Widerstand senken, dann aber auch die optische Effizienz verringern, da die Lumineszenz der QP geschwächt wird.

Vergleicht man die Gleichstrom-*I-U*-Kennlinie mit den Werten für effektiven Strom und abfallender effektiven Spannung direkt über der Diode im AC (engl.: <u>a</u>lternative <u>c</u>urrent, Wechselstrom) -Betrieb, so erhält man einen Verlustfaktor von ca. 6,3. Er entsteht durch Impedanzfehlanpassung im Versuchsaufbau, der dazu führt, dass das elektrische Signal z.T. zur Spannungsquelle zurückreflektiert wird.

Aus P_{opt}/P_{el} , mit $P_{el} = U \times I = R_{Diode} \times I^2$ kann die direkte externe Effizienz $\eta *_{ext}$ in Abhängigkeit vom Diodenstrom überprüft werden wie in Abbildung 5.13 gezeigt. $\eta *_{ext}$ ist für einen maximalen Strom von 3 A durch die Diode gerade um den Faktor $\approx 6,3$ kleiner als die externe Quantenausbeute η_{ext} , die in Abbildung 5.12 zu 15 % (1mm Resonatorlänge, ohne RTA) bestimmt wurde.

Es soll angemerkt werden, dass der beste QP-Laser bis T = 110 K Lasertätigkeit unter CW (Gleichstrom, engl.: <u>c</u>ontinous <u>wave</u>) Anregung gezeigt hat. Bei 80 K wurde eine Schwellstromdichte von 67 A/cm² (L = 2 mm) und eine externe Quantenausbeute von $\eta_{ext} = 23$ % gemessen und bei 110 K zeigte das Bauelement Lasertätigkeit ab 104 A/cm² ($\eta_{ext} = 11$ %).

Bevor weitere Laserkenndaten wie interne Verluste, interne Quantenausbeute, Modal- und Materialverstärkung bestimmt werden, werden zunächst die spektralen Eigenschaften der QP-Laser bei RT vorgestellt. In Abbildung 5.14 (a) sind die Laserlinien eines QP-Lasers mit Dreifachstapel $3 \times 3,3$ ML InP bei RT dargestellt.



Abbildung 5.13 Bestimmung der externen Effizienz η_{ext}^* durch den Spannungsabfall U_{diode} in Abhängigkeit vom injizierten Strom I.



Abbildung 5.14 Laseremissionslinien eines Quantenpunktlasers mit $3 \times 3,3$ ML InP für ein 2 mm und einen 0,5 mm langen Resonator bei einer Stromdichte von (a) $1,2 \times j_{thr}$. In (b) ist das spontane Spektrum des 2 mm langen Lasers aus der Oberfläche der Probe unter obigen Laserbedingungen gezeigt. Die Be-

zeichnungen QP, QP* und WL stehen für die Emissionsenergien der InP-QP, des ersten angeregten Zustandes und der Benetzungsschicht (WL).

Die Emissionsenergie des Spektrums der stimulierten Emission des QP-Lasers mit einer Resonatorlänge von L = 2 mm liegt bei 1,70 eV, für den L = 0,5 mm langen Laser bei 1,74 eV. Im Vergleich zum spontanen Spektrum in (b) zeigen beide Bauelemente Lasertätigkeit auf der Niederenergieseite, d.h. sogar für so kurze Resonatoren wie 0,5 mm beobachtet man Lasertätigkeit aus dem Grundzustand. Man erwartet für kürzere Resonatoren eine Blauverschiebung der Laserlinie, weil eine höhere modale Verstärkung aufgewendet werden muss, um die Spiegelverluste auszugleichen. Bei RT können die Ladungsträger über die Benetzungsschicht und Barriere miteinander koppeln, so daß sich das spektrale Maximum des modalen Verstärkungsspektrums aufgrund der notwendigen höheren Anregungsstromdichten blau verschiebt. Wie man in Abbildung 5.14 sehen kann, ist die Blauverschiebung < 40 meV, was bei unseren Quantenpunktabmessungen ca. der theoretisch bestimmten Energiedifferenz zum ersten angeregten Zustand QP* entspricht [Rie99]. Um sicherzustellen, dass diese Behauptung nicht durch temperaturbedingte Energieverschübe vereitelt wird, wurde das spontane Spektrum unter denselben Laserbedingungen wie in (a) vermessen, d.h. bei einer Stromdichte von $1,2 \times i_{thr}$. Dabei wurde die Probe um 90° so gedreht, dass nicht das Licht aus der Spaltkante, sondern aus der Oberfläche heraus gemessen werden konnte. Um Streueffekte zu minimieren, passierte das Laserlicht einen direkt hinter den Kryostaten befindlichen Spalt von wenigen hundert Mikrometern Breite. Damit konnte erreicht werden, dass die gleiche Temperatur und die gleiche Besetzungsverteilung der elektronischen Zustände während der Messung des spontanen Spektrums im Material vorlag wie bei der Messung der Laserlinien in (a). Wenngleich nicht ganz deutlich aufgelöst, so kann man doch die Grundzustandsenergie QP von 1,74 eV und die des ersten angeregten Zustandes QP* bei 1,77 eV sowie die Energie der Benetzungsschicht (WL) bei 1,88 eV erkennen. Sie sind in der Abbildung 5.14 durch Pfeile angedeutet. Die Zuordnung der Energielagen wurden durch anregungsabhängige Photolumineszenz bei T = 140 K schon genau bestimmt [Rie99]. Wie sich die Spektren mit zunehmender Anregung bei RT entwickeln, zeigt die folgende Abbildung 5.15. Der Strom an der Schwelle beträgt $I_{thr} = 1,8$ A.



Abbildung 5.15 Elektrolumineszenz-Spektren bei RT eines $3 \times 3,0$ ML InP-QP-Lasers für verschiedene Anregungsströme (Resonatorlänge: 2 mm, Anregung mit $\tau = 500$ ns, f = 20 kHz).

Abbildung 5.16 zeigt die Abhängigkeit der Schwellstromdichte eines QP-Lasers von den Spiegelverlusten $\alpha_{mirr} = 1/L \times ln(1/R)$ bei RT mit und ohne RTA-Behandlung. Setzt man einen linearen Zusammenhang von Verstärkung und Strom voraus, dann gilt [Sch96a]:

$$j_{thr} = \Gamma / \beta \left(\alpha_{int} + 1/L \ln(1/R) \right)$$

Gleichung 5.15

 β ist eine Proportionalitätskonstante, α_{int} sind die internen Verluste, Γ der optische Einschlussfaktor und R = 0,3 die Reflektivität der aktiven Schicht. Passt man die Messpunkte an eine Geradengleichung an, liefert die Steigung den Wert für die internen Verluste. Für den Laser nach RTA-Behandlung ist $\alpha_{int} = (3,7 \pm 0.4)$ cm⁻¹. Für den hypothetischen Fall eines unendlich langen Resonators ohne Spiegelverluste $(L \rightarrow \infty)$ erhielte man eine Schwellstromdichte von $(1,1 \pm 0,8)$ kA/cm². Für den Laser ohne RTA-Behandlung sind die Schwellstromdichten für verschiedene Resonatorlängen ebenfalls gezeigt (schwarze Kreise). Mit zunehmender Resonatorlänge nimmt hier die Schwellstromdichte wesentlich schwächer zu, d.h. die optischen Eigenschaften der aktiven Schicht sind ohne RTA besser als mit RTA. Die Geradengleichung liefert allerdings höhere interne Verluste: $\alpha_{int} = (11,8 \pm 0,4)$ cm⁻¹ für Laserdioden mit RTA. Es gilt $j_{thr}(L \rightarrow \infty) = (1,2 \pm 0,1)$ kA/cm². Das bedeutet, dass der Laser mit RTA-Behandlung für den Fall sehr langer Resonatoren kleinere Schwellstromdichten aufweist als der ohne.

Wie wir aus Abschnitt 5.1.3 wissen, erwartet man durch eine RTA-Behandlung einen kleineren ohmschen Widerstand der Laserdioden, weil der Einbau der Dotierstoffe in das Kristallgitter der Mantelschichten verbessert werden kann²². Durch RTA werden auch nicht-strahlende Rekombinationszentren in der Wellenleiterschicht ausgeheilt, was die internen Verluste senken kann. Andererseits ist die Schwellstromdichte für kleinere Resonatorlängen nach einer RTA-Behandlung größer als ohne RTA-Behandlung. Aus PL-Studien wissen wir, dass die PL-Intensität der QP nach einer RTA-Behandlung abnimmt und die Halbwertsbreite zunimmt, was andeutet, dass das optisch verstärkende Material z.T. zerstört wird [Zun99a]. TEM-Aufnahmen bestätigen dies, denn durch verspannungsinduzierte Diffusion von Indium verändern die Inseln ihre geometrischen und optischen Eigenschaften [Zun98].

In Abbildung 5.17 ist die externe Effizienz η_{ext} gegen die inversen Spiegelverluste 1/ α_{mirr} aufzutragen. Es gilt:

 $\frac{1/\eta_{ext}}{Gleichung 5.16} + (\alpha_{int} / \eta_{int})L / \ln(1/R)$

Extrapolation für $L \rightarrow 0$ liefert die interne Quanteneffizienz von $\eta_{int} = (21,5\pm 5)$ %. Es gilt $g_{mod} = \Gamma \times g_{mat} = \alpha_{int} + \alpha_{mirr}$ Gleichung 5.17.

Addiert man also die internen Verluste zu den Spiegelverlusten, dann erhält man eine Modalverstärkung im Grundzustand von $g_{mod} = 28 \text{ cm}^{-1}$ für den 0,5 mm langen Laser. Den Mindestwert der Materialverstärkung erhält man wie folgt: Man kann den optischen Füllfaktor Γ abschätzen über das Verhältnis der äquivalenten Inseldicke zur Wellenleiterdicke. Die äquivalente Inseldicke ist die Gesamtmenge des deponierten InP-

²² Aus der Steigung der *IU*-Kennlinie ohne RTA-Behandlung erhält man einen differentiellen Widerstand von 3,5 Ω , mit RTA-Behandlung ca. 3,0 Ω . Der Unterschied ist also recht gering.

Materials (z.B. 3,3 ML) minus der Benetzungsschichtdicke $d_{krit} = 1,5$ ML [Kur96], multipliziert mit der Anzahl der QP-Lagen, also drei. Man erhält $\Gamma = 1,3$ % und eine Materialverstärkung von $g_{mat} = 2,2 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$.



Abbildung 5.16 Abhängigkeit der Schwellstromdichte j_{thr} von den Spiegelverlusten α_{mirr} des Laserresonators bei Raumtemperatur. Es sind die Schwellstromdichten für L = 0,5 mm, 1mm und 2 mm lange Resonatoren, mit und ohne RTA-Behandlung gezeigt.



Abbildung 5.17 Externe Quanteneffizienz η_{ext} in Abhängigkeit von den inversen Spiegelverlusten (Laser mit RTA-Behandlung). Für L \rightarrow 0 erhält man die interne Quanteneffizienz $\eta_{int} = (21, 5 \pm 5) \%$.

5.2.2 Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichte und der Elektrolumineszenzspektren

Im folgenden Abschnitt wird das Verhalten der Schwellstromdichte und die Veränderung der Energielage von spontaner und stimulierter Emission von InP-QP-Lasern in Abhängigkeit von der Temperatur untersucht.

Die folgende Abb. 5.16 zeigt einen historischen Überblick über die wichtigsten Laserschwellstromdichten von Dreifach-InP-QP aus unserem Labor in Abhängigkeit von der Temperatur. Eingezeichnet sind die Aktivierungsbarrieren E_A für die verschiedenen Laser, die sich im Wesentlichen durch ihre unterschiedliche nominelle InP-Schichtdicke und die Wachstumstemperatur T_{sub} unterscheiden. Die beiden Laser mit den größten Aktivierungsbarrieren wurden mit dem einkristallinen GaP-Zellenmaterial hergestellt.



Abbildung 5.18 Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichte für verschiedene QP-Laserdioden mit Dreifachstapeln von 2,8 ML bis 3,5 ML InP und einem Dreifach-QP-Laser zum Vergleich [Kuh97]. Die Zahlenwerte neben den Kurven geben die Aktivierungsbarriere E_A an. Der 3 × 3,3 ML InP-QP-Laser erreicht Lasertätigkeit bei 300 K mit einer Schwellstromdichte von $j_{thr} = 2,3$ kA/cm². Er besitzt eine thermische Aktivierungsbarriere von $E_A = 146$ meV.

Variiert wurden die nominelle InP-Schichtdicke, die Wachstumstemperatur T_{sub} , und für die beiden besten QP-Laser das GaP-Zellenmaterial. Die Schwellstromdichte konnte sukzessiv temperaturunabhängiger gemacht werden, wenngleich sie auch für den besten Laser entgegen theoretischer Erwartungen nicht für alle Temperaturen konstant wird. Bei T = 50 K besitzt der beste Laser eine Schwellstromdichte von nur $j_{thr} = 50$ A/cm²,

was auf eine recht gute Kristallqualität hindeutet. Mit steigender Temperatur nimmt sie jedoch exponentiell zu und erreicht bei RT $j_{thr} = 2,3 \text{ kA/cm}^2$.

In dem folgenden Modell nimmt man an, dass thermisch aktivierte Prozesse für diesen temperaturabhängigen Anstieg der Schwellstromdichte verantwortlich sind. Thermische Anregung der Ladungsträger aus den QP-Grundzuständen heraus in energetisch höherliegenden Zustände sorgen für Ladungsträgerverluste und somit für die Zunahme der Schwellstromdichte. Als energetisch höherliegende Zustände kommen angeregte Zustände der QP oder Zustände in der Benetzungsschicht bzw. im GaInP-Wellenleiter in Frage. Erstere kommen aufgrund der Beobachtung, daß die Verluste mit zunehmender QP-Größe abnehmen, nicht in Betracht. Wie wir in Abbildung 5.18 sehen, können wir angeregte QP-Zustände ausschliessen, denn würden sie thermisch besetzt, so würde der energetische Abstand zwischen diesen und dem QP-Grundzustand mit zunehmender QP-Größe abnehmen und folglich würde sich das Temperaturverhalten der Schwellstromdichte verschlechtern. Wir beobachten aber eine Verbesserung mit zunehmender InP-Deposition.

Die Benetzungsschicht- bzw. Wellenleiterzustände besitzen nicht-strahlende Rekombinationszentren, die letztlich für die Ladungsträgerverluste verantwortlich sind. Die Abnahme der integrierten PL-Intensität mit zunehmender Temperatur bestätigt die Vorstellung der nicht-strahlenden Rekombination in WL und Barriere [Rie98], [Rie99].

Das Temperaturverhalten der Schwellstromdichte für thermisches Gleichgewicht zwischen QP-Grundzustand und höherenergetischem Zustand in den WL und durch eine Aktivierungsbarriere E_A kann daher in dieser Modellvorstellung durch den Zusammenhang beschrieben werden

wobei k_B die Boltzmannkonstante ist und $j_{thr}(0)$ die Schwellstromdichte bei der Temperatur T = 0 K angibt. Der letzte Term in obiger Gleichung gibt das Verhältnis der Besetzungswahrscheinlichkeit zwischen den Zuständen der Benetzungsschicht und den der QP an. C ist eine Konstante, die aufgrund der 2-dimensionalen Zustandsdichte der Benetzungsschicht der Temperatur einfach linear proportional ist: $C \sim T$. Riedl et al. haben festgestellt, dass die Aktivierungsenergie $E_A = (E_{WL} - h \nu)/2$ entspricht. Da die InP-QP bei den üblichen PL-Messbedingungen keine Emission von angeregten Zuständen zeigen (s. leistungsabhängige PL in Abschnitt 4.3.2.5), kann man davon ausgehen, dass die Laseremission hv eine ähnliche Rotverschiebung zeigt wie die Benetzungsschicht, d.h. E_A = konstant für den gesamten Temperaturbereich ist. Der Faktor 2 erklärt sich daher, dass die Evaporation der Ladungsträger aus den QP-Zuständen in die Benetzungsschicht bzw. Barriere immer paarweise (gleiche Anzahl von Elektronen und Löher) erfolgt, so dass Ladungsneutralität garantiert ist [Mic92]. Für einen QP-Laser, der bis zu T = 215 K Laserfunktion gezeigt hat, siehe die Kreise in obiger Abbildung mit 3 \times 3,2 ML InP-QP, erhält man mit dieser Anpassungsformel $E_A = 66$ meV. Man kennt die Emissionsenergie der Benetzungsschicht für 80 K am genauesten: $E_{WL} = 1,88$ eV. Die Laseremissionslinie liegt bei ca. 1,75 eV, $E_A = (E_{WL}-h\nu)/2 = 65$ meV (temperaturunabhängig). Die Übereinstimmung ist sehr gut. Man erhält für den Laser mit $3 \times 3,5$ ML InP-QP (dunkelgrüne Punkte, $T_{sub} = 490$ °C, einkristallines GaP) $E_A = 80$ meV. Er zeigt Lasertätigkeit bis T = 260 K. Für den Laser mit $3 \times 3,3$ ML InP-QP, hergestellt bei $T_{sub} =$ 490 °C und mit einkristallinem GaP, funktioniert die obige Anpassungsformel nicht mehr. Man erhält eine Aktivierungsbarriere in die Benetzungsschicht von $E_A = 122$ meV, jedoch paßt sich die obige Modellkurve nicht gut an die Messergebnisse an. Für den Temperaturbereich bis RT berücksichtigen wir auch die Evaporation der Ladungsträger in den GaInP-Wellenleiter hinein, dort gilt $C' \sim T^{3/2}$ wegen der 3-dimensionalen Zustandsdichte des Wellenleiters:

$$j_{thr}(T) = j_{thr}(0) \times \left(1 + C(T) \exp\left(-\frac{E_A}{k_B T}\right) + C'(T^{\frac{3}{2}}) \exp\left(-\frac{E_A^*}{k_B T}\right)\right) \qquad \text{Gleichung 5.19.}$$

Man erhält für die thermische Aktivierung in die Benetzungsschicht $E_A = 35$ meV, für die in den Wellenleiter $E_A^* = 183$ meV. Für den Temperaturbereich nahe RT überwiegt der Term der thermischen Aktivierung in den Wellenleiter.

Es ist nicht trivial die Verbesserung der Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichten für die in der MBE hergestellten Laser Schritt für Schritt nach den geänderten Wachstumsparametern zu verstehen. Man kann aber auf jeden Fall sagen, dass sowohl die Erhöhung der nominellen InP-Schichtdicke, als auch die Erhöhung der Wachstumstemperatur sowie die Verwendung des einkristallinen GaP-Zellen-Materials eine Verbesserung der Laserqualität bewirkt hat. Die beiden letzten Parameter liefern eine verbesserte Kristallqualität, d.h. eine Reduktion der Anzahl der nicht-strahlenden Rekombinationszentren in Benetzungsschicht und GaInP-Wellenleiter. Die Größe der QP erhöht die Energiedifferenz zwischen QP und WL sowie GaInP-Barriere, d.h. verringert die Wahrscheinlichkeit der thermischen Aktivierung der eingeschlossenen Ladungsträger in diese.

Zum Vergleich ist die Abhängigkeit für einen Quantenfilmlaser ebenfalls eingezeichnet [Kuh97]. Das Einschlusspotential mit ca. 260 meV ist für diese Laserstruktur deutlich höher als für die von uns hergestellten QP- und QF-Laser, was durch die Wahl der Materialien bedingt ist. Es handelt sich dort um einen Dreifachstapel von 6 nm dikken, kompressiv verspannten Ga_{0,41}In_{0,59}P/(Al_{0,33}Ga_{0,67})In_{0,5}P QF-Laser mit Laseremission bei 670 nm.

Der QF-Laser zeigt die theoretisch erwartete lineare Abhängigkeit der Schwellstromdichte mit der Temperatur. Wie man in der Abbildung 5.18 sieht, gibt es zwei Temperaturbereiche: Für den Laser mit $3 \times 3,2$ ML und $T_{sub} = 470$ °C ist für T < 150 K der QP-Laser der mit der kleineren Schwelle im Vergleich zum QF-Laser. Diese kritische Temperatur konnte für den Laser mit dem einkristallinen GaP, der erhöhten Substrattemperatur von $T_{sub} = 490$ °C und der nominellen InP-Schichtdicke von $3 \times 3,3$ ML auf 220 °C erhöht werden. Für RT verliert der QP-Laser deutlich gegenüber dem QF-Laser. Aus mehreren Gründen ist dieser Vergleich aber nicht aussagekräftig: die Schwellstromdichte hängt z.B. von der Resonatorlänge ab. Zudem ist es zweckmässig, die gleichen Materialkompositionen miteinander zu vergleichen, d.h. in diesem Fall, die gleichen Wellenleitermaterialien und -dicken. Weiterhin sollte das Herstellungsverfahren (MBE, MOVPE...) dasselbe sein. Im Kapitel 5.4 werden QP- und QF-Laser, die diese Voraussetzungen erfüllen miteinander verglichen, indem sie in derselben MBE Maschine hergestellt worden sind.

Wir wollen den besten Laser mit $3 \times 3,3$ ML InP-QP ($T_{sub} = 490$ °C, einkristallines GaP) noch einmal etwas genauer betrachten. Dazu zeigt die folgende Abbildung 5.19 die Schwellstromdichte in Abhängigkeit von der Temperatur noch einmal separat.



Abbildung 5.19 Schwellstromdichte j_{thr} und die Energielagen der spektralen Maxima der spontanen Emission bei halber Schwellstromdichte und der Laserspektren bei $1,2 \times j_{thr}$ bei verschiedenen Temperaturen für eine 2 mm lange Laserdiode mit $3 \times 3,3$ ML InP-QP.

Um so etwas wie ein Qualitätsmerkmal für einen QP-Laser, ausgedrückt durch die Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichte j_{thr} von der Temperatur nahe von T_1 , angeben zu können, führt man die charakteristische Temperatur T_0 ein über den Zusammenhang [Kir94]:

$$j_{thr}(T) = j_{thr}(T_1) \exp\left(\frac{T - T_1}{T_0}\right)$$

Gleichung 5.20.

Im Hochtemperaturbereich zwischen 250 K und 300 K beträgt $T_0 = 42$ K. Als Vergleichswert dient hier die charakteristische Temperatur der ebenfalls im roten Wellenlängenbereich emittierenden AlInAs-QP-Laser, die mit $T_0 = 50$ K ein ganz ähnliches Temperaturverhalten zeigen [Hin00], wobei beachtet werden muss, dass bei diesen Lasern nicht der Grundzustand stimulierte Emission zeigt.

Die Abbildung 5.19 zeigt auch die Energielagen der Elektrolumineszenz-Maxima kurz oberhalb der Schwelle ($j = 1, 2 \times j_{thr}$, ausgefüllte Kreise) und der spontanen Emission ($j = 0, 5 \times j_{thr}$, ausgefüllte Dreiecke). Die Laserlinie liegt immer oberhalb des Maximums der spontanen Emission bis zu einer Temperatur von T = 250 K. Der energetische Unterschied wird aber immer geringer. Bei 250 K kreuzen sich die beiden Kurven und bei RT zeigt der Laser eindeutig Grundzustandslasen, d.h. die Energielage des Laserspektrums liegt deutlich unter der Energieposition des spontanen Spektrums. Diese Beobachtung läßt sich so erklären: Bei tiefer Temperatur können die Ladungsträger zwischen den Inseln nicht miteinander wechselwirken. Jeder Quantentopf ist statistisch besetzt, die Besetzung der Zustände findet nicht im thermischen Gleichgewicht statt. Die QP im Ensemble mit ihren unterschiedlichen Grundzustandsniveaus können als isoliert

voneinander betrachtet werden. Das liegt daran, dass die Reemissionszeit für die QP von bis zu mehreren 10 ms [Gru00] viel größer ist als die spontane Rekombinationszeit, welche für unser Materialsystem zu ca. 400 ps bestimmt wurde [Chr00]. Da die Größenverteilung der Inseln ungefähr gaussförmig ist, starten diejenigen QP mit Lasertätigkeit, die statistisch am häufigsten vorkommen (mittlere Inselgröße, d.h. mittlere Energie), also nicht notwendigerweise die QP mit den niedrigsten Energieniveaus. Mit steigender Temperatur thermalisieren Ladungsträger aus den Quantentöpfen in die Benetzungsschicht und die GaInP-Barriere, zerfallen dort entweder spontan oder nichtstrahlend, oder verteilen sich zurück in die Quantentöpfe. Es findet also eine Umverteilung der Besetzung der Ladungsträger zugunsten der größeren Inseln, d.h. der energetisch tieferen Quantentöpfe statt. Ab T = 250 K wird das Angebot an Ladungsträgern in den tieferen Energieniveaus größer als in den übrigen und man beobachtet stimulierte Emission aus dem Grundzustand. Dieses Szenario ist ein typisches Beispiel für reale Quantenpunkte mit endlicher Barriere. Bei idealen Quantenpunkten hätte man keinerlei Kopplung der lokalisierten Ladungsträger mit der Barriere erwartet, weil die Quantentöpfe theoretisch unendlich tief sind. Theoretisch hätte man also für jede Temperatur stimulierte Emission aus dem Maximum der spontanen Emission erwartet und die Schwellstromdichte wäre temperaturunabhängig geblieben. Die Evaporation der Ladungsträger und die anschließende "Vernichtung" durch nicht-strahlende Rekombination nennt man "Leckstrom." Durch seinen zunehmenden Einfluss mit steigender Temperatur steigt die Schwellstromdichte, wie wir oben gesehen haben, exponentiell an.

Interessanterweise kann man beobachten, dass die Halbwertsbreite der Laserlinie bei $(j = 1, 2 \times j_{thr})$ mit steigender Temperatur schmaler wird: Bei T = 80 K beträgt sie noch 5,9 meV, bei 200 K nur noch 4,1 meV und bei 300 K ist sie nur noch 3,3 meV breit. Da sich die Ladungsträger mit zunehmender Temperatur bevorzugt nach thermischer Aktivierung in die Barriere auf die tieferen Energieniveaus verteilen, verschmälert sich damit die Besetzungsfunktion. Daraus resultieren die rotverschobenen, schmaleren Laserspektren bei höherer Temperatur.

Wie in Abbildung 5.20 (a) schematisch dargestellt, existiert bei tiefer Temperatur keine gemeinsame Fermi-Funktion für die QP-Niveaus [Gru00]. Die QP sind statistisch besetzt und das Emissionsspektrum ist die Einhüllende der Besetzungswahrscheinlichkeiten. Durch das Besetzen der niederenergetischen Niveaus der größeren QP, siehe Abbildung 5.20 (b), schieben die Laserlinien der QP-Laser nicht nur mit wachsender Temperatur auf die Niederenergieseite des spontanen Spektrums, sondern die Laserlinien-HWB wird auch schmaler.



Abbildung 5.20 Modellvorstellung zur Erklärung der Entwicklung der Energielage der EL-Spektren für höhere Temperaturen. (a) Bei tiefen Temperaturen sind die QP statistisch mit Ladungsträgern besetzt. Es gibt keine Fermifunktion für das QP-Ensemble, da die QP ungekoppelt sind. Die stimulierte Emission entsteht bei jenen QP mit Besetzungsinversion, welche im Ensemble am häufigsten vorkommen; das müssen nicht die QP mit der niedrigsten Grundzustandsenergie sein. (b) Bei RT und hinreichend starker externer Anregung koppeln die Ladungsträger thermisch mit WL und Barriere und reemittieren bevorzugt aus den niederenergetischen Niveaus der größeren QP. Deshalb befinden sich die Laserlinien der QP-Laser mit wachsender Temperatur auf die Niederenergieseite des spontanen Spektrums und die Laserlinien-HWB wird schmaler.

5.3 Der Quantenfilmlaser

Um einen mit den im vorherigen Abschnitt besprochenen Quantenpunktlasern vergleichbaren Quantenfilmlaser herzustellen, wird im Prinzip die gleiche Laserstruktur in der MBE-Maschine hergestellt. Sie unterscheiden sich im wesentlichen nur durch die optisch aktive Zone. In den 120 nm dicken $Ga_{0,52}In_{0,48}P$ -Wellenleiter wird nun ein kompressiv verspannter Quantenfilm aus $Ga_xIn_{1-x}P$ -Material eingebettet. Um die gleiche Emissionswellenlänge wie bei den QP zu erhalten, kann man zwei Parameter variieren: die QF-Dicke *d* und die Komposition *x*. Für einen effizienten Ladungsträgereinschluss wählt man einerseits einen hohen Indiumgehalt, also eine hohe Verspannung, weil die Energie des optischen Überganges mit höherem Indiumgehalt rotverschiebt. Das erhöht die thermische Aktivierungsbarriere. Andererseits führt eine große Filmdicke ebenfalls zu einer Rotverschiebung. Diese Zusammenhänge sind in Abbildung 5.21 dargestellt.

Die Emissionsenergien der QF in Abhängigkeit von Verspannung *x* und Filmdicke *d* wurde mit der selbstkonsistenten Lösung der Schrödingergleichung für einen Quantentopf unter Berücksichtigung der Bandkantenenergie-Verschiebung durch Druck- und Scherspannung bestimmt. Die Größe der Gitterkonstante wurde durch Interpolation der Werte für InP und GaP bestimmt, siehe Abschnitt 2.3.

Wie man der Abbildung entnehmen kann, ist die freie Wahl der beiden Parameter x und d durch die kritische Schichtdicke d_{krit} eingeschränkt. Die Werte für d_{krit} wurden experimentell durch den Übergang von zweidimensionalem zu dreidimensionalem Wachstum in der MBE Maschine bestimmt, siehe Abschnitt 3.1. Man erkennt diesen Übergang durch die Umwandlung des RHEED-Bildes von "streaky pattern" zu "spotty pattern." Beispielsweise wurde für einen In-Gehalt von 70 % dkrit zu 6-7 nm, bei 60 % zu d_{krit} 11-12 nm bestimmt. Es stellt sich die Frage nach einer möglichst exakten Definition der kritischen Schichtdicke eines Quantenfilmes. Nach der Definition von Matthews und Blakerslee [Ham89] treten für Schichtdicken $d > d_{krit}$ Versetzungen auf, welche z.B. im TEM sichtbar sind. Für eine Gitterfehlanpassung von 2 % (das entspricht einem In-Gehalt von 72 %) hätte die kritische Schichtdicke einen Wert von $d_{krit} = 10$ nm. Dass diese Angaben nur eine grobe Faustregel sein können, zeigen u.a. P. Blood et al. [Blo99]. Für das Materialsystem Ga_xIn_{1-x}P/(Al_yGa_{1-y})_{0.52}In_{0.48}P konnte gezeigt werden, dass schon das Auftreten von lokalen Dickenschwankungen (ohne sichtbares Auftreten von Defekten und Gitterfehlern im Querschnitts-TEM) zu erhöhten Schwellstromdichten führt. Der Grund dafür ist eine Rotverschiebung der Grundzustands-Übergangsenergie *e1-hh1* mit zunehmender Verspannung da/a > 1 %, während die energetische Aufspaltung des Grundniveaus *lh1-hh1* mit zunehmender Verspannung sättigt. Die Autoren schließen zusammen mit ihren Beobachtungen in TEM-Messungen, dass ab einer bestimmten Verspannung die QF lokal Spannung abbauen, indem inhomogene Dickenschwankungen im QF entstehen, welche Streuzentren, also optische Verluste für die optische Resonatormode darstellen und daher zu einer Verschlechterung der Lasereigenschaften führen können.


Abbildung 5.21 Berechnete spontane optische Übergangsenergien des Grundzustandes kompressiv verspannter $Ga_xIn_{1-x}P/Ga_{0,52}In_{0,48}P$ -Quantenfilme in Abhängigkeit von Indiumgehalt (1-x) und der Filmdicke d für tiefe Temperaturen (5K). Die eingetragenen Kreise sind ausgewählte Messpunkte von PL-Proben. Die auserwählte Kombination (In-Gehalt (1-x) = 70 %; QF-Dicke d = 4,5 nm) wurde zur Herstellung des QF-Lasers verwendet (Pfeil). Die Quadrate kennzeichnen die für jede In-Konzentration experimentell bestimmte kritische Schichtdicke d_{krit} .

Allgemein wird durch kompressive Verspannung (unterhalb der eben genannten kritischen Verspannung) die Entartung des Valenzbandes am Γ -Punkt aufgehoben, d.h. die Ladungsträgerdichte halbiert sich an dieser Stelle, das Schwerlochband *hh* wird nach oben gedrückt, das Leichtlochband *lh* und das spinabgespaltene Band *so* nach unten, so dass die Bandlücke insgesamt verringert wird. Mit zunehmender kompressiver Verspannung reduziert sich die Transparenzstromdichte, weil die Zustandsdichte an der Fermi-Kante verringert wird, siehe Abbildung 5.22.

Somit kann die Besetzungsinversion mit geringerer Stromdichte erreicht werden²³. Solange das Gitter elastisch komprimiert wird, verringert sich die Bandlückenenergie mit der kompressiven Verspannung. Der Gewinn an Ladungsträgereinschluss wird für Verspannungsstärken ab da/a > 1% ineffizienter, wobei *a* die Gitterkonstante des Wirtsgitters und *da* die Änderung dieser durch Verspannung ist. Die Autoren zeigen, dass mit dem Kriterium von Matthews and Blakerslee bei Verspannungen von deutlich > 1 % zu große Schichtdicken als unkritisch betrachtet werden. Beispielsweise zeigt ein Laser mit 1,7 % Verspannung bei einer Schichtdicke von 10 nm (was gerade noch unterhalb der krit. Schichtdicke ist) eine ca. dreifach so große Schwellstromdichte bei RT verglichen mit einem um 1% verspannten QF-Laser gleicher Filmdicke. Der Vorteil des erhöhten Ladungsträgereinschlusses durch Verspannung wird durch die Streuung der

²³ wenn die "reduzierte Zustandsdichte" angepaßt ist, siehe zur Erläuterung Abschnitt 5.1.2.

optischen Welle an Filmrauhigkeiten wieder zunichte gemacht. Die Verspannung entspricht dann nicht mehr einem konstanten Wert über den gesamten Film, sondern kann durch das dreidimensionale Wachstum lokal relaxieren. Wir haben es dann mit einem Gemisch aus nach Stranski-Kastranov gebildeten QP und einem rauhen QF zu tun, dessen Dicke lokal variiert. Erst wenn die Zustandsdichte eindeutig QP-Eigenschaften annimmt und wenn die Abstände zwischen den diskreten Energieniveaus $\Delta E > kT$ sind, kann die Schwelle des Lasers wieder sinken.



Abbildung 5.22 Schematische Darstellung der Änderung der Bandstuktur im parabolischen Modell durch die biaxiale Kompression der Elementarzelle. Die Quasiferminiveaus E_F^L und E_F^V für Elektronen und Löcher sind eingezeichnet. Durch die kompressive Verspannung wird die Bandlücke verkleinert und die Entartung am Γ -Punkt im Valenzband aufgehoben. Das bewirkt eine Reduktion der Ladungsträgerbesetzungsdichte an der Fermi-Kante, so dass mit weniger Ladungsträgern Besetzungsinversion erreicht werden kann.

Man ist also gut beraten, wenn man eine Schichtdicke *d* deutlich unterhalb von d_{krit} wählt. In Abbildung 5.21 sind einige PL-Energien von QF-Proben durch Kreise angedeutet, deren Spektren in der folgenden Abbildung 5.23 bei 8 K gezeigt sind.

Für eine Emissionsenergie von E = 1,75 eV entnimmt man der Abbildung 5.21, dass ein QF mit In-Gehalt von 70 % und einer Filmdicke d = 4-5 nm oder ein QF mit 65 % In und d = 10 nm bei dieser Energie emittieren. Größere In-Konzentrationen im QF würde zu sehr kleinen kritischen Schichtdicken $d_{krit} < 5$ nm führen. Dabei läßt sich die Abhängigkeit von der kritischen Schichtdicke d_{krit} für einen In-Gehalt >70 % nicht einfach extrapolieren, weil sie beim Auftreten des SK-Modus plötzlich sehr klein wird.

Ich habe mich für die erstere Kombination entschieden. Die kritische Schichtdicke liegt bei $d_{krit} = 6-7$ nm. Die Halbwertsbreite des spontanen Spektrums der Laserstruktur beträgt bei T = 8 K 11 meV.



Abbildung 5.23 PL-Spektren mit verschiedenen Kompositionen x der $Ga_xIn_{1-x}P$ -Quantenfilme aus Abbildung 5.21 mit unterschiedlichen Filmdicken d bei T = 8 K. Auf diese Weise läßt sich die Emissionsenergie innerhalb der im Text besprochenen Grenzen einstellen.

5.4 Vergleich: InP-Quantenpunkt-Laser und kompressiv verspannter Ga_xIn_{1-x}P-Quantenfilmlaser

5.4.1 Vergleich der spontanen Emissionsspektra

Die Abbildung 5.24 zeigt PL-Spektren bei 8 K und bei RT für einen 5 nm dicken QF mit 70 % In-Konzentration im Vergleich mit einem Dreifachstapel von 3 × 3,5 nm InP-QP. Die HWB von 11 meV des Emissionsspektrums des QF ist vergleichbar mit dem Wert, den auch andere Autoren für einen 1 % verspannten GaInP-QF erhalten haben [Mog98]. GaInAs-Quantenfilme zeigen vergleichbare Halbwertsbreiten bei diesen Temperaturen, die mit inhomogener Verbreiterung durch Dicke- und Kompositionsschwankungen des Quantenfilmes erklärt werden kann. Für die InP-QP gilt bei tiefen Temperaturen, dass die Ladungsträger über zufällige Prozesse auf die QP verteilt werden, und es findet keine Reemission in Benetzungsschicht und Barriere mehr statt, weil die QP thermisch ungekoppelt sind. Eine Fermi-Verteilung, d.h. die Angabe einer Besetzungswahrscheinlichkeit der QP-Zustände ist für ideale QP bei tiefen Temperaturen per definitionem ausgeschlossen.

Das bedeutet, dass die HWB der spontanen QP-Emission bei tiefen Temperaturen eine inhomogene Verbreiterung aufgrund von QP-Größenfluktuationen besitzt, wie schon in Abschnitt 4.2 beschrieben. Die Halbwertsbreite der InP-QP bei T = 8 K beträgt 22 meV.

Bei RT beobachtet man für den Dreifach-QP-Stapel eine HWB von 82 meV bei RT. Dass die Größenfluktuationen, die sich in der HWB von 22 meV bei 8 K manifestiert haben, eine so große Temperaturabhängigkeit aufweist, ist sehr unwahrscheinlich. Zu höheren Temperaturen hin steigt bei den InP-QP mit endlicher Barriere von ca. 200 meV die Rate der thermisch aus den QP emittierten Ladungsträger, die von anderen QP eingefangen werden. Die QP sind thermisch gekoppelt und es stellt sich ein thermisches Gleichgewicht ein, was eine Verbreiterung des Spektrums bei RT erklären könnte. Allerdings zeigen einfache Rechnungen, dass die beobachtete HWB mit diesem Model nicht erklärt werden kann.

Für den QF erklärt sich eine thermische Verbreiterung bei höherer Temperatur durch Faltung der konstanten Zustandsdichte (im idealen 2D-System) mit der Fermifunktion, welche ein mit $e^{-h\nu/kT}$ verbreitertes EL-Spektrum zur Folge hat, wie in der Abbildung 5.24 (b) gezeigt ist. Die beobachtete thermisch induzierte Verbreiterung des QF-Spektrums bei RT auf HWB von 45 meV ist vergleichbar mit den Werten anderer Gruppen [Toi96].



Abbildung 5.24 Photolumineszenzspektren eines 5 nm dicken $Ga_{0,3}In_{0,7}P$ -Quantenfilmes und eines Dreifachstapels mit 3 × 3,5 nm InP-Quantenpunkten bei (a) T = 8 K und (b) bei Raumtemperatur. Einschübe in (b): Schematische Erläuterungen zu den jeweils dominierenden Effekten, die für die HWB des spontanen Spektrums des QF und der QP verantwortlich sind. Bei RT entsteht die Verbreiterung beim QF durch die Faltung der 2-dimensionalen Zustandsdichte mit der Fermi-Funktion. Bei den QP verbreitert sich das Spektrum durch Leckströme in Benetzungsschicht (WL) und Barriere.

5.4.2 Vergleich der Lasercharakteristika

In der folgenden Abbildung 5.25 ist die Entwicklung der EL-Spektren des Einzel-QF-Lasers bei RT unterhalb und oberhalb des Schwellstromes ($I_{thr} = 3,9$ A) gezeigt. Man erkennt, ähnlich wie in Abbildung 5.15 des QP-Lasers, dass die Lasertätigkeit erst einsetzt, wenn der Grundzustand in Sättigung gerät. Ungeklärt bleibt die, verglichen mit den PL-Spektren, gemessenen HWB von ca. 85 meV der EL-Spektren bei RT für beide Laserstrukturtypen.



Abbildung 5.25 Laserspektren eines Quantenfilmlasers für verschiedenn Pumpströme bei RT

Die Entwicklung der Schwellstromdichte j_{thr} mit der Temperatur für einen QP-Laser und einen QF-Laser ist in Abbildung 5.26 (a) dargestellt. Während sich die Schwellen für beide Laserstrukturen bei Temperaturen zwischen 50 K und 150 K kaum von einander unterscheiden, steigt die Schwellstromdichte für den QF-Laser stärker mit der Temperatur als für den QP-Laser. Bei T = 50 K ist die Schwellstromdichte für beide Laserdioden $j_{thr} \approx 50 \text{ A/cm}^2$. Die charakteristische Temperatur beträgt $T_0 = 47 \text{ K}$ bei RT für den QF-Laser und liegt damit leicht unterhalb des Wertes für den QP-Laser ($T_0 = 50$ K). Die Schwellstromdichte steigt also nicht - wie theoretisch für zweidimensionale Nanostrukturen angenommen - linear mit der Temperatur, sondern verhält sich ähnlich "real" wie der QP-Laser. Die niedrigen Werte für die charakteristische Temperatur T_0 lassen erahnen, dass die Lasereigenschaften von QP- und QF-Laser hier durch die Leckströme in die WL und Barriere dominiert werden. Ein Ausweg aus dem Dilemma wäre die Verwendung von quaternären Wellenleitern aus AlGaInP. Der Versuch QF in AlGaInP einzubetten ist hier leider nicht gelungen, denn diese zeigten keine Lumineszenz. Das Wachstum von licht-emittierenden InP-QP auf AlGaInP stellt ebenfalls zur Zeit für die MBE noch ein Problem dar [Zun99a], allgemein stehen InP-QP-Laser mit Al-haltigen Barrieren sowohl für die MOVPE als auch für die MBE noch aus [Por01].

Die Laserspektren bei $j = 1,3 \times j_{thr}$ sind im Einschub der Abbildung 5.26(a) noch einmal vergrößert dargestellt. Die Emissionsenergien liegen sehr dicht beieinander:

E = 1.68 eV (QF) und E = 1.70 eV (QP). Die Halbwertsbreite des QP Lasers bei RT ist mit 1,8 meV schmaler als die des QF Lasers (3,4 meV), was sich mit der Modellvorstellung der Reemission der Ladungsträger aus den QP in WL und Barriere erklären lässt, siehe Abschnitt 5.2.2. In Abbildung 5.26(b) ist die Energielage der Laserlinie bei j = $1,3 \times j_{thr}$ (Kreise) und für die spontane Emission bei $j = 0,6 \times j_{thr}$ (Dreiecke) für den QF- und QP- Laser in Abhängigkeit von der Temperatur gezeigt. Für Temperaturen bis ca. 200 K zeigt der QP-Laser Lasertätigkeit auf der Hochenergieseite des spontanen Spektrums, während oberhalb dieser Temperatur Lasertätigkeit auf der Niederenergieseite beobachtet wird. Der QF-Laser zeigt unterhalb von 200 K im Wesentlichen Lasertätigkeit aus dem Maximum des spontanen Emissionsspektrums, weil hier die Verstärkung des homogenen QF am stärksten ist. Bei tiefen Temperaturen liegt die Laserlinie energetisch knapp darüber. Der Energieunterschied zwischen spontanem Maximum und Laserlinie bei RT ist bei beiden Lasern fast gleich und beträgt ca. 10 meV. Aus Abschnitt 5.2.2 ist bereits bekannt, dass bei tiefen Temperaturen Ladungsträger zufällig auf die QP verteilt werden und aufgrund von fehlender thermischer Kopplung nicht in andere QP gelangen können, so dass bei tiefen Temperaturen nicht unbedingt die QP mit der kleinsten Emissionsenergie den Laserprozess beginnen müssen. Wie schon für die PL-Spektren erwähnt, ändert sich die Situation für höhere Temperaturen.

Wir wissen schon, dass eine Umverteilung der Ladungsträger über WL und Barriere zu einer Umbesetzung zugunsten der größeren QP mit niedrigeren Grundzustandsenergien führt. Für einen QF-Laser erwartet man für jede Temperatur, dass sich die dominante Lasermode auf der Niederenergieseite des spontanen Emissionsspektrums heraus entwickelt. Man beobachtet zu tieferen Temperaturen hin allerdings ein Abweichen von diesem erwarteten Verhalten. Die Laserlinie erscheint auf der Hochenergieseite, was man möglicherweise durch stimulierte Emission von angeregten Zuständen erklären kann.

Die Abbildung zeigt ebenfalls Querschnitts-TEM-Aufnahmen der Wellenleiter mit dem Dreifach-QP-Stapel und dem verspannten QF. Beim QF sind die Rauhigkeiten erkennbar, über deren Herkunft in 4.4.5 schon berichtet wurde.



Abbildung 5.26 (a) Schwellstromdichte für einen 4,5 nm dicken $Ga_{0,3}In_{0,7}P$ -QF-Laser und einen 3 × 3,3 ML InP-QP-Laser in Abhängigkeit von der Temperatur. Einschub: Laseremissionslinien beider Laserstrukturen für Anregungsstromdichten von $j = 1,3 \times j_{thr}$ bei RT. (b) Emissionsenergien der Laserspektren knapp oberhalb der Schwelle ($j = 1,3 \times j_{thr}$ Kreise) und der spontanen Emissionsspektren ($j = 0,6 \times j_{thr}$ Dreiecke) in Abhängigkeit von der Temperatur. Einschübe: Querschnitts-TEM-Aufnahmen des Dreifach-QP-Lasers und des QF-Lasers [Man01].

Wir wollen nun den Vergleich zwischen dem InP-QP-Laser mit dem GaInP-QF-Laser zum Abschluss bringen, indem die Laserkenndaten miteinander verglichen werden.

Dazu sollen zunächst die Modalverstärkungen $(g - \alpha_{int})$ der beiden Lasertypen miteinander verglichen werden, siehe Abbildung 5.27. Das Messverfahren wurde bereits in Abschnitt 4.4.5 vorgestellt. Beide Verstärkungskurven (T = 120 K) zeigen eine starke Anisotropie bzgl. der Hoch- und Niederenergieseite, ganz besonders ausgeprägt beim QP-System in Teilbild (b). Man beobachtet mit zunehmender Pumpleistung Verstärkung auf der Niederenergieseite und Absorption auf der Hochenergieseite. Ginge man von einem völlig ungekoppelten Ensemble von QP aus, so würde man eine gauss-förmige Verteilung der Verstärkung über der Emissionsenergie erwarten, denn die QP wären statistisch zufällig besetzt. Mit zunehmender Pumpleistung würde diese Gauss-Kurve höher werden. Das energetische Maximum der Verstärkung verschiebt im realen QP-System aber blau mit zunehmender Pumpleistung, weil angeregte Zustände aufgefüllt werden.

Läßt man laterale Kopplung benachbarter QP, deren Abstände weniger als 10 nm betragen, und Kopplung über Benetzungsschicht und Barriere zu, dann kann man die zunehmende Verstärkung auf der Niederenergieseite mit wachsender Anregungsleistung (im Bereich von mehreren kW/cm²) durch einen Ladungsträgertransfer von den kleinen zu den großen QP erklären. Für die kleinen QP bedeutet dieser Prozess einen intrinsischen optischen Verlust. Je stärker das System von außen gepumpt wird, desto mehr Verstärkungsmaximum verschiebt das energetische blau. Die dem OP-Verstärkungsspektrum ähnelnde Asymmetrie des QF-Verstärkungsspektrums ist auf die Filmrauhigkeit zurückzuführen, die elektrische Einschlüsse für die Ladungsträger darstellen.

Die beiden Laser verhalten sich recht ähnlich, wobei der QP-Laser etwas stärker blau verschiebt als das Verstärkungsspektrum des QF-Lasers (bei Erhöhung der Pumpleistung um ca. einen Faktor 1,7 bzw. 1,8 erhält man eine Blauverschiebung um dE = 11 meV bzw. 17 meV für QF- und QP-Laser).

Wie vergleichen sich die beiden Lasertypen bzgl. ihrer optischen Verstärkungen? Man kann die intrinsischen Verluste α_{int} direkt aus der Nettoverstärkung (g- α_{int}) ablesen: Sie beträgt für den QF-Laser $\alpha_{int} \approx (10 \pm 1)$ cm⁻¹ und für den QP-Laser $\alpha_{int} \approx (7 \pm 1)$ cm⁻¹.

Im Einschub der Abbildung 5.27 (a) sind die Maximalverstärkungen für den QP-Laser und QF-Laser gegenübergestellt. Die aus Abschnitt 4.4.5 bekannten orientierungsabhängigen modalen Verstärkungen des QP-Lasers sind hier mitausgewertet worden. Man erkennt noch einmal, dass die Verstärkung für die [1-10]-Orientierung für Anregungsleistungen ab ca. 2 kW/cm² sättigt, während sie in [110]-Orientierung linear mit der Anregungsleistung ansteigt. Ebenfalls deutlich erkennbar ist die Sättigungstendenz der modalen Verstärkung des QF-Lasers für Anregungsleistungen > 2 kW/cm². Die Nettomodalverstärkung beträgt für den QF-Laser bei einer Anregungsdichte von *P* = 2,2 kW/cm² g_{mod} = 23 cm⁻¹, für den QP-Laser bei 1,8 kW/cm² g_{mod} = 38 cm⁻¹. Die abgestrahlten Leistung des QF-Lasers ist also in [110] effektiver und somit stärker die des QF-Lasers, dessen Abstrahlcharakteristik isotrop ist. Das war auch der Grund für die deutlich geringere Schwellstromdichte des QP-Lasers mit Laser-Resonatororientierung in [110]-Richtung im Vergleich zu [1-10], siehe Abbildung 4.37.



Abbildung 5.27 Verstärkungsspektren eines (a) $Ga_{0,3}In_{0,7}P$ -QF-Lasers und eines (b) $3 \times 3,3$ ML InP-QP-Lasers bei T = 120 K in [110]-Richtung. Die externen optischen Pumpleistungen sind an die entsprechenden Verstärkungskurven gefügt. Einschub: Maximalverstärkung in Abhägngigkeit von der Anregungsleistung für beide Lasertypen.

Wenngleich auffällig ist, dass sich die beiden Lasertypen wirklich sehr ähnlich verhalten, besitzt der QP-Laser (in [110]- Richtung) die höhere Verstärkung bei T = 120 K. Nach Abbildung 5.26 besitzen ein 2 mm langer QF- und QP-Laser bei dieser Temperatur auch fast dieselben Schwellstromdichten. Da keine Daten für die optische Verstärkung bei RT zur Verfügung stehen, muss bei RT auf den Vergleich der optischen Ausgangsleistung und Schwellstromdichte zurückgegriffen werden. In der Abbildung 5.28 ist für beide Lasertypen die Schwellstromdichte j_{thr} in Abhängigkeit von den Spiegelverlusten α_{mirr} bei RT aufgetragen. Für jede Resonatorlänge zeigt der QP-Laser eine kleinere Schwellstromdichte. Für unendlich lange Resonatoren $L \rightarrow \infty$ erhielte man für den QF-Laser $j_{thr} = 3,1$ kA/cm², für den QP-Laser $j_{thr} = 1,15$ kA/cm².



Abbildung 5.28 Schwellstromdichte j_{thr} in Abhängigkeit von den Spiegelverlusten α_{mirr} bei RT. Für unendlich lange Resonatoren $L \rightarrow \infty$ erhielte man für den QF-Laser $j_{thr} = 3,1$ kA/cm², für den QP-Laser $j_{thr} = 1,15$ kA/cm².

In der Abbildung 5.29 ist die optische Leistung über die Schwellstromdichte für den Dreifachstapel-QP und den Einfach-QF-Laser mit Resonatorlänge L = 2 mm gegenübergestellt. Die Schwellstromdichte für den QP-Laser ist ca. halb so groß wie für den QF-Laser. Während der QP-Laser bei ca. 4 kA/cm² 250 mW Spitzenleistung ohne Sättigung zeigt, gerät der QP-Laser ab ca. 100 mW bei einer Stromdichte von 8 kA/cm² deutlich in Sättigung. Die Quantenausbeuten betragen $\eta_{ext} = 21,5$ % für den QP-Laser und $\eta_{ext} = 2,5$ % für den QF-Laser. Man muss an dieser Stelle klar unterscheiden: Der Vergleich der optischen Ausgangsleistungen der beiden Bauteile ist nicht ganz fair, weil die Stapelung der QP-Schichten eine Vervielfachung der Maximal-Verstärkung bewirkt. Allerdings ist der Vergleich der Schwellstromdichten durchaus berechtigt, weil wir jeweils das System mit der kleinsten möglichen Schwelle bei RT betrachten.



Abbildung 5.29 Optische Leistung in Abhängigkeit von der Schwellstromdichte eines 4,5 nm dicken $Ga_{0,3}In_{0,7}P$ Quantenfilmes und eines Dreifachstapels mit 3 × 3,3 ML InP-Quantenpunkten bei RT. Elektrische Anregung mit $\tau = 500$ ns Pulsen, Wiederholrate f = 20 kHz.

Abbildung 5.30 unterstützt diese Argumentation: bei RT wurde experimentell gefunden, dass ein Einzel-QP Laser nicht die Schwelle erreicht, also keine Lasertätigkeit zeigt. Das entspricht in der Abbildung dem Fall 2, bei dem die Verstärkung des Einzel-QP-Lasers gerade so groß ist wie die Verluste. Der Fall 1, bei dem die der Schwellstromdichte j_{thr} sowohl die Spiegelverluste α_{mirr} , als auch die internen Verluste α_{int} überwunden werden, tritt also nicht auf. Erst die Verstärkung eines gestapelten QP- Lasers reicht aus, um die Verluste zu kompensieren (3. Fall). Dafür muss man die höhere Stromdichte hinnehmen, die nötig ist, um Besetzungsinversion für die erhöhte Anzahl der aktiven Ladungsträger zu erreichen. Der Dreifach-QP Laser besitzt dann eine ca. 3fach so große Verstärkung verglichen mit dem Einzel-QP-Laser. Der Vergleich mit einem Dreifach-QF-Laser würde bezüglich der Schwellstromdichte also keinen Sinn ergeben, weil für dieses System eine noch höhere Schwelle zu erwarten wäre als für den Einzel-QF Laser.

Im Ergebnis zeigt das QP-System Lasertätigkeit bei geringeren Stromdichten als der QF-Laser für alle untersuchten Resonatorlängen von L = (0,5-2) mm bei RT. Zusammen mit der Beobachtung, dass der QP-Laser höhere Ausgangsleistungen erreicht als der QF-Laser, weil dessen internen Verluste größer sind, kann man für den Fall $j \propto g$ annehmen, dass sich die (wenngleich sicher nicht perfekte) 0-dimensionale Zustandsdichte der QP gerade für höhere Temperaturen, wie man in Abbildung 5.26 gesehen hat, positiv bemerkbar macht. Das kann nur sein, wenn die inhomogene Verbreiterung der spontanen Emission des QP-Lasers schmaler ist als die des QF-Lasers bei gleicher maximalen Verstärkung [Mor97]. Dieses "Wettrennen" fällt, wie wir gesehen haben, sehr knapp aus (vgl. Abbildung 5.15 und Abbildung 5.25).

Wenn man den in Abschnitt 4.4.5 beobachteten Effekt mitberücksichtigt, dass die optische Verstärkung des QP-Lasers aus den [110]-Facetten deutlich stärker ist als orthogonal dazu, während der QF-Laser in alle Raumrichtungen gleich stark abstrahlt, weil er sich optisch isotrop verhält, lassen sich die verbesserten QP-Lasereigenschaften aus diesem Sachverhalt heraus erklären.



Abbildung 5.30 Modellvorstellung zur Verdeutlichung des Zusammenhanges zwischen Schwellstromdichte und optische Verstärkung eines Einzel-QP Lasers und eines dreifach gestapelten QP-Lasers. Im 1. Fall kann der Laser die Verluste $\alpha_{int} + \alpha_{mirr}$ mit der Schwellstromdichte j_{thr} überwinden, im 2. Fall erreicht die Verstärkung die Schwelle gerade nicht, sondern sättigt vorher, wie es bei dem Einzel-InP-QP Laser bei RT der Fall ist. Im 3. Fall reicht die Verstärkung eines beispielsweise Dreifach-QP-Lasers aus, um die Verluste zu kompensieren und die Schwellbedingung ist für eine größere Schwellstromdichte j_{thr}^* erfüllt.

5.4.3 Modenspektren eines Quantenpunktlasers bei verschiedenen Anregungsströmen und verschiedenen Temperaturen

Reduziert man bei der Messung des Elektrolumineszenzspektrums die Schrittweite des Monochromators auf 0,01 nm und wählt eine große Integrationszeit (z.B. 1 s), kann man die "Moden" der Laserspektren auflösen. Es gibt zweierlei Arten von Moden: Eigenschwingungen der elektromagnetischen Wellen senkrecht und parallel zur optischen Ausbreitungsrichtung des Laserlichtes. Man nennt die Moden parallel zur Ausbreitungsrichtung longitudinale Moden. Die transversal elektrischen Moden heißen TEM. Im TEM₀₀-Modus hat der Laserstrahl eine gauss-förmige Intensitätsverteilung senkrecht zur Ausbreitungsrichung. Für unsere Breitstreifen-Laser mit Breiten von 50 μ m ist allerdings mehrmodiger Betrieb zu erwarten.

Im Folgenden sollen die longitudinalen Moden betrachtet werden. Da die betrachteten Laser relativ hohe Schwellströme besitzen, also die Gefahr der Aufheizung des Materials besteht, soll hier nur im "Quasi-CW" - Modus gearbeitet werden, d.h. die Wiederholfrequenz wird von 20 kHz auf 100 kHz erhöht, die Pulsbreite beträgt 500 ns. In der folgenden Abbildung 5.31 sind die Modenspektren für einen $3 \times 3,3$ ML InP-QP-Laser bei T = 80 K ab einem Anregungsstrom von I = 60 mA bis zu I = 140 mA gezeigt. Die Schwelle liegt nach der PI-Kennlinie in Abbildung 5.32 bei 60 mA. Man kann hier schön sehen, dass an der Laserschwelle gerade eine Mode zu dominieren beginnt. Sie befindet sich ziemlich genau im spektralen Maximum des Emissionsspektrums. Entgegen der Erwartung, dass sich die Intensität dieser maximalen Mode bei stärkerem Pumpen vergrößert, beobachtet man bei einem Strom von $I = 1,3 \times I_{thr}$, dass eine ganz andere Mode auf der niederenergetischen Seite des Spektrums dominiert. Bei weiterer Erhöhung der Anregung verändert sich die energetische Lage der dominierenden Mode (der Moden wie bei 120 mA). Diesen Effekt nennt man "Mode-Hopping"[Har98]. Eine weitere Beobachtung ist, dass die Moden unterhalb eines Anregungsstromes von 50 mA verschwinden. Wie kann man sich diese Effekte erklären?

Zunächst soll überprüft werden, ob es sich bei den beobachteten Oszillationen tatsächlich um Fabry-Pérot Moden, also um Eigenschwingungen der Laserkavität handelt, gefolgt von einigen Anmerkungen zur Auflösbarkeit der Spektren.

Um die Beobachtungen besser deuten zu können, wird das Verfahren von Hakki und Paoli zur Bestimmung der spektralen optischen Verstärkung aus den Modenspektren kurz vorgestellt und benutzt.

Für die longitudinale Eigenschwingung in dem geschlossenen Resonator gilt:

 $\frac{k\lambda}{2n} = L$, also auch $nL = k\lambda/2$

2n

Gleichung 5.21.

 λ : Wellenlänge

n: Brechungsindex des aktiven Mediums (n = 3,41 für Ga_{0,52}In_{0,48}P bei λ = 712 nm)

L: Resonatorlänge

k: ganze Zahl.

Das heißt, die optische Weglänge innerhalb des Resonators muss ein Vielfaches von $\lambda/2$ sein. (Auf den idealen Spiegeloberflächen müssen die transversalen elektrischen Felder Null sein, so dass im Resonator nur *k* Halbwellen Platz finden.) Man kann den Abstand zweier benachbarter Moden theoretisch aus der Ableitung nach der Wellenlänge λ bestimmen:

$$\frac{dk}{d\lambda} = 2L\frac{d}{d\lambda}\left(\frac{n}{\lambda}\right) = 2L\frac{\lambda\frac{dn}{d\lambda} - n}{\lambda^2}$$
 Gleichung 5.22

Daraus folgt für die Resonatorlänge L:

$$L = \frac{\lambda^2 dk}{2d\lambda n \left(\frac{\lambda}{n} \frac{dn}{d\lambda} - 1\right)}$$
 Gleichung 5.23

In der Annahme, dass die Dispersion $dn/d\lambda$ in dem betrachteten Energieintervall zwischen zwei benachbarten Moden vernachlässigbar klein ist, kann man näherungsweise schreiben:

$$L = \frac{\lambda^2}{2n \cdot d\lambda}$$
 Gleichung 5.24

Mit einer Emissionswellenlänge von $\lambda = 712$ nm, einer Resonatorlänge von L = 0,5 mm und n = 3,41 erhält man $\Delta \lambda = 1,49$ Å, was in in grober Übereinstimmung mit dem gemessenen Modenabstand von $\Delta \lambda = 1,2$ Å ist²⁴. Wir können nun überprüfen, ob die Auflösung des Doppelmonochromators mit dem Eingangsspalt der Breite $b \approx 50 \ \mu m$ ausreicht, um die Modentiefe vollständig auszumessen.

Berücksichtigt man nur die spektrale beugungsbedingte Auflösung des Gitterspektralapparates, so kann der Doppelmonochromator Spektrallinien bis auf $\Delta \lambda = 0,1$ Å auflösen. Diese Angabe wird aber noch durch die Öffnungsbreite des Ein- und Ausgangsspaltes $b_1 = b_2 = b$) begrenzt. Man kann die Spaltbreite nicht unendlich verkleinern, weil die Intensität mit abnehmender Spaltbreite aus zwei Gründen kleiner wird: Der beleuchtete Eingangsspalt erzeugt als bündelbegrenzende Apertur ein Beugungsbild. Verkleinert man den Spalt zu sehr, dann kann nicht alles Licht der zentralen Ordnung durch das Spektrometer gelangen. Weiterhin hängt die transmittierte Strahlungsleistung von der Spaltfläche ab. Ist die Spaltbreite kleiner als das Bild der Lichtquelle, verkleinert man diese. Es gibt eine Minimalspaltbreite, unterhalb der sich das spektrale Auflösungsvermögen nicht weiter steigern läßt und die Lichtintensität im Detektor abnimmt. Es existiert also ein Optimum für detektierte Lichtstärke und für das spektrale Auflösungsvermögen.

Für das kleinste noch auflösbare Wellenlängenintervall $\Delta \lambda$ bei einer Spaltbreite *b* und einer Brennweite *f* der Kollektorlinse gilt [Dem99]:

²⁴ Die Bestimmung ist nicht genauer möglich, da der Brechungsindex für GaInP bei 80 K nicht genau bekannt ist.

$$\Delta \lambda = \left(b + \frac{f\lambda}{a} \right) \frac{d\lambda}{dx}$$

Gleichung 5.25

Die lineare Dispersion beträgt $d\lambda/dx = 11,5$ Å/mm (bei $\lambda = 700$ nm) und die Apertur a = f/7,4 für unseren Monochromator. Somit erhält man mit $b = 50 \,\mu\text{m}$ für das kleinste messbare Wellenlängenintervall $\Delta \lambda = 0,64$ Å. Der gemessene Modenabstand entspricht ungefähr dem doppelten Wert der messbaren Auflösung. Somit kann man davon ausgehen, dass die Modenspektren hinreichend aufgelöst werden konnten.



Abbildung 5.31 Modenspektren eines InP-QP-Lasers bei T = 80 K für verschiedene Anregungsströme. Länge des Resonators L = 0.5 mm, Modenabstand $\Delta \lambda = 1.2$ Å. Der Effekt des "mode hoppings" ist deutlich erkennbar.



Abbildung 5.32 Bestimmung der Schwellstromdichte des QP-Lasers bei T = 80 K aus der Abhängigkeit der optischen Ausgangsleistung des Lasers von der Pumpstromstärke. Man erhält $j_{thr} = 62$ A/cm².

Mit der 1973 von Hakki und Paoli vorgestellten Methode kann man die optische Verstärkung aus den gemessenen Modenspektrum bestimmen [Hak73,Hak75].

Für die Hakki-Paoli-Analyse wird zunächst ein Intensitätenverhältnis r_i für die i-te Resonatormode definiert:

$$r_{i} = \left(\frac{P_{i} + P_{i+1}}{2V_{i}}\right)$$
Gleichung 5.26

$$\Gamma g_i = \frac{1}{L} \ln \left(\frac{r_i^{1/2} + 1}{r_i^{1/2} - 1} \right) + \frac{1}{L} \ln R$$

1

Gleichung 5.27

mit Γ : optischer Füllfaktor

g_i: Materialverstärkung der i-ten Mode

- L: Länge des Resonators
- *R*: Reflektivität des GaInP mit $R \approx 0,3$.

 P_i bzw. V_i bezeichnen das Maximum bzw. Minimum der i-ten Mode. Die Schwellbedingung ist erfüllt, wenn die gesamte optische Verstärkung Γg_i gerade die internen Verluste (erster Term) und die Spiegelverluste (zweiter Term) kompensiert. Der Laser zeigt Transparenz, wenn die Verstärkung gerade ausreicht, um die internen Verluste, aber noch nicht die Spiegelverluste zu kompensieren. Genaugenommen darf diese Methode nur gerade bis zur Schwellbedingung und nicht darüber angewendet werden, weil sich unterhalb der Schwellbedingung noch keine dominante Lasermode ausgebildet hat und das Verfahren Gültigkeit behält. Andererseits ist kohärentes Licht Voraussetzung für die Ausbildung von Resonatormoden. Das bedeutet, dass man die optische Verstärkung mit dieser Methode gerade für Anregungsströme zwischen der Transparenzstromstärke und der Schwellstromstärke anwenden darf. Die Anwendung obiger Methode bei Strömen $I >> I_{thr}$ bewirkt eine Abweichung der Verstärkungspektren von ihrer ursprünglichen Gauss-Form, welche die Einhüllende des Modenspektrums ist, solange man nicht stärker pumpt als bis zur Schwelle. Die Spiegelverluste α_{mirr} bestimmen sich für $L = 500 \,\mu\text{m}$ und einer Spiegelreflektivität R = 0.3 zu $\alpha_{mirror} = 1/L \ln (1/R) = 24 \,\text{cm}^{-1}$

Abbildung 5.33 zeigt das Modenspektrum bei I = 60 mA (a) und für 110 mA (c) sowie das zu (a) zugehörige Verstärkungsspektrum nach Hakki und Paoli für I = 60 mA (b). Bei dieser Stromstärke überwindet der Laser die Gesamtverluste gerade noch nicht. Nur die Hauptmode bei E = 1,790 eV erreicht fast die Verstärkung g = 0 cm⁻¹. Dass der Wert für die Verstärkung kleiner Null ist, kann entweder daran liegen, dass die Schwelle $j_{thr} > 60$ mA ist oder die Modulationstiefe doch nicht ganz exakt ausgemessen werden konnte. Abbildung 5.32 zeigt, dass der Schwellstrom $j_{thr} > 62$ mA beträgt. Das Verstärkungsspektrum ist annähernd gauss-förmig und hat eine HWB von 6 meV. Der ausgemessene Energiebereich entspricht gerade der Spitze im Maximum des mit der Strichlängenmethode bestimmten modalen Verstärkungsspektrums in Abbildung 5.27 (b). Bei Erhöhung des Pumpstromes auf 90 mA überwindet eine um $\Delta E = 0,7$ meV rotverschobene Mode die Verluste und wird zur dominanten Mode.



Abbildung 5.33 Entwicklung der Modenspektren für I = 60 mA(a) und 110 mA (c) eines Dreifach-InP-QP-Lasers und das zugehörige Verstärkungsspektrum (b) bei 60 mA nach Hakki und Paoli.

Eine wesentliche Beobachtung der Entwicklung der Moden mit zunehmender Anregungsleistung ist, dass man verschiedenen Moden verschiedene Quantenpunkt-Ensembles zuordnen kann. Der Abstand zwischen benachbarten Moden ist eine Eigenschaft des Resonators, während die Existenz von Modengruppen oder Einzelmoden in unvorhersagbarem spektralen Abstand voneinander ein Bild des "Füllzustandes" der Quantenpunkte darstellt. Betrachtet man die QP lateral untereinander als nicht oder nur schwach gekoppelt (einzige Wechselwirkung über Benetzungsschicht und Barriere), dann treten die einzelnen Moden nicht miteinander in Konkurrenz (no modecompetition). Das ist darauf zurückzuführen, dass die im Resonator hin- und herlaufende elektromagnetische Strahlung nur mit derjenigen Gruppe von laseraktiven QP in Wechselwirkung tritt, die bei der entsprechenden Resonanzfrequenz zum Verstärkungsprofil beiträgt. Daher können auch mehrere Moden gleichzeitig zur stimulierten Emission beitragen.

Für InAs-QP ist diese Beobachtung ebenfalls gemacht worden [Har99,Har98]. Wenn man sehr stark pumpt, dann kann man das Auftreten von ganzen Gruppen von Laser-Moden, die QP-Ensembles zugeordnet werden können, beobachten. Bei den InAs-QP Lasern treten sie bei Anregungsstromdichten von $j \ge 2 \times j_{thr}$ auf. Auf höhere Stromdichten habe ich für die InP/GaInP-QP verzichtet, um den Lasern kein frühzeitiges Lebensende zu bereiten.

In der folgenden Abbildung 5.34 sind Modenspektren desselben Lasers wie eben bei RT dargestellt. In (a) bis (d) beträgt die Anregungsstromdichte $j = 0.53 \times j_{thr}$, $0.8 \times j_{thr}$, $1.0 \times j_{thr}$ und $1.1 \times j_{thr}$. Interessanterweise erhält man bei RT sogar schon ein Modenspektrum für spontane Emission. In (a) wurde das Emissionsmaximum noch einmal zur Verdeutlichung vergrößert dargestellt. Der Modenabstand beträgt wieder $\Delta \lambda = 1.2$ Å. Die Intensitätsverteilung der Moden in (b)-(d) wird mit zunehmender Anregung immer inhomogener.

Dabei verschiebt das Maximum der Einhüllenden schwach rot und verbreitert sich leicht, was entweder durch Aufheizungseffekte innerhalb der Laserstruktur oder durch Lasertätigkeit kleinerer QP verursacht werden könnte. Letzterer Effekt wird noch dadurch unterstützt, dass mit zunehmender Anregung vor allem auf der Hochenergieflanke des Emissionsspektrums neue Moden entstehen.

Auch bei RT beobachtet man für die Laserstruktur mit der Resonatorlänge L = 0,5 mm, dass die Hauptmode im Maximum der spontanen Emission entsteht (E = 1,738 eV bei Schwellbedingung). Es sei hier nur angemerkt, dass man für längere Resonatoren, wie wir schon gesehen haben, stimulierte Emission von QP-Ensembles mit kleinerer Energie erwartet (bei 1,70 eV). Längere Resonatoren erlauben auch höhere optische Verstärkung [Zou98].

Gelangt die Verstärkung ab einer gewissen Anregungsleistung einiger QP-Gruppen in Sättigung, dann kann die Verstärkungskurve an manchen spektralen Stellen "einknikken." Man nennt das "spectral hole-burning [Kne95]. Aufgrund des bei höheren Temperaturen auftretenden Leckstromes in Benetzungsschicht und Barriere ist die Verstärkung der QP bei RT schwächer und somit sättigen sie leichter. Dieser Effekt könnte eine plausible Erklärung für die Unterdrückung einzelner Moden/Modengruppen und damit der Verringerung der Verstärkung für diese Emissionsenergien sein.



Abbildung 5.34 Modenspektren unterhalb und oberhalb der Schwelle eines L = 0,5 mm langen QP Lasers bei RT.

Die Entwicklung der Modenspektren kurz oberhalb der Schwelle mit der Temperatur zeigt die Abbildung 5.35. Man beobachtet neben der Rotverschiebung des Laserspektrums mit der Temperatur, die im Wesentlichen der Rotverschiebung der Bandkanten für GaInP und InP mit *T* folgt [Lan82], dass die Anzahl der Moden in einem Spektrum mit zunehmender Temperatur abnimmt. Man kann die Beobachtung mit dem Thermalisierungsmodell in Benetzungsschicht und Barriere erklären. Mit steigender Temperatur thermalisieren die Ladungsträger bevorzugt in die größeren QP, welche dann als erstes die Schwellbedingung erfüllen. Dadurch verringert sich die Anzahl der in Frage kommenden QP (QP-Ensembles) für den Lasertätigkeits-Prozess. Das erklärt auch, warum die dominierenden Moden mit steigender Temperatur ab ca. *T* = 200 K verstärkt auf der Niederenergieflanke der Emissionsspektren erscheinen.



Abbildung 5.35 Modenspektren eines $3 \times 3,3$ ML InP-QP-Lasers für Stromdichten knapp oberhalb der Schwelle bei verschiedenen Temperaturen.

5.4.4 Modenspektren eines kompressiv verspannten GaInP-Quantenfilmlasers bei 80 K

In der folgenden Abbildung 5.36 sind die Modenspektren eines Ga_{0.3}In_{0.6}P-QF-Lasers für Pumpströme von 170 mA bis 300 mA gezeigt. Wie bei der Vermessung der Modenspektren des QP-Lasers wird auch hier wieder im "Quasi-CW"-Modus gearbeitet, d.h. die Wiederholfrequenz beträgt f = 100 kHz, die Pulsbreite ist $\tau = 500$ ns. Man beobachtet ab einem Anregungsstrom von I = 170 mA, kurz oberhalb des Schwellstromwertes, Eigenmoden des Resonators, deren Abstand gemäß der Länge L = 1 mm, $\Delta \lambda = 0.6$ Å beträgt. Im Unterschied zu dem Verhalten des QP-Lasers, siehe Abbildung 5.31, findet beim OF-Laser kein sogenanntes "mode-hopping" statt. Das heißt, dass im Wesentlichen die Hauptmode aus dem Emissionsmaximum des Spektrums herauswächst. Allerdings kann man auch die relativ schlechte Seitenmoden-Unterdrückung erkennen, die ein Hinweis auf die nicht perfekt glatte Struktur des Resonators ist. Bei Stromstärken von I > 200 mA entwickelt sich neben dem Hauptmodenensemble eine schwache Nebenmodengruppe, die entweder angeregten Zuständen oder elektronischen Niveaus durch die Filmdickenfluktuationen zuzuordnen ist. Die erkennbare Rotverschiebung mit zunehmendem Pumpstrom kann durch Aufheizeffekte durch den eingeprägten Strom entstanden sein.



Abbildung 5.36 Modenspektren eines kompressiv verspannten $Ga_{0,3}In_{0,6}P$ -QF-Lasers (der Länge L = 1 mm) für Pumpströme von 170 mA bis 300 mA bei T = 80 K.

Die Berechnung der optischen Verstärkung $(g - \alpha_i)$ nach der Methode von Hakki und Paoli wurde ebenfalls für den QF-Laser durchgeführt. Wegen des kleinen Modenabstandes von $\Delta \lambda = 0,6$ Å konnte vermutlich die Modulationstiefe nicht ganz aufgelöst werden, was zu vermeintlich geringeren Verstärkungswerten geführt hat. Die Verstärkung ist im Emissionsmaximum am größten und erreicht bei 160 mA eine modale Verstärkung von -30 cm⁻¹, die HWB beträgt ca. 4 meV. Die Schwellstromdichte liegt bei ca. 170 mA.



Abbildung 5.37 Optische Verstärkungsspektren des QF-Lasers nach der Methode von Hakki und Paoli für Anregungsströme von I = 160, 250 und 300 mA. Der Schwellstrom beträgt bei T = 80 K 170 mA.

5.5 InP-Quantenpunktdioden auf Siliziumsubstrat

GaAs-basierte LEDs (licht-emittierende Diode)²⁵ und Laserdioden auf Silizium sind von großem technischen Interesse wegen der Kompabilität zur industriellen Silizium-Technologie. Allerdings birgt das Wachstum von GaAs auf Si schon wegen der Gitterfehlanpassung von 4,1 % und wegen der unterschiedlichen linearen Wärmeausdehnungskoeffizienten von GaAs ($\alpha = 6,86 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$) und Si ($\alpha = 2,92 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$) [Lan82] (bei RT) große Schwierigkeiten. Die Folge ist eine sehr große Dichte von Wachstumsdefekten (> 10^8 cm^{-2}), die man nur durch ausgetüftelte, sehr dicke Pufferschichten reduzieren kann. Im Materialsystem InGaAs/GaAs wurde schon von der Realisierung eines QP-Lasers mit einer Schwellstromdichte von 3,85 kA/cm² bei 80 K berichtet [Lin99].

Erst kürzlich wurde ein Verfahren vorgestellt, bei dem man sich die geringe Gitterfehlanpassung von Ge auf Si (6° offcut) zunutze machen kann. Man wächst ein relaxiertes, abgestuftes (graded) Übergitter aus Ge(Ge_xSi_{1-x}) auf Si. Dabei wählt man eine gewisse kompressive Verspannung in der Schicht so, daß der Unterschied des thermischen Expansionskoeffizienten der Materialien GaAs und Si minimal wird. Es wurden Laserstrukturen aus AlGaAs/GaAs-QF mittels MOVPE hergestellt, die bei $\lambda = 858$ nm emittieren und eine Schwellstromdichte von 577A/cm² aufweisen [Gro03].

Die hier vorgestellten Schichtstrukturen bestehen aus $1,5\mu$ m dicken GaAs-Pufferschichten mit eingebetteten In_{0,9}Ga_{0,1}As/GaAs-Übergittern, um die Anzahl der in den Querschnitts-TEM-Aufnahmen zu sehenden laufenden Versetzungen (engl.: threading dislocations) zu minimieren. Die Schichtstruktur entspricht im Wesentlichen denen der in der Dissertation von M. Zundel [Zun99a], [Zun99b]. In diesem Abschnitt sollen InP-QP-LEDs auf Si-Substrat aus Dreifachstapeln InP/GaInP vorgestellt werden.

III-V QP-Laser auf Si haben einen wichtigen Vorteil gegenüber QF-Lasern auf Si, da die Lumineszenz des gesamten QF durch die Existenz von laufenden Versetzungen geschwächt werden kann, währenddessen nur vergleichsweise wenig Schaden bei der QP-Lumineszenz entsteht, da nur ein Bruchteil der vorhandenen Inseln schwächer lumineszieren, wenn sie von solchen Versetzungen betroffen sind.

²⁵ Eine LED besitzt dieselbe Schichtstruktur wie ein Laser, wird allerdings immer unterhalb der Schwelle betrieben, weil stimulierte Emission nicht benötigt wird oder weil die Materialverstärkung nicht groß genug ist oder weil kein Resonator vorhanden ist.



Abbildung 5.38: Querschnitts-TEM-Aufnahme eines Dreifachstapels InP/GaInP auf Silizium

Der Dreifach-QP-Stapel ist in dem Ausschnitt einer Querschnitts-TEM-Aufnahme, gezeigt, siehe Abbildung 5.38. Das Foto zeigt, von oben nach unten betrachtet, das In-GaAs/GaAs-Übergitter, das mit Si für *n*-Leitung dotiert ist, gefolgt von einem 500 nm dicken GaAs:Si-Puffer. Auf diese, verglichen zur Startschicht relativ versetzungsarmen Pufferschicht wird der Wellenleiter aus GaInP gewachsen und der Dreifachstapel aus 3 \times 3,5 ML InP-QP darin eingebettet. Der Aufnahme entnimmt man, dass nur relativ wenige Inseln von Wachstumsstörungen durchzogen sind. Den Abschluss bildet eine 100 nm dicke GaAs-Schicht, die mit Be dotiert ist.

Nachdem die Prozessierung von Kantenemittern von InP-QP-Lasern auf Si-Substrat nicht zum erwünschten Erfolg geführt hat, weil die Spaltkanten anders als beim GaAs nicht die {110}-Oberflächen sind, sondern undeterminiert brechen, wurden Oberflächenemitter hergestellt. Zur Herstellung von *p*- und *n*-Kontakten wurden wieder die auch für die GaAs-basierenden Laser üblichen Standardprozesse verwendet. Es wurden zweierlei Ringe photo-lithographisch hergestellt, mit Außendurchmessern von $D = 400 \,\mu\text{m}$ und Ringbreiten von 50 μm . Die vom elektrischen Strom durchsetzte Fläche ist somit in derselben Größenordnung wie die eines Kantenemitterlasers mit Streifenbreite b = 50 μm und einer Kavitätslänge von L = 0,5 mm.



Abbildung 5.39: Vergleich der IU-Kennlinien eines InP-QP-Lasers auf GaAs (Kantenemitter) mit einer oberflächenemittierenden InP-QP-LED (gestrichelte Linien, Ringdurchmesser 400 μ m).

Die *I-U*-Kennlinie liefert einen differentiellen Widerstand im linearen Bereich von 16 Ω für die auf Si-basierende LED und 3 Ω für eine auf GaAs-basierende LED, siehe Abbildung 5.39. Die elektrischen Eigenschaften erklären sich durch die hohe Anzahl von Defekten in der Pufferschicht, welche die Dotiereffizienz reduziert.

Bei einer Temperatur von T = 10 K wurde das Spektrum in Abhängigkeit von verschiedenen Anregungsströmen vermessen. Angeregt wurde wieder wie bei den Lasern mit einem Rechtecksignal mit der Wiederholfrequenz von f = 20 kHz und Pulsdauer von $\tau = 500$ ns.



Abbildung 5.40: Spontane EL-Spektren bei 10 K an einem Kreisring mit $D = 400 \ \mu m$. Im Einschub ist die integrale Intensität und die HWB der EL-Spektren in Abhängigkeit vom Anregungsstrom dargestellt.

Wie man Abbildung 5.40 entnehmen kann, ist das energetische Maximum der spontanen Emission bei E = 1,72 eV lokalisiert und ändert seine Lage auch nicht bei höheren Anregungen. Die integrale Intensität nimmt wie auch die HWB mit dem Anregungsstrom nahezu linear zu, wobei ab I = 500 mA die Steigung der Intensität schon Sättigungseffekte zeigt. Die HWB beträgt für I = 120 mA 85 meV und vergrößert sich auf 120 meV bei 800 mA Anregungsstrom, siehe Abbildung 5.41. Die HWB eines typischen PL-Spektrums bei 8 K für einen $3 \times 3,5$ ML InP QP-Stapel auf Si beträgt nur ca. 30 meV, was andeutet, dass die Größenverteilung der QP trotz des nicht perfekten Wachstums sich kaum gegenüber den Bedingungen auf GaAs-Substrat verändert hat. Ein PL-Spektrum dieser LED bei 10 K ist als Einschub in Abbildung 5.40 gezeigt.



Abbildung 5.41 Integrale Intensität und Halbwertsbreite in Abhängigkeit des Anregungsstromes für die EL-Messungen aus Abbildung 5.40.

5.6 Zusammenfassung

Es wurden in diesem Kapitel InP-Quantenpunktlaser und ein kompressiv verspannter Ga_{0,3}In_{0,7}P-Quantenfilmlaser, die in derselben MBE-Maschine unter denselben Wachstumsbedingungen hergestellt worden sind und auf fast derselben Wellenlänge emittieren, miteinander verglichen. Nach meinem Kenntnisstand ist es das erste Mal in der Literatur, dass ein QP-Laser mit einem QF-Laser mit exakt derselben Wellenleiterstruktur, derselben Resonatorlänge und denselben Wachstumsbedingungen verglichen worden ist.

Das Ergebnis des Vergleiches ist, dass sich QP- und QF-Systeme in diesem Materialsystem nicht sehr stark unterscheiden. Zum einen, weil die elektrischen Eigenschaften bei hohen externen Anregungen und Raumtemperatur stark von den Leckströmen der Ladungsträger in die Benetzungsschicht, die energetisch nur 130 meV von dem Grundzustandsniveau (1,75 eV) der QP getrennt liegt, und in die GaInP-Wellenleiter-Barriere, geprägt sind. Zum anderen, weil die optischen Eigenschaften wegen der starken asymmetrischen Größenfluktuationen weder sehr QP-typisch, noch wegen der u.a. ordnungsbedingten (s. Kapitel 4) Oberflächenrauhigkeiten QF-typisch sind.

Trotzdem konnte festgestellt werden, dass insbesondere bei RT der QP-Laser in seinen Lasereigenschaften gegenüber dem QF-Laser im Vorteil ist. Während die Schwellstromdichten bei 50 K für beide Lasertypen deutlich < 50 A/cm² beträgt, liegt die Schwellstromdichte mit knapp 4 kA/cm² des 2 mm langen QF-Lasers doppelt so hoch wie die des vergleichbaren QP-Lasers mit 2 kA/cm² bei RT. Der Grund für diesen Effekt kann man in der Temperaturabhängigkeit der Schwelle suchen. Sie ist für das QP-System deutlich temperaturunabhängiger. Das könnte ein Hinweis auf eine δ -förmige Zustandsdichte eines null-dimensionalen Systems sein, der wir einige theoretisch vorhergesagten verbesserten Lasereigenschaften verdanken. Auf der anderen Seite haben wir aus Kapitel 4 gelernt, dass der QP-Laser seine verbesserten Lasereigenschaften gerade der beschriebenen optischen Anisotropie verdankt. Während sich die Abstrahlcharakteristik beim QP-Laser auf eine Richtung konzentriert, zeigt der QF-Laser ein völlig isotropes Verhalten.

Im letzten Abschnitt 5.4.1 konnten Elektrolumineszenzspektren von LED-Strukturen mit $3 \times 3,5$ ML InP-QP-Stapeln auf Si-Substraten für verschiedene elektrische Anregungen bei T = 10 K demonstriert werden. Eine Verbesserung der elektrischen und optischen Eigenschaften dieser Dioden ist mit einer weiteren Reduktion der Versetzungsdichte zu erwarten und scheint bisher durch die Herstellung noch dickerer GaAs-Puffer teilweise zu gelingen.

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden InP-(Quantenpunkte) QP und kompressiv verspannte $Ga_xIn_{1-x}P$ -(Quantenfilme) QF strukturell und optisch untersucht und für die Anwendung für niederdimensionale kanten-emittierende Laser optimiert und verglichen.

InP-QP mit Wachstumsraten von 0,5 ML/s und 0,01 ML/s bei verschiedenen Wachstumstemperaturen wurden mittels MBE hergestellt und vermessen. Anhand von AFM-Messungen an nicht-überwachsenen Inseln konnte festgestellt werden, dass die QP in diesem Materialsystem in die Kristallrichtung [1-10] stark ausgedehnt sind. Anhand von optischen Untersuchungen konnte neben der geometrischen Anisotropie auch eine starke optische Anisotropie nachgewiesen werden.

Durch dichte Stapelung der QP wird eine Homogenisierung der Größenverteilung beobachtet [Zun97]. Um die für Laseranwendungen optimale Stapelkonfiguration zu finden, wurden Einfach-QP-Schichten, Doppelschichten und Dreifachschichten mit jeweils unterschiedlich dicken GaInP-Zwischenschichten hergestellt und die spontanen Photolumineszenz-Spektren gemessen. Mit Hilfe von Magnetolumineszenzmessungen ist es möglich gewesen, Aussagen über die Ausdehnung der Wellenfunktionen von den Elektronen und Löchern an den verschiedenen Quantenpunktstapeln zu treffen. Die gemessenen diamagnetischen Verschiebungen der PL-Energielagen liefern die Exzitonenmasse und -radius. Es stellte sich heraus, dass sich die Löcherwellenfunktion im dicht gestapelten Dreifach-QP-Stapel in Wachstumsrichtung über den gesamten Stapel erstreckt, während die Elektronen in die obersten QP-Lage tunneln, weil sich hier aufgrund der vertikalen Stapelung die größten Inseln mit dem stärksten Lokalisierungspotential befinden. Das heißt, dass bei einem dichtgestapelten InP-QP-Stapel an der Grenzschicht zwischen den QP und der Zwischenschicht GaInP ein Typ-II-Heteroübergang vorliegt. Das konnte durch anregungsabhängige PL-Messungen an einer Einzelschicht und einer Dreifachschicht von InP-QP nachgewiesen werden: Während sich die Emissionsenergie der Einzelschicht mit zunehmender Anregungsleistung nicht ändert, zeigt die PL-Energie des Dreifachstapels eine Blauverschiebung.

Weiterhin wurden die Ordnungsphänomene des Wellenleitermaterials GaInP und die sich daraus ergebenden Konsequenzen für die optischen Eigenschaften der darin eingebetteten niederdimensionalen Strukturen untersucht.

InP/GaInP-QP haben eine anisotrope Form und emittieren Licht mit Polarisationsrichtung entlang ihrer Ausdehnung ([1-10]-Richtung). Stapeln der Punkte mit dünnen Zwischenschichten führt durch Verspannungskopplung zu einer Verstärkung der Elongation der Inseln in [1-10]-Richtung und zu einer Erhöhung des Polarisationsgrades. Die Frage, ob sich die Inseln nur deshalb optisch so anisotrop verhalten, weil sie in einem hoch anisotropen Material eingebettet sind oder ob die Polarisationseigenschaften durch die Geometrie der QP bestimmt werden, konnte beantwortet werden: Beim dreifachen Stapeln von InP-QP erhöht sich der Polarisationsgrad von 50 % für eine Einzelschicht auf 60 %, während er für das sie umgebene Wellenleitermaterial unverändert 50 % beträgt. Für die QP mit Wachstumsrate 0,01 ML/s beobachtet man den gleichen, noch verstärkten Effekt. Außerdem konnte beobachtet werden, dass ein Zusammenhang zwischen der geometrischen Ausdehnung der QP und dem Polarisationsgrad besteht, so dass der Polarisationsgrad von der nominellen InP-Schichtdicke abhängt. Diese experimentellen Befunde deuten darauf hin, dass die geometrische Form der InP-QP die ordnungsinduzierte Anisotropie des GaInP dominiert.

Für kompressiv verspannte $Ga_xIn_{1-x}P$ -QF konnte keine Anisotropie festgestellt werden: Die untersuchten QF verhalten sich optisch isotrop, obwohl sie in einem hochanisotropen Puffer eingebettet sind, was wiederum gegen einen maßgeblichen Einfluss der Ordnungseffekte des $Ga_{0,52}In_{0,48}P$ auf die in ihr eingebettete Nanostruktur spricht. Das konnte mit einem einfachen Modell erklärt werden:

Wird auf eine Ga_{0,52}In_{0,48}P-Oberfläche wenige Nanometer indium-reiches GaInP als QF abgeschieden, dann kann es zu einem diffusiven Materialstrom zwischen den Inund Ga-reichen Domänen kommen. Dadurch werden die Höhenkorrugationen ausgeglichen und der Quantenfilm wird glatter. Die Ordnung des darunterliegenden Puffers in einem dünnen verspannten Quantenfilm kann nicht aufrecht erhalten werden. Der QF in den Ga-reichen Gebieten wird durch den diffusiven Materialfluss dicker, dafür in den In-reichen Gebieten dünner. Da der Ladungsträgereinschluss in den In-reichen Gebieten größer ist, dafür aber die spontane Emission mit verringerter QF-Dicke zu höheren Energien schiebt, gleichen sich die Effekte der beiden Gebiete gerade aus. Damit hat der QF überall ungefähr eine konstante effektive Schichtdicke d_{eff} und verhält sich somit wie ein klassischer QF, der optisch isotrop ist [Zor93]. Die Anisotropie des GaInP-Wellenleiters hat sich also nicht auf die optische Anisotropie des QF übertragen.

Am Ende des 4. Kapitels wurde der Einfluss der Polarisationseigenschaften auf die Lasereigenschaften untersucht und interpretiert [Man03]. Dazu wurden optische Verstärkungsspektren mit Hilfe der sog. Strichlängenmethode nach Shaklee *et al.* [Sha71] für die TE- und TM-Mode des Laserresonators mit einer Strichausrichtung entlang der QP und senkrecht dazu gemessen. Zunächst beobachtet man, dass die TM-Mode des verstärkten Emissionssignals stark unterdrückt ist, d.h. die TE-Mode dominant ist. Man erhält deutlich höhere modale Verstärkung eines InP-QP-Lasers in [110] Richtung als senkrecht dazu, während die Verstärkung für den QF-Laser völlig orientierungsunabhängig ist. Das heißt für den QP-Laser, dass die Oszillatorstärke der TE-Mode senkrecht zur Elongationsrichtung der Inseln stärker ist als parallel zu ihrer Ausdehnung. Die Abstrahlcharakteristik der Inseln ähnelt der von Hertzschen Dipolen: Sie strahlen immer orthogonal zu ihrer Ausdehnungsrichtung ab [Man03]. Das konnte mit Laserelementen, deren Resonatoren in Richtung der QP-Ausdehnung und senkrecht dazu ausgerichtet wurden, nachgewiesen werden: Die Schwellstromdichte für die Resonatoren in [110]-Richtung sind um 45 % geringer.

In Kapitel 5 wurde ein InP-QP-Laser mit einem kompressiv verspannten GaInP-QF-Laser verglichen. Beide Laser wurden unter denselben Wachstumsbedingungen in einer MBE-Maschine hergestellt und emittieren auf fast derselben Emissionswellenlänge. Die vergleichende Studie beschäftigt sich u.a. mit der Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichte, die Aufschluss über die thermisch induzierten Populations-mechanismen der Ladungsträger geben kann, der spektralen optischen Verstärkung und der Quantenausbeute.

Beide Diodenstrukturen zeigen Lasertätigkeit auf dem Grundzustand mit einer Wellenlänge von $\lambda = 732$ nm für den QP-Laser und 741 nm für den QF-Laser bei Raumtemperatur. Die Schwellstromdichte des QP-Lasers beträgt bei RT $j_{thr} = 1,8$ kA/cm², die des QF-Lasers ist doppelt so groß und beträgt 3,9 kA/cm². Für T < 80 K zeigen beide Laserdioden stimulierte Emission mit Schwellstromdichten < 100 A/cm², welche exponentiell mit der Temperatur ansteigt. Trotz der vielversprechenden niedrigen und annähernd temperaturunabhängigen Schwellströmen bei tiefen Temperaturen, verursacht der mangelnde Ladungsträgereinschluss bei höheren Temperaturen die hohen Schwellstromdichten. Durch Anpassen der Schwellstromdichtewerte in Abhängigkeit der Temperatur kann ein Maß für die Laserqualität berechnet werden: Der Bestwert für die sog. charakteristische Temperatur beträgt für den QP-Laser $T_0 = 50$ K und liegt somit etwas über dem Wert für den QF-Laser.

Während der QP-Laser bei tiefen Temperaturen Lasertätigkeit auf einem angeregten Niveau zeigt und erst ab einer Temperatur von T > 200 K Lasertätigkeit aus dem Grundzustand aufweist, beobachtet man für den QF-Laser für jede Temperatur stimulierte Emission aus dem Grundzustand. Diese Beobachtung ist auf einen thermisch bedingten Kopplungsmechanismus der QP mit der sie umgebenen Benetzungsschicht und Wellenleiter zurückzuführen.

Die Nettomodalverstärkung beträgt für den QF-Laser bei einer Anregungsdichte von $P = 2,2 \text{ kW/cm}^2 g_{mod} = 21 \text{ cm}^{-1}$, für den QP für 1,8 kW/cm² $g_{mod} = 37 \text{ cm}^{-1}$.

Wenngleich auffällig ist, dass sich die beiden Lasertypen sehr ähnlich verhalten, besitzt der QP-Laser eine höhere Verstärkung bei T = 120 K. Bei dieser Temperatur besitzen ein 2 mm langer QF- und QP-Laser auch fast dieselben Schwellstromdichten. Bei RT beobachtet man für jede Resonatorlänge für den QP-Laser eine kleinere Schwellstromdichte als für den QF-Laser. Für unendlich lange Resonatoren $L \rightarrow \infty$ erhielte man für den QF-Laser $j_{thr} = 3,1$ kA/cm², für den QP-Laser $j_{thr} = 1,15$ kA/cm².

Während der QP-Laser bei ca. 4 kA/cm² 250 mW Spitzenleistung ohne Sättigung zeigt, sättigt der QF-Laser ab ca. 100 mW bei einer Stromdichte von 8 kA/cm² deutlich. Die Quantenausbeuten betragen $\eta_{ext} = 21,5$ % für den QP-Laser und $\eta_{ext} = 2,5$ % für den QF-Laser. Man muss an dieser Stelle klar unterscheiden: Der Vergleich der optischen Ausgangsleistungen der beiden Bauteile ist nicht ganz fair, weil die Stapelung der QP-Schichten eine Vervielfachung der Verstärkung bewirkt. Allerdings ist der Vergleich der Schwellstromdichten durchaus berechtigt, weil wir jeweils das System mit der kleinsten möglichen Schwelle betrachten.

Zusammen mit den Ergebnissen aus der orientierungsabhängigen Verstärkungsmessung und der Bestimmung der Schwellstromstärke des QP-Lasers mit Resonator in [110]-Orientierung und orthogonal dazu, läßt sich daraus schließen, dass die verbesserten QP-Lasereigenschaften in diesem Materialsystem eine Folge der optischen Anisotropie der QP ist.

Zusätzlich konnte Elektrolumineszenz bei 8 K von InP-QP-Laserdioden auf Si-Substrat nachgewiesen werden. Eine Verbesserung der optischen Eigenschaften dieser Strukturen ist durch Optimierung der InGaAs/GaAs-Übergitter zu erwarten, welche die Versetzungsdichte senken, die beim Wachstum von GaAs auf Si entstehen und die Lumineszenz der QP senken kann.

Kapitel 7 Summary

Semiconductor laser diodes rank among the most important devices based on lowdimensional structures, because their application ranges from optical data storage systems, communication networks, barcode scanning to entertainment devices like CD and DVD players. They are nowadays mostly based on quantum wells (QW) as optical active region, because of the reduced density of states compared to heterostructure lasers, which implies a reduced threshold current density. Today, the worlds record lowest threshold current density for a 3 mm long laser resonator is 44 A/cm² for a single In-GaAs/GaAs QW laser [Dio96]. Futhermore, at the beginning of the nineteeneightees Arakawa *et al.* discovered that when the dimensionality of the density of states is reduced the threshold current density of a semiconductor laser should also reduce [Ara82], [Asa86].

Self-assembled quantum dots (QDs) grown in the Stranski-Krastanov (SK) mode have attracted much interest for optical devices in the past years [Hin00], [Por00b], [Man00]. In 1994 the first QD laser with In(Ga)As QDs has been presented, emitting at the wavelength of $\lambda = 1,3 \mu m$, which is an important wavelength for telecommunication, since the most optical fibers are used in industry have an absorption minimum at this wavelength [Kir94].

QDs exhibit a zero-dimensional density of states and are therefore believed to present several desireable device features such as low and temperature independent threshold currents, increased material gain and chirp free operation for example [Ara82], [Asa86], [Koc86]. Sheechin has reported the world record lowest threshold current density of $j_{thr} = 19$ A/cm² for a L = 20 mm long laser-cavity with In(Ga)As-QD laser diodes at room temperature (RT) [Shc00]. Generally, QD laser diodes suffer from non-ideal quantum confinement of the carriers in the QDs. Current leakage over the barrier and other non-radiative effects may occur. This happens especially in material systems for the visible wavelength range like (Ga, Al)InP/(Al)GaInP, because they have smaller thermal barriers compared to the In(Ga)As/GaAs system, and therefore show mediocre thermal stability [Faf98], [Rie98].

Recently, red-light emitting laser diodes, consisting of self-assembled InP QDs, grown by solid source molecular beam epitaxy (SSMBE) and by metal-organic chemical vapour deposition (MOCVD) have been reported to operate at room temperature [Por00a], [Man00].

In this work, we investigate the MBE-growth, fabrication and optical characterisation of InP QDs and compressively strained $Ga_xIn_{1-x}P$ QWs for laser applications.

For a single layer of self-assembled grown InP QDs the ability to control the island size, shape and distribution is limited by the growth parameters as temperature, growth-rate and pressure. In these structures, the number of layers, the separation and the amount of material in each layer can be tuned.

In the first layer the self-assembled growth of the InP QDs results in a spontaneous formation of gaussian distributed nanometer sized islands due to strain reduction. The fluctuations in the size distribution in the following dot layers can be reduced by growing sufficiently small spacer thicknesses: After introducing further layers of GaInP ma-

terial on top of the InP QDs, the formation of dots preferentially starts directly above the underlying dots due to the dilation of the GaInP lattice at these sites.

In this work, the effects of coupling between the dots the specific nature of the heterostructure in real space has been studied.

With magneto-photoluminescence (PL) it is possible to measure the electron and hole radius and the effective masses of both types of carriers in the QD-stacks. For a closely (separation thickness d = 4 nm) stacked system with 3 layers of InP QDs the large hole radius and the small effective mass in the coupled system compared to an uncoupled system indicates that the holes are spread over the whole stack in the growth direction, whereas the electrons are strongly confined in the QD layers. We speak about an uncoupled stack when the separation thickness is larger than 8 nm, where both the effect of mechanical strain and the electronic coupling between the dots in different layers is very small. This generally results in a broad linewidth of the spontaneous emission spectrum.

These experimental facts indicate a type II heterostructure for a closely (electronically coupled) threefold stack of InP QDs/GaInP. Excitation dependent PL-measurements support this assertion because the emission energy of a closely stacked threefold stack is blueshifted whereas no shift is observed for a single QD layer, see fig. 4.17. The optical transition energy shifts to higher values because the electronic level in the conduction band shifts due to the band-bending more than the level for the holes in the valence band, as schematically shown in fig. 4.18. This has been also used to explain the type II behavior of other material systems as GaSb QDs/GaAs [Hat95].

For a doubly stacked QD system the extent of the holes is strongly dependent on the amount of InP material in the second layer. PL measurements show that the electrons are located in the layer with the largest dots. When two dot layers are grown with the same InP amount the electrons occupy the upper layer, because here the dots are larger as a consequence of strain-induced growth in the upper layer. For a smaller InP amount in the dots of the upper layer the electrons are located in the lower layer. The extent of the hole wavefunctions can be explored with PL-measurements under high magnetic fields. We observe a reduction of the hole wavefunction width which is attributed to an increased localization of the strain field as the amount of InP material in the dots of the upper layer is reduced.

To investigate the geometric and optical anisotropy of the InP QDs, AFM (<u>a</u>tomic <u>force microscopy</u>) measurements have been performed. We know that the shape of the InP QDs is not isotropic but strongly elongated in [1-10] crystal direction and have typical lengths of (50 ± 10) nm and widths of (30 ± 10) nm and heights of $(4\pm2$ nm).

PL measurements reveal that the optical transitions of both the dots and the surrounding GaInP material takes place preferably for light polarized along this direction. Whereas the embedded compressively strained $Ga_xIn_{1-x}P$ QWs behave almost isotropically. This observation is shown in fig. 4.30. In (a) the PL-spectra of a single QD layer with 3.7 ML InP at 5 K for light polarized in [110] (straight lines) and in [1-10] (dotted lines) direction are presented. In (b) the corresponding spectra for a 8 nm thick $Ga_{0.4}In_{0.6}P$ QW are shown. The degree of polarization *P* for the QDs, the QW and the $Ga_{0.52}In_{0.48}P$ waveguide are denoted in the figures. The degree of polarization *P* is de-

fined by $P = \frac{I_{[1-10]} - I_{[110]}}{I_{[1-10]} + I_{[110]}}$, where $I_{[xyz]}$ denotes the PL intensity in [xyz] crystal direc-

tion. The PL emission is detected in the growth direction. We observe typical polarization degrees for bulk GaInP of 50% to 60%, 45 % for the single QD layer and only 8 % for the strained QW.

To interpret these results, further information is required. Firstly, the origin of the high degree of polarization in the waveguide material and secondly, why the QDs behave so differently compared to the QW, despite that both nanostructures are embedded in the same highly anisotropic material.

It is known that the anisotropic behavior of MOCVD grown GaInP is due to long range ordering (LRO), where the group III-elements occupy those lattice sites of the fcc (face centered cubic) structure, which form planes in {111}-directions (Cu-Pt_B type of ordering). It has been shown theoretically and experimentally that the optical transitions of excitons in LRO structures are preferred for light polarized along the [110] direction due to the splitting of the valence band maxima [Mas89]. InP/GaInP QDs grown by MOCVD also reveal a strong structural and optical anisotropy and are polarized in [110] direction, too [Zwi01]. The anisotropy of gas-source MBE (GSMBE) grown GaInP is explained by lateral composition modulation (lateral CM) [Hon99], [Son01] of Indium (In)-rich peaks and Gallium (Ga)-rich valleys with a period of 10 to 20 nm, which was shown by TEM (transmission electron microscopy) measurements in literature. This behaviour is not observed in our samples. The electrons (e) are confined in the In-rich areas, and the holes are loosly bound.

The PL-spectra of strongly CuPt-ordered GaInP, grown by MOCVD show two maxima. The low energy maximum belongs to the e-lh (light hole) transition and the high energy peak to the e-hh (heavy hole) transition, which in literature is called the "moving emission" peak [Ern96], [Hay03].

The coupling of the holes in the hh-band and the lh-band are responsible for the degree of ordering and therefore also for the polarization properties of the GaInP material.

The polarisation in [110] indicates a CuPt dominated ordering, light polarized in [1-10] a CM ordering. As we observe a strong polarization in [1-10] for MBE grown GaInP, a CM ordered GaInP is expected.

The internal band structure of ordered GaInP depends heavily on growth conditions. Therefore the analysis is difficult. For MOCVD grown GaInP some optical properties indicate that the internal structure of GaInP is of type II, despite that being a mixture of two type I semiconductores InP and GaP, and it is still controversely discussed in literature [Flue02], [Mat99].

For MBE grown GaInP we observe only one PL-maximum instead of the expected two, which is located between 20-50 meV below the free exciton transition, which occurs at 2,0 eV [DeL95]. Hayne *et al.* recently reported that several optical properties like the existence of the "moving emission" luminescence, a blue shift of the PL-energy with increasing laser power and a linear field dependence of the PL-energy (which indicates that the holes are free) lead to the conclusion that also MBE grown GaInP must be of type II, because of its CM-modulated laterally ordered structure [Hay03].

Fig. 4.33 explains why the QD-luminescence is so anisotropic compared to a compressively strained QW, also embedded in the highly ordered GaInP material. A possible mechanism for the optical isotropy of the QW is shown schematically. The buffer layer exhibits a rough surface with height corrugation amplitudes up to about 10 nm. The peaks consist of indium-rich and the valleys of gallium-rich domains (lateral CM

model). AFM (atomic force microscope) measurements of SSMBE grown GaInP surfaces confirm this picture (see fig. 4.33(b)). Surprisingly, if we grow an indium-rich compressively strained QW, the surface becomes smoother. Figure 4.33 (c) shows a cross-sectional TEM image of a 4.5 nm thick Ga_{0.3}In_{0.7}P QW. The lower interface looks corrugated, whereas the top interface is smooth. Obviously, a material current of indium towards the Ga-rich valleys takes place as a result of diffusion and the ordering structure of the subjacent buffer layer is strongly attenuated in the thin compressively strained QW. A similar effect has also been observed for strained GaInP/AlGaInP layers grown by MOCVD [Gen97]. The confinement energies of the QW above the In- and Ga-rich buffer regions are determined by the well widths and the barrier heights. The well width is small (large) and the barrier is low (high) in the In-rich (Ga-rich) region. Both effects shift the confinement energy of the charge carriers in the QW into opposite direction for each region. We can therefore describe the QW by a fairly homogeneous effective potential width d_{eff} in lateral direction, which causes the small PL-linewidth of only 11 meV at 8 K, as seen in fig. 5.24 (b). These considerations deliver an explanation for the observed isotropic polarization property of the QW.

The different degrees of polarization of the QD and the QW emission suggest the assumption that the highly anisotropic behavior of the dots is not a simple consequence of the surrounding anisotropic GaInP material.

The comparison of the optical gain of a strained $Ga_xIn_{1-x}P$ quantum well laser and a threefold stacked quantum dot laser in [110] and [1-10] directions (edge-emission) emphasizes this difference: whereas the gain of the QW laser shows no directional dependence, the QD laser reveals significantly larger gain for TE-polarized light out of the facets, propagating perpendicular to the dot elongation in [110]. This observation is shown in fig. 4.35. Thus, particular care has to be taken to align the cavities of InP/GaInP quantum dot lasers in [110] direction in order to achieve the highest possible light output from the QD laser diode.

We compared the lasing characteristics of a threefold stack of InP QDs and a compressively strained GaInP QW laser diode. The laser diodes were grown under the same epitaxial conditions in the same MBE machine. They consist of the same epitaxial structure except the optical active region and they emit at nearly the same wavelength. The study of the QD and QW laser properties allows information on the fundamentally different charge carrier population mechanisms to be obtained.

For a threefold stacked InP QD laserdiode, stimulated emission occurs via the ground state at $\lambda = 732$ nm for cavities as short as 0.5 mm at RT. Threshold current densities of 1.8 kA/cm² as lowest value and external differential quantum efficiencies of $\eta_{ext} = 21.5$ % have been measured for 2 mm long devices. Maximum light output power as high as 250 mW without saturation effects can be reached in pulsed excitation with a cycle of 1:100.

A laser diode based on a single compressively strained $Ga_{0.3}In_{0.7}P$ QW which has a threshold current density of 3.9 kA/cm² at a wavelength of $\lambda = 741$ nm shows lasing from the ground state for every temperature from 50-300 K, whereas the QD laser diode shows lasing from excited states at low temperatures and changes to ground state lasing for T > 200 K. We attribute this effect to an nonequilibrium population of the QDs at low temperatures whereas at higher temperatures thermal coupling of charge carriers provides effective filling of those dots with low ground state energies. These observa-
tions are shown in fig. 5.26. In (a) the dependence of the threshold current density on temperature of a 4.5 nm thick compressively strained $Ga_{0.3}In_{0.7}P$ QW-laser and of a 3×3.3 ML InP QP-laser with cavity length of 2 mm is shown. In the inset in (a) the stimulated emission spectra at $j = 1.3 \times j_{thr}$ at RT of both devices can be seen. In fig. 5.26 (b) the energies of the spontaneous (circles with $j = 0.6 \times j_{thr}$) and of the stimulated (triangles with $j = 1.3 \times j_{thr}$) emission spectra of the two laser diodes versus temperature are depicted. It can be observed, that a crossing of the PL energy dependence of the spontaneous and the stimulated emission lines occurs for the QD laser at T = 200 K, whereas the lasing energies of the stimulated spectra are always equal or lower than for the stimulated emission of the QW laser. The inset in (b) shows TEM pictures of the optical active region of the two devices [Man01].

To compare the laser properties of the two laser diodes, we measured the optical gain spectra at T = 120 K, as seen in fig. 5.27. In (a) the gain spectra of the Ga_{0.3}In_{0.7}P QW laser and in (b) the spectra of the 3× 3,3 ML InP QD laser as a function of the optical power density are shown. Due to the thermal coupling of the confined carriers in the QDs with the wetting layer (WL) and waveguide the optical gain at the low energy side increases with increasing power excitation, because preferentially the large QDs with low emission energies are refilled. This means a gain loss for the smaller dots with higher energies. We can observe an increasing blue-shift with increasing excitation as a consequence of this effect. The gaussian-like form of the QD gain spectra is a consequence of the size distribution of the QD islands. The gain spectra of the QW laser diode in fig. 5.27 (b) looks similar to that in (a), which we attribute to the film-roughnesses, which can be seen in the TEM images of fig. 5.25 (b). From the zero points of the gain spectra the intrinsic losses α_{int} can be determined: The QD laser has $\alpha_{int} \approx (7\pm1) \text{ cm}^{-1}$, the QW laser $\alpha_{int} \approx (10\pm1) \text{ cm}^{-1}$.

The total optical gain of the QW laser at a power excitation of $P = 2.2 \text{ kW/cm}^2$ is $g_{mod} = 21 \text{ cm}^{-1}$, and for the QD laser for $P = 1.8 \text{ kW/cm}^2 g_{mod} = 37 \text{ cm}^{-1}$. Although the two gain characteristics of the laser diodes are very similar, it is obvious that the QD laser shows the higher optical gain at T = 120 K, where the threshold current densities of both devices are comparable, as seen in fig. 5.26 (a).

For a comparison at RT fig. 5.28 shows the threshold current density j_{thr} as a function of the optical mirror losses α_{mirr} . The QD laser shows a smaller threshold for every cavity length *L* compared to the QW laser. For $L \rightarrow \infty$ the threshold current density for the QW laser is $j_{thr} = 3.1 \text{ kA/cm}^2$, and $j_{thr} = 1.15 \text{ kA/cm}^2$ for the QD laser.

Fig. 5.29 shows the maximum optical output power of both devices with L = 2 mm versus electrical current at RT. The threshold current density for the QD laser diode is only half of the value of the QW device: $j_{thr} = 1.8 \text{ kA/cm}^2$ for the QD laser and $j_{thr} = 3.9 \text{ kA/cm}^2$ for the QW laser.

Whereas the QD laser shows a maximum light output of 250 mW at a driving current of 4 kA/cm² without any saturation effects, the QF laser saturates at 8 kA/cm² with a maximum output power of 100 mW.

The maximum external quantum efficiencies are $\eta_{ext} = 21.5$ % for the QD laser and $\eta_{ext} = 2.5$ % for the QW laser. It is necessary to mention that the comparison of the light output is not completely fair, because the QD laser is threefold stacked, although one also has to consider the small island coverage of $\xi \approx 15$ %, and the QW laser consists of a single film, only. On the other hand the comparison of the threshold current densities

is trustworthy, because we compare here two sorts of laserdiodes with the smallest achievable threshold at RT. A single QD laser does not reach threshold at RT, which is possible for the single QW. The more active layers are stacked in the waveguide region the more carriers have to overcome the losses and reach threshold, which increases the threshold current density for each quantum system.

Therefore, we can conclude that despite many similarities of a QD and a QW laser diode characteristics in this material system, the QD laser has a smaller temperature sensitivity of the threshold current density, a smaller threshold current density at RT and a higher optical gain at 120 K compared to the QW laser. The improved QD laser characteristics is finally a consequence of the strong polarized edge emission, because, while the light output from the [110] facets for the QD laser diode is much higher than that in the orthogonal direction. The radiation characteristics of the QW laser is isotropic and therefore not especially amplified in one direction.

Kapitel 8 Anhang

8.1 Abkürzungsverzeichnis

a	Apertur
a	Gitterkonstante
AC	weenselstrom (engl.: alternate current)
AFM	Raster-Kraft-Mikroskopie (engl. Atomic Force Microscopy)
ASE	verstarktes spontanes Emissionssignal (engl.: amplified spontaneous emission)
Ar	Argon-Ionen
В	magnetische Induktion
b	Breite einer SK-Insel, Resonatorbreite, Spaltbreite
В	Breite einer Laserdiode
BEP	Äquivalanzdruck eines Molekularstrahls
	(engl. Beam Equivalent Pressure)
СМ	kompositions-modulierte Ordnung (engl.: composition modulation)
CCD	engl.: charge coupled device
CuPt _B	Kupfer-Platin-Ordnung bzgl. B-{111}-Richtungen
d	Abstand, Zwischenschichtdicke, QF-Dicke
d _{krit}	kritische Filmdicke
DC	Gleichstrom (engl.: direct current)
DI-Wasser	Deionisiertes Wasser
1, 2, 3D	Eindimensional, Zweidimensional, Dreidimensional
е	Elementarladung
e	Elektron
Ε	Energie
E_A, E_A^*	Aktivierungsenergie
E_{CM}	Energielage des spontanen PL-Spektrums (CM: engl.: center of mass)
E_G	Bandlückenenergie
E_{mode}	elektrischer Feldvektor der geführten Mode
E_F	Fermi-Energie
E_g	Energie der Bandlücke
EL	Elektrolumineszenz
E_x	Quantisierungsenergie der x-Richtung
ΔE	Energiedifferenz
$\Delta E_C, \Delta E_V$	energetischer Bandkantensprung im Leitungs- bzw. Valenzband
EL	Elektrolumineszenz
f	Brennweite
f	Wiederholfrequenz
fcc	kubisch flächenzentriert (engl.: face centered cubic)
<i>g</i> _i	Materialverstärkung der i-ten Mode
g_{mod}	modale Verstärkung

S _{mat} S _{net} dg/dn GSMBE	Materialverstärkung Nettoverstärkung differentielle Verstärkung Gasquellen-MBE (engl.: gas source molecular beam epitaxy)
h h ħ	Quantenpunkthöhe Plancksches Wirkungsquantum $h / 2 \pi$
h	Loch
hv	Energie eines Photons
H	Hamilton-Operator
nn UEMT	Schwerloch (engl.: heavy hole) Medulationsdatiorte Schiebtenfolge mit erhöhter Ladungströger
	beweglichkeit (engl. High Electron Mobility Transistor)
HL	Halbleiter
HWB	Halbwertsbreite
Ι	Intensität
Ι	Strom
I_x, I_y, I_z	Intenstiät des PL-Spektrums in x, y, z-Richtung
$I_{[110]}$	Intenstiät des PL-Spektrums in [110]-Richtung
i	Zählindex
I _{sperr}	Speristrom
I thr	Schwenström eines Laser
i	Stromdichte
j _∞	theoretische Schwellstromdichte eines Lasers für $L \rightarrow \infty$, d.h. $\alpha_{mirr} \rightarrow 0$
j_{thr}	Schwellstromdichte eines Lasers
k	ganze Zahl
k	Ladungsträgerimpuls / \hbar
K _B	Boltzmann-Konstante
Λ	Impulsvektor eines Exzitons
l	mittlerer Abstand zwischen OP. Länge der OP
lh	Leichtloch (engl.: light hole)
l,m, n	Quantenzahlen
L	Länge einer Laserdiode, Strichlänge
LED	Leuchtdiode (engl. Light Emitting Diode)
L_x, L_y, L_z Ausdehn	nung einer niedrigdimensionalen Struktur in x, y, z Richtung
LRO	engl.: long range ordering
m	effektive Elektronenmasse
m _e	effektive Löchermasse
m_0	Elektronenmasse
m _{hh}	effektive Löchermasse im Schwerlochband
m_{lh}	effektive Löchermasse im Leichtlochband
$m_{e\!f\!f}$	effektive Masse des Exzitons
m_J	magnetische Quantenzahl bzgl. Gesamtimpuls J
M	Gesamtmasse des Exzitons
MBE	Monelage
MOVPE/MOCVD	Metallorganische Gasnhasen Enitavie (engl. Metal Organic Vapor Dhase
	Epitaxy)
n	Ladungsträgerdichte

n n Δn	Brechungsindex Diodenidealitätsfaktor Elektronenkonzentration Brechungsindexsprung
OF	Oberfläche
P $P(h)$ P P_{el} P_{opt} p pin-Diode PL	Anregungsleistung Gaußverteilung der Inselhöhen <i>h</i> Polarisationsgrad elektrische Anregungsleistung optische (maximale) Lichtleistung der Laserdiode Löcherkonzentration Diode mit intrinsischen Bereich Photolumineszenz
<i>q</i> QF QP, QP*	Ladungseinheit Quantenfilm, Oberfläche Quantenpunkt, erster angeregter Zustand der QP
R REM RHEED	Reflektivität Rasterelektronenmikroskopie Reflektive hochenergetische Elektronenbeugung (engl.: Reflective High Energy Electron Diffraction) mittlere Raubigkeit (engl.: root mean square) der OP-Höhen
$\begin{array}{l} \text{RT} \\ \text{RTA} \\ R_y^* \end{array}$	Raumtemperatur Temperprozess (engl.: rapid thermal annealing) Rydberg-Energie eines Exzitons
SIMS	Sekundärionen Massenspektroskopie (engl. Secondary Ion Mass Spectroscopy)
SK STM	Stranski-Krastanov Raster-Tunnel-Mikroskopie (engl. Scanning Tunneling Microscopy)
T T_0 TE TED TEM TM T_{sub} T_{ii}	Temperatur charakteristische Temperatur transversal elektrisch Transmissions-Elektronen-Diffraktometrie Transmissionselektronenmikroskopie transversal magnetisch Substrattemperatur Phasenübergangstemperatur
U U _{Diode} U _{sperr}	Elektrische Spannung Elektrische Spannung über der Laserdiode Sperrspannung
V _{krit}	kritisches Volumen für Bildung von SK-Inseln
WL	Benetzungsschicht (engl.: wetting layer)
<i>x</i> <i>x,y,z</i>	Materialanteil Raumrichtungen
α	Wärmeausdehnungskoeffizient

α_{int}	interne Verluste
α _{mirr}	Spiegelverluste des Lasers
β	Proportionalitätskonstante
βR_{sp}	spontane Emission der geführten Welle
δ	Deltafunktion
γ	Oberflächenenergie
Г	Punkt im \boldsymbol{k} -Raum mit $\boldsymbol{k} = 0$
Γ	optischer Fullfaktor
η_{ext}	differentieller (externer) Wirkungsgrad eines Lasers
$\eta_{\scriptscriptstyle int}$	interner Wirkungsgrad eines Lasers
Θ	Winkelposition
λ	Wellenlänge
$\lambda_{de\ Broglie}$	de-Broglie-Wellenlänge
и	reduzierte effektive Masse des Exzitons
, μ	Ladungsträgerbeweglichkeit
μ_{ext}	externer Wirkungsgrad
ρ	Flächendichte der QP
$\sqrt{\rho^2}$	Exzitonenradius
$\rho(E)$	energetische Zustandsdichte
σ_{e}	Oberflächenenthalpie des aufgewachsenen Filmes
σ_{g}	Grenzflächenenthalpie
σ_h	Standardabweichung
σ_{s}	Oberflächenenthalpie des Substrates
$\Theta(x)$	Heavisidefunktion (Sprungfunktion)
τ	Pulsdauer
ω _r	Resonanzfrequenz
ξ	Bedeckung der QP

8.2 Literaturverzeichnis

[Ada82]	S. Adachi, Material parameters of In/sub 1-x/Ga/sub x/As/sub y/P/sub 1-y/ and related binaries, J. Appl. Phys. 53, 8775-92 (1982).
[Ada94]	S. Adachi, H. Kato, A. Moki, und K. Ohtsuka, <i>Refractive index of (Al/sub x/Ga/sub 1-x/)/sub 0.5/In/sub 0.5/P quaternary alloys</i> , J. Appl. Phys. 75 , 478-80 (1994).
[Ale85]	F. Alexandre, L. Goldstein, G. Leroux, M. C. Joncour, H. Thibierge, und E. V. K. Rao, Investigation of surface roughness of molecular beam epitaxy Ga/sub 1-x/Al/sub x/As layers and its consequences on GaAs/Ga/sub 1-x/Al/sub x/As heterostructures, J. Vac. Sci. & Technol, B. 3 , 950-5 (1985).
[Alf70]	I. Alferov Zh, Sov. Phys. Semicond. 3 , 1107 (1970).
[Ara82]	Y. Arakawa und H. Sakaki, <i>Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current</i> , Appl. Phys. Lett. 40 , 939-41 (1982).
[Asa86]	M. Asada, Y. Miyamoto, und Y. Suematsu, <i>Gain and the threshold of three dimensional quantum-box lasers</i> , IEEE J. Quantum Electron. QE-22 , 1915-21 (1986).
[Bar97]	A. L. Barabasi, <i>Self-assembled island formation in heteroepitaxial growth</i> , Appl. Phys. Lett. 70 , 2565-7 (1997).
[Bel89]	P. Bellon, J. P. Chevalier, E. Augarde, J. P. Andre, und G. P. Martin, <i>Substrate-driven</i> ordering microstructure in Ga/sub x/In/sub 1-x/P alloys, J. Appl. Phys. 66 , 2388-94 (1989).
[Ber88]	J. E. Bernard, S. H. Wei, D. M. Wood, und A. Zunger, <i>Ordering-induced changes in the optical spectra of semiconductor alloys</i> , Appl. Phys. Lett. 52 , 311-13 (1988).
[Blo99]	P. Blood, <i>Material issues in AlGaInP red-emitting laser diodes</i> , Mat. Sci. & Engineering B B66 , 174-80 (1999).
[Boc90]	U. Bockelmann und G. Bastard, <i>Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases</i> Phys Rev B 42 , 8947 (1990)
[Bou94]	D. P. Bour, R. S. Geels, D. W. Treat, T. L. Paoli, F. Ponce, R. L. Thornton, B. S. Krusor, R. D. Bringans, und D. F. Welch, <i>Strained Ga/sub x/In/sub 1-x/P/(AlGa)/sub 0.5/In/sub 0.5/P heterostructures and quantum-well laser diodes</i> , IEEE J. Quantum Electron 30 , 593-607 (1994)
[But00]	R. Butendeich, D. Graef, J. Schwarz, T. Ballmann, H. Schweizer, und F. Scholz, <i>Low threshold current densities in red VCSELs</i> , Elsevier. Journal of Crystal Growth 221 , 657-62 (2000)
[Car94]	N. Carlsson, W. Seifert, A. Petersson, P. Castrillo, M. E. Pistol, und L. Samuelson, Study of the two-dimensional-three-dimensional growth mode transition in metalorga- nic vapor phase epitaxy of GaInP/InP quantum-sized structures, Appl. Phys. Lett. 65 , 3093-5 (1994)
[Che93]	A. C. Chen, A. M. Moy, P. J. Pearah, K. C. Hsieh, und K. Y. Cheng, <i>Ga/sub x/In/sub 1-x/P multiple-quantum-wire heterostructures prepared by the strain induced lateral lay-er ordering process</i> Appl Phys Lett 62 , 1359-61 (1993)
[Che96]	Y. Chen und J. Washburn, <i>Structural transition in large-lattice-mismatch heteroepitaxy</i> , Phys. Rev. Lett. 77 , 4046-9 (1996).
[Che98]	H. M. Cheong, Y. Zhang, A. G. Norman, J. D. Perkins, A. Mascarenhas, K. Y. Cheng, und K. C. Hsieh, <i>Resonance Raman scattering studies of composition-modulated</i> <i>GaP/InP short-period superlattices</i> , Phys. Rev. B 60 , 4883-8 (1999).
[Cho93]	K. D. Choquette, M. Hong, S. N. G. Chu, H. S. Luftman, J. P. Mannaerts, R. C. Wetzel, und R. S. Freund, <i>Hydrogen plasma removal of AlGaAs oxides before molecular beam epitaxy</i> , Applied Physics Letters 62 , 735-7 (1993).
[Chr00]	A. Christ, H. Giessen, W. W. Ruhle, K. Korona, J. Kuhl, M. Zundel, Y. Manz, und K. Eberl, <i>Carrier dynamics in stacked InP/GaInP quantum dots</i> , Wiley-VCH. Phys. Stat. Sol. B 221 , 59-63 (2000).
[Col99]	M. Colocci, A. Vinattieri, L. Lippi, F. Bogani, M. Rosa-Clot, S. Taddei, A. Bosacchi, S. Franchi, und P. Frigeri, <i>Controlled tuning of the radiative lifetime in InAs self-assembled quantum dots through vertical ordering</i> , Appl. Phys. Lett. 74 , 564-6 (1999).

[Daw90]	L. Daweritz und R. Hey, <i>Reconstruction and defect structure of vicinal GaAs(001) and Al/sub x/Ga/sub 1-x/As(001) surfaces during MBE growth</i> , Surf. Sci. 236 , 15-22 (1990).
[Daw94]	M. D. Dawson und G. Duggan, <i>Band-offset determination for GaInP-AlGaInP structu-</i> res with compressively strained quantum well active layers, Appl. Phys. Lett. 64 , 892-4 (1994).
[DeL95]	M. C. DeLong, D. J. Mowbray, R. A. Hogg, M. S. Skolnick, J. E. Williams, K. Meehan, S. R. Kurtz, J. M. Olson, R. P. Schneider, M. C. Wu, und M. Hopkinson, <i>Band gap of 'completeley disordered' Ga/sub 0.52/In/sub 0.48/P</i> , Appl. Phys. Lett. 66 , 3185-7 (1995).
[DeL90]	M. C. DeLong, P. C. Taylor, und J. M. Olson, <i>Excitation intensity dependence of pho-</i> toluminescence in Ga/sub 0.52/In/sub 0.48/P, Appl. Phys. Lett. 57 , 620-2 (1990).
[Dem99]	W. Demtröder, Laserspektroskopie (Springer, 1999).
[Den03]	U. Denker, <i>Ge hut cluster luminescence below bulk Ge band gap</i> , Appl. Phys. Lett. 82 , 454 (2003).
[Din74]	R. Dingle, W. Wiegmann, und C. H. Henry, <i>Quantum states of confined carriers in very thin Al/sub x/Ga/sub 1-x/As-GaAs-Al/sub x/Ga/sub 1-x/As heterostructures</i> , Phys. Rev. Lett. 33 , 827-30 (1974).
[Dio96]	M. Dion, Z. R. Wasilewski, F. Chatenoud, V. K. Gupta, A. R. Pratt, R. L. Williams, C. E. Norman, M. R. Fahy, und A. Marinopoulou, <i>Extremely low threshold current density InGaAs/GaAs/AlGaAs strained SQW laser grown by MBE with As/sub 2</i> , Canad. J. Phys. 74 , 14-18 (1996)
[Duh81]	N. Duhamel, P. Henoc, F. Alexandre, und E. V. K. Rao, <i>Influence of growth tempera-</i> <i>ture on Be incorporation in molecular beam epitaxy GaAs epilayers</i> , Appl. Phys. Lett. 39 , 49-51 (1981).
[Eag90]	D. J. Eaglesham und M. Cerullo, <i>Dislocation-free Stranski-Krastanow growth of Ge on</i> Si(100), Phys. Rev. Lett. 64. 1943-6 (1990).
[Ebe00]	K. Eberl, O. G. Schmidt, O. Kienzle, und F. Ernst, <i>Preparation and optical properties</i> of <i>Ge and C-induced Ge quantum dots on Si</i> , Thin Solid Films 373 , 164-9 (2000).
[Ema94]	P. Emanuelsson, M. Drechsler, D. M. Hofmann, B. K. Meyer, M. Moser, und F. Scholz, <i>Cyclotron resonance studies of GaInP and AlGaInP</i> , Appl. Phys. Lett. 64 , 2849-51 (1994)
[Ern96]	P. Ernst, C. Geng, F. Scholz, und H. Schweizer, <i>Ordering in GaInP/sub 2/ studied by</i> ontical spectroscopy Phys. Stat. Sol. B 193 , 213-29 (1996)
[Faf96]	S. Fafard, K. Hinzer, S. Raymond, M. Dion, J. McCaffrey, Y. Feng, und S. Charbon- neau, <i>Red-emitting semiconductor quantum dot lasers</i> . Science 274 , 1350-3 (1996).
[Faf98]	S. Fafard, K. Hinzer, A. J. Springthorpe, Y. Feng, J. McCaffrey, und S. Charbonneau, <i>Temperature effects in semiconductor quantum dot lasers</i> , Elsevier. Materials Science & Engineering B-Solid State Materials for Advanced Technology B51 , 114-17 (1998).
[Flue02]	B. Fluegel, S. Smith, Y. Zhang, A. Mascarenhas, J. F. Geisz, und J. M. Olson, <i>Resonant</i> excitation study of ultrasharp emission lines in ordered Ga/sub x/In/sub 1-x/P, Phys. Rev. B 65 , 115320/1-5 (2002).
[Gen97]	C. W. Geng, Dissertation, Uni Stuttgart, 1997.
[Gom86]	A. Gomyo, J. Cryst. Growth 77, 291 (1986).
[Gom87]	A. Gomyo, T. Suzuki, K. Kobayashi, S. Kawata, I. Hino, und T. Yuasa, <i>Evidence for the</i> existence of an ordered state in Ga/sub 0.5/In/sub 0.5/P grown by metalorganic vapor
[Gro03]	<i>phase epitaxy and its relation to band-gap energy</i> , Appl. Phys. Lett. 50 , 673-5 (1987). M. E. Groenert, C. W. Leitz, A. J. Pitera, V. Yang, H. Lee, R. J. Ram, und E. A. Fitz- gerald, <i>Monolithic integration of room-temperature cw GaAs/AlGaAs lasers on Si sub-</i> <i>strates via relaxed graded GeSi buffer layers</i> , J. Appl. Phys. 93 , 362 (2003).
[Gro96]	P. Großmann, Dissertation, Uni Marburg, 1996.
[Gru00]	M. Grundmann, The present status of quantum dot lasers. Physica E 5, 167-184 (2000)
[Gyo00]	P. Gyoungwon, O. B. Shchekin, D. L. Huffaker, und D. G. Deppe, <i>Low-threshold oxide-confined 1.3- mu m quantum-dot laser</i> , IEEE Photonics Technol. Lett. 12 , 230-2 (2000)
[Hak73]	B. W. Hakki und T. L. Paoli, <i>CW degradation at 300 degrees K of GaAs double-</i> <i>heterostructure junction lasers. II. Electronic gain, J. Appl. Phys.</i> 44, 4113-19 (1973).

[Hak75]	B. W. Hakki und T. L. Paoli, <i>Gain spectra in GaAs double-heterostructure injection</i> <i>lasers</i> I Appl Phys. 46 1299-306 (1975)
[Hal62]	R. N. Hall, Coherent Light Emission from GaAs Junctions, Phy. Rev. Lett. 9, 366 (1962).
[Ham89]	R. A. Hamm, M. B. Panish, R. N. Nottenburg, Y. K. Chen, und D. A. Humphrey, <i>Ultra- high Be doping of Ga/sub 0.47/In/sub 0.53/As by low-temperature molecular beam</i>
[Hao98]	Y. Hao, N.Y. Phillipp, F. Phillipp, M. Zundel, K. Eberl, Verhandlungen der DPG Früh- ishrstagung Regensburg. 770 , 770 (1998)
[Har99]	L. Harris, A. D. Ashmore, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, G. Hill, und J. Clark, <i>Gain characteristics of InAs/GaAs self-organized quantum-dot lasers</i> , Appl.
[Har98]	 Phys. Lett. 75, 5512-14 (1999). L. Harris, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, und G. Hill, <i>Emission spectra</i> and mode structure of InAs/GaAs self-organized quantum dot lasers, Appl. Phys. Lett. 73, 969-71 (1998).
[Hat95]	F. Hatami, N. N. Ledentsov, M. Grundmann, J. Bohrer, F. Heinrichsdorff, M. Beer, E. Bimberg, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich, U. Richter, S. V. Ivanov, B. Meltser, P. S. Kop'ev, und I. Alferov Zh, <i>Radiative recombination in type-ll GaSb/GaAs quantum dots</i> , Appl. Phys. Lett. 67 , 656-8 (1995).
[Hay69]	I. Hayashi, M. B. Panish, und P. W. Foy, <i>A low-threshold room-temperature injection laser</i> , IEEE Journal of Quantum Electronics QE-5 , 211-2 (1969).
[Hay01a]	M. Hayne, J. Maes, Y. M. Manz, O. G. Schmidt, K. Eberl, und V. V. Moshchalkov, <i>Electron and hole confinement in stacked self-assembled InP dots of different sizes</i> , Phys. Stat. Sol. B 224 , 31-5 (2001).
[Hay01b]	M. Hayne, J. Maes, V. V. Moshchalkov, Y. M. Manz, O. G. Schmidt, und K. Eberl, Magneto-optical study of electron occupation and hole wave functions in stacked self- assembled InP quantum dots, Appl. Phys. Lett. 79 , 45-7 (2001).
[Hay03]	M. Hayne, Maes, J., <i>Type II carrier confinement in epitaxially grown GaInP</i> , sent to PRL. (2003).
[Hay00a]	M. Hayne, R. Provoost, M. K. Zundel, Y. Manz, K. Eberl, und V. V. Moshchalkov, <i>Hole coupling in stacked self-assembled InP quantum dots,</i> Physica E 6 , 436-439 (2000).
[Hay00b]	M. Hayne, R. Provoost, M. K. Zundel, Y. Manz, K. Eberl, und V. V. Moshchalkov, <i>Photoluminescence of stacked self-assembled InP quantum dots in high magnetic fields</i> , Physica E 8 , 125-128 (2000).
[Hay00c]	M. Hayne, R. Provoost, M. K. Zundel, Y. M. Manz, K. Eberl, und V. V. Moshchalkov, <i>Electron and hole confinement in stacked self-assembled InP quantum dots</i> , Phys. Rev. B 62 , 10324-8 (2000).
[Hei03]	H. Heidemeyer, <i>Highly ordered arrays of In(Ga)As quantum dots on patterned GaAs</i>
[Hei00]	F. Heinrichsdorff, C. Ribbat, M. Grundmann, und D. Bimberg, <i>High-power quantum-</i> <i>dot lasers at 1100 nm</i> , Applied Physics Letters 76 , 556-8 (2000).
[Hin00]	K. Hinzer, A. J. Spring Thorpe, E. M. Griswold, J. Lapointe, Y. Feng, A. Delage, und S. Fafard, <i>Short-wavelength laser diodes based on AlInAs/AlGaAs self-assembled quantum dots</i> , J. Appl. Phys. 87 , 1496-502 (2000).
[Hir94]	H. Hirayama, K. Matsunaga, M. Asada, und Y. Suematsu, <i>Lasing action of Ga/sub</i> 0.67/ <i>In/sub</i> 0.33/As/GaInAsP/InP tensile-strained quantum-box laser, Electron. Lett. 30. 142-3 (1994).
[Hol99]	V. Holy, G. Springholz, M. Pinczolits, und G. Bauer, <i>Strain induced vertical and lateral correlations in quantum dot superlattices</i> , Physical Review Letters 83 , 356-9 (1999).
[Hon99]	R. Hong-Wen, M. Sugisaki, S. Sugou, K. Nishi, A. Gomyo, und Y. Masumoto, <i>Lateral composition modulation induced optical anisotropy in InP/GaInP quantum dot system</i> , Jap. J. Appl. Phys. Part 1 38 , 2438-41 (1999).
[Ino97]	T. Inoshita und H. Sakaki, <i>Density of states and phonon-induced relaxation of electrons in semiconductor quantum dots</i> , Phys. Rev. Lett. 56 , R4355 (1997).
[Jal97]	M. Jalonen, A. M. Toivonen, P. Savolainen, J. Kongas, und M. Pessa, <i>Effects of rapid thermal annealing on GalnP/AlGaInP lasers grown by all-solid-source molecular beam epitaxy</i> , Appl. Phys. Lett. 71 , 479-81 (1997).

[Lee97]	L. Jong-Won, A. T. Schremer, D. Fekete, J. R. Shealy, und J. M. Ballantyne, <i>Growth of direct bandgap GaInP quantum dots on GaP substrates</i> , J. Electron. Mat. 26 , 1199-204 (1997).
[Kap89]	E. Kapon, S. Simhony, R. Bhat, und D. M. Hwang, <i>Single quantum wire semiconductor lasers</i> , Applied Physics Letters 55 , 2715-17 (1989).
[Kat92]	T. Katsuyama, I. Yoshida, J. Hashimoto, Y. Taniguchi, und H. Hayashi, <i>OMPVE</i> growth of AlGaInP/Ga/sub x/In/sub 1-x/P strained quantum well structures and their applications to visible laser diodes, Journal of Crystal Growth 124 , 697-702 (1992).
[Kel91]	D. Keller, <i>Reconstruction of STM and AFM images distorted by finite-size tips</i> , Surf. Sci. 253 , 353-64 (1991).
[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. Gösele, und J. Heydenreich, <i>Low threshold, large</i> T_0 <i>injection laser emission from In</i> (<i>Ga</i>) <i>As quantum dots</i> , Electron. Lett. 30 , 1416 (1994).
[Klo01]	F. Klopf, R. Krebs, A. Wolf, M. Emmerling, J. P. Reithmaier, und A. Forchel, <i>InAs/GaInAs quantum dot DFB lasers emitting at 1.3 mu m</i> , Electronics Letters 37 , 634-6 (2001).
[Kne95]	K. F. Kneubühl, Sigrist, M. W., Laser (Zürich, 1995).
[Koc86]	T. L. Koch und R. A. Linke, <i>Effect of nonlinear gain reduction on semiconductor laser wavelength chirping</i> , Appl. Phys. Lett. 48 , 613-15 (1986).
[Kop00]	U. Kops, P. G. Blome, M. Wenderoth, R. G. Ulbrich, C. Geng, und F. Scholz, <i>Intrinsic quantum dots in partially ordered bulk (GaIn)P</i> , Phys. Rev. B 61 , 1992-8 (2000).
[Kow95]	O. P. Kowalski, J. W. Cockburn, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, R. Teissier, und M. Hopkinson, <i>GaInP-AlGaInP band offsets determined from hydrostatic pressure measurements</i> , Appl. Phys. Lett. 66 , 619-21 (1995).
[Kuh97]	J. Kuhn, C. Geng, F. Scholz, und H. Schweizer, <i>Low-threshold GaInP/AlGaInP ridge</i> waveguide lasers, Electron. Lett. 33 , 1707-8 (1997).
[Kur96]	A. Kurtenbach, Dissertation, Universität Stuttgart, 1996.
[Kur95a]	A. Kurtenbach, K. Eberl, K. Brunner, und G. Abstreiter,; (Kluwer, Netherlands, 1995), p. 59-67.
[Kur90]	S. R. Kurtz, J. M. Olson, und A. Kibbler, <i>Effect of growth rate on the band gap of Ga/sub 0.5/In/sub 0.5/P</i> , Appl. Phys. Lett. 57 , 1922-4 (1990).
[Lan82]	F. Landolt-Börnstein, <i>Numerical data and funtional realtionship in science and tech-</i> <i>nology</i> , Vol. III/17a und III/22a (Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 1982).
[Leo95a]	R. Leon, S. Fafard, D. Leonard, J. L. Merz, und P. M. Petroff, <i>Visible luminescence from semiconductor quantum dots in large ensembles</i> , Appl. Phys. Lett. 67 , 521-3 (1995).
[Leo95b]	R. Leon, P. M. Petroff, D. Leonard, und S. Fafard, <i>Spatially resolved visible lumi-</i> nescence of self-assembled semiconductor quantum dats. Science 267 , 1966-8 (1995)
[Lin99]	K. K. Linder, J. Phillips, O. Qasaimeh, P. Bhattacharya, und J. C. Jiang, <i>In(Ga)As/GaAs</i> self-organized quantum dot light emitters grown on silicon substrates, J. Cryst. Growth 201 , 1186-9 (1999).
[Lip01]	M. O. Lipinski, Dissertation, Universität Stuttgart, 2001.
[Lip00]	M. O. Lipinski, H. Schuler, O. G. Schmidt, K. Eberl, und N. Y. Jin-Phillipp, <i>Strain-induced material intermixing of InAs quantum dots in GaAs</i> , Appl. Phys. Lett. 77 ,
	1789-91 (2000).
[Lot00]	J. A. Lott, N. N. Ledentsov, V. M. Ustinov, N. A. Maleev, A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, M. V. Maximov, B. V. Volovik, I. Alferov Zh, und D. Bimberg, <i>InAs-InGaAs quantum dot VCSELs on GaAs substrates emitting at 1.3 mu m</i> , Electronics Letters 36 , 1384-5 (2000).
[Mae02]	J. Maes, M. Hayne, Y. M. Manz, O. G. Schmidt, K. Eberlb, und V. V. Moshchalkov, Charge confinement and uniformity of stacked InP quantum dots studied by magneto- optical spectroscopy. Physica E, 13 , 203-7 (2002)
[Man03]	Y. M. Manz und S. O.G., <i>Optical and structural anisotropy of InP/GaInP quantum dots for laser applications</i> , submitted to Appl. Phys. Lett., (2003).
[Man00]	Y. M. Manz, O. G. Schmidt, und K. Eberl, <i>Room-temperature lasing via ground state of current-injected vertically aligned InP/GaInP quantum dots</i> , Appl. Phys. Lett. 76 , 3343-5 (2000).

[Man01]	Y. M. Manz, Schmidt, O. G., A comparative study of an InP QD laser and a $Ga_x In_{1-x}P$ quantum well laser, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 722 , K11.4.2 (2001).
[Mar94]	J. Y. Marzin, J. M. Gerard, A. Izrael, D. Barrier, und G. Bastard, <i>Photoluminescence of single InAs quantum dots obtained by self-organized growth on GaAs</i> , Phys. Rev. Lett. 73 , 716-19 (1994).
[Mas89]	A. Mascarenhas, S. Kurtz, A. Kibbler, und J. M. Olson, <i>Polarized band-edge photolu-</i> minescence and ordering in Ga/sub 0.52/In/sub 0.48/P, Phys. Rev. Lett. 63 , 2108-11 (1989).
[Mat00]	A. Matthes, "Prozessierung von Quantenpunktlasern," (2000).
[Mat99]	T. Mattila, L. W. Wang, und A. Zunger, <i>Electronic consequences of lateral composition modulation in semiconductor alloys</i> , Phys. Rev. B 59 , 15270-84 (1999).
[Mic92]	P. Michler, A. Hangleiter, M. Moser, M. Geiger, und F. Scholz, <i>Influence of barrier</i> height on carrier lifetime in Ga/sub 1-y/In/sub y/P/(Al/sub x/Ga/sub 1-x/)/sub 1-y/In/sub y/P single quantum wells, Phys. Rev. B 46 , 7280-3 (1992).
[Min89]	S. Minagawa und M. Kondow, Dependence of photoluminescence peak energy of MOVPE-grown AlGaInP on substrate orientation, Electron, Lett. 25 , 758-9 (1989).
[Mog98]	P. C. Mogensen, S. A. Hall, P. M. Smowton, U. Bangert, P. Blood, und P. Dawson, <i>The effect of high compressive strain on the operation of AlGaInP quantum-well lasers</i> , IEEE J. Quantum Electron. 34 , 1652-9 (1998).
[Mon85]	M. J. Mondry, E. J. Caine, und H. Kroemer, A GaP decomposition source for producing a dimer phosphorus molecular beam free of gallium and tetramer phosphorus, J. Vac. Sci. & Techn. A 3 , 316-18 (1985).
[Mor97]	A. Moritz, Dissertation, Universität Stuttgart, 1997.
[Mor96]	A. Moritz, R. Wirth, A. Hangleiter, A. Kurtenbach, und K. Eberl, <i>Optical gain and lasing in self-assembled InP/GaInP quantum dots</i> , Appl. Phys. Lett. 69 , 212-14 (1996).
[Mue01]	L. Muller-Kirsch, R. Heitz, A. Schliwa, O. Stier, D. Bimberg, H. Kirmse, und W. Neu- mann, <i>Many-particle effects in type II quantum dots</i> , Applied Physics Letters 78 , 1418- 20 (2001).
[Nab94]	Y. Nabetani, T. Ishikawa, S. Noda, und A. Sasaki, <i>Initial growth stage and optical properties of a three-dimensional InAs structure on GaAs</i> , J. Appl. Phys. 76 , 347-51 (1994).
[Naj95]	S. P. Najda, A. H. Kean, M. D. Dawson, und G. Duggan, <i>Optical measurements of electronic bandstructure in AlGaInP alloys grown by gas source molecular beam epita-</i> xy, J. Appl. Phys. 77 , 3412-15 (1995).
[Nak96]	S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, und Y. Sugimoto, <i>InGaN-based multi-quantum-well-structure laser diodes</i> , Japanese Journal of Applied Physics Part 2-Letters 35 , L74-6 (1996).
[Ohb86]	Y. Ohba, M. Ishikawa, H. Sugawara, M. Yamamoto, und T. Nakanisi, <i>Growth of high-quality InGaAlP epilayers by MOCVD using methyl metalorganics and their application to visible semiconductor lasers</i> , J. Cryst. Growth 77 , 374-9 (1986).
[Ost00]	W. Ostwald, Z. Phys. Chem. (Leipzig) 34, 495 (1900).
[Por01]	J. Porsche, Dissertation, Universität Stuttgart, 2001.
[Por00a]	J. Porsche, M. Ost, T. Riedl, A. Hangleiter, und F. Scholz, <i>Lasing from excited states in self-assembled InP/GaInP quantum islands</i> , Elsevier. Materials Science & Engineering B-Solid State Materials for Advanced Technology B74 , 263-8 (2000).
[Por98]	J. Porsche, A. Ruf, M. Geiger, und F. Scholz, <i>Size control of self-assembled InP/GaInP quantum islands</i> , J. Cryst. Growth 195 , 591-5 (1998).
[Por00b]	J. Porsche und F. Scholz, <i>Growth of self-assembled Ga/sub x/In/sub 1-x/P quantum islands on GaP</i> , Elsevier. Journal of Crystal Growth 221 , 571-5 (2000).
[Pro00]	R. Provoost, Dissertation, University of Leuven, 2000.
[Pro99]	R. Provoost, M. Hayne, V. V. Moshchalkov, M. K. Zundel, und K. Eberl, <i>Magneto-photoluminescence of stacked self-assembled InP quantum dots</i> , Appl. Phys. Lett. 75 , 200 (1999)
[D 00]	
[Pro98]	K. Provoost, M. Hayne, M. K. Zundel, K. Eberl, und V. V. Moshchalkov, <i>Photolumi-</i> nescence measurements of InP quantum dots in pulsed magnetic fields, Physica B 258 , 203-206 (1998)
[Pry98]	C. Pryor, <i>Quantum wires formed from coupled InAs/GaAs strained quantum dots</i> , Phys. Rev. Lett. 80 , 3579-81 (1998).

[Pry97]	C. Pryor, M. E. Pistol, und L. Samuelson, <i>Electronic structure of strained InP/Ga/sub</i> 0.51/In/sub 0.49/P auantum dots, Phys. Rev. B 56, 10404-11 (1997).
[Rie98]	T. Riedl, E. Fehrenbacher, A. Hangleiter, M. K. Zundel, und K. Eberl, <i>Injection lasers</i> with vertically aligned InP/GaInP quantum dots: Dependence of the threshold current on temperature and dot size. Appl. Phys. Lett. 73 , 3730-3732 (1998)
[Rie99]	T. Riedl, E. Fehrenbacher, M. K. Zundel, K. Eberl, und A. Hangleiter, <i>Red light emit-</i> <i>ting injection lasers with vertically-aligned InP/GaInP quantum dots, Jap. J. Appl.</i> Phys. Part 1 38 , 597-600 (1999)
[Rie02]	T I Riedl Dissertation Carolo-Wilhelmina Uni zu Braunschweig 2002
[Schm99]	O. G. Schmidt, O. Kienzle, Y. Hao, K. Eberl, und F. Ernst, <i>Modified Stranski-Krastanov</i> growth in stacked layers of self-assembled islands, Appl. Phys. Lett. 74 , 1272-4 (1999).
[Schm96]	O. G. Schmidt, N. Kirstaedter, N. N. Ledentsov, M. H. Mao, D. Bimberg, V. M. Usti- nov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, M. V. Maximov, P. S. Kop'ev, und Z. I. Alferov, <i>Pre-</i> <i>vention of gain saturation by multi-layer quantum dot lasers</i> , Electronics Letters 32 , 1302-4 (1996).
[Sch96a]	O. G. Schmidt, Kirstaedter, N., Ledentsov, N.N., Bimberg, D., Ustinov, V.M., Egorov, A. Yu., Zhukov, A.E., Maximov, M.V., Kopèv, P.S., and Alferov, Zh. I., <i>InAs/GaAs</i>
[Scho98]	 F. Scholz, C. Geng, M. Burkard, H. P. Gauggel, H. Schweizer, R. Wirth, A. Moritz, und A. Hangleiter, <i>Ordering in GaInP: is it relevant for devices?</i>, Physica E 2, 8-14 (1998).
[Sch00]	H. Schuler, M. Keller, M. Lipinski, K. Eberl, J. Weis, und K. Klitzing, <i>In situ etching and regrowth in III-V molecular beam epitaxy for future nanotechnology</i> , AIP for American Vacuum Soc. Journal of Vacuum Science & Technology B 18 , 1557-61 (2000).
[Sei96]	W. Seifert, N. Carlsson, M. Miller, ME. Pistol, L. Samuelson and L. R. Wallenberg, <i>In-Situ Growth of Quantum Dot Structures ba the Stranski-Krastanow Growth Mode</i> , Prog. Cryst. Growth and Charact. 33 , 423-471 (1996).
[Ser91]	H. B. Serreze, Y. C. Chen, und R. G. Waters, <i>High-power, very low threshold, GaInP/AlGaInP visible diode lasers,</i> Applied Physics Letters 58 , 2464-6 (1991).
[Sha71]	K. L. Shaklee und R. F. Leheny, <i>Direct determination of optical gain in semiconductor crystals</i> , Appl. Phys. Lett. 18 , 475-7 (1971).
[Shc00]	O. B. Shchekin, G. Park, D. L. Huffaker, Q. Mo, und D. G. Deppe, <i>Low-threshold con-</i> <i>tinuous-wave two-stack quantum-dot laser with reduced temperature sensitivity</i> , IEEE Photonics Technology Letters 12 , 1120-2 (2000).
[Shc95]	V. A. Shchukin, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev, und D. Bimberg, <i>Spontaneous ordering of arrays of coherent strained islands</i> , Phys. Rev. Lett. 75 , 2968-71 (1995).
[Shi94]	T. Shitara und K. Eberl, <i>Electronic properties of InGaP grown by solid-source mole-</i> <i>cular-beam epitaxy with a GaP decomposition source,</i> Appl. Phys. Lett. 65 , 356-8 (1994).
[Sho97]	H. Shoji, Y. Nakata, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, und H. Ishi- kawa, <i>Temperature dependent lasing characteristics of multi-stacked quantum dot la-</i> <i>sers</i> , Appl. Phys. Lett. 71 , 193-5 (1997).
[Son01]	J. D. Song, J. M. Kim, und Y. T. Lee, Growth of highly disordered InGaP on (100) GaAs by molecular beam epitaxy with a GaP decomposition source, Appl. Phys. A 472 , 625-7 (2001)
[Sop95]	M. Sopanen, H. Lipsanen, und J. Ahopelto, <i>Self-organized InP islands on (100) GaAs</i> by metalorganic vapor phase epitaxy. Appl. Phys. Lett. 67 , 3768-70 (1995).
[Str38]	I. N. a. K. Stranski, L., Sitzungsberichte Kais. Akad. Wiss. Wien/MathNaturwiss. Kl 2b 146 , 797 (1938).
[Sug99]	M. Sugisaki, R. Hong-Wen, S. V. Nair, K. Nishi, S. Sugou, T. Okuno, und Y. Masu- moto, <i>Optical anisotropy in self-assembled InP quantum dots</i> , Phys. Rev. B 59 , R5300- 3 (1999).
[Sug00]	M. Sugisaki, R. Hong-Wen, K. Nishi, S. Sugou, und Y. Masumoto, <i>Excitons at a single localized center induced by a natural composition modulation in bulk Ga/sub 0.5/In/sub 0.5/P</i> , Phys. Rev. B 61 , 16040-4 (2000).
[Sug01]	M. Sugisaki, R. Hong-Wen, K. Nishi, und Y. Masumoto, <i>Photoluminescence and micro-imaging study of optically anisotropic InP self-assembled quantum dots</i> , Sol. State Comm. 117 , 679-84 (2001).

[Su98]	W. Su-Huai und A. Zunger, <i>Calculated natural band offsets of all II-VI and III-V semi-</i> conductors: Chemical trends and the role of cation d orbitals, Appl. Phys. Lett. 72 ,
[Sze81]	2011-13 (1998). S. M. Sze, <i>Physics of Semiconductor Devices</i> , 2nd edition ed. (John Wiley & Sons, 1981)
[Ter96]	J. Tersoff, C. Teichert, und M. G. Lagally, <i>Self-organization in growth of quantum dot superlattices</i> . Phys. Rev. Lett. 76 , 1675-8 (1996).
[Toi96]	M. Toivonen, P. Savolainen, und M. Pessa, <i>High-performance GaInP/AlGaInP strained quantum well lasers grown by solid source molecular beam epitaxy</i> , Semicond. Sci. & Technol. 11 , 1923-6 (1996)
[Ust97]	V. M. Ustinov, A. Egorov, A. R. Kovsh, A. E. Zhukov, M. V. Maximov, A. F. Tsatsul'nikov, N. Gordeev, S. V. Zaitsev, M. Shernyakov Yu, N. A. Bert, P. S. Kop'ev, I. Alferov Zh, N. N. Ledentsov, J. Boehrer, D. Bimberg, A. O. Kosogov, P. Werner, und U. Goesele, <i>Low-threshold injection lasers based on vertically coupled quantum dots</i> , J. Cryst. Growth 175 , 689 (1997)
[Van63]	I H Van der Merwe I Annl Phys 34 117 123 (1963)
[Van75]	J. P. Van der Ziel, R. Dingle, R. C. Miller, W. Wiegmann, und W. A. Nordland, Jr., Laser oscillation from quantum states in very thin GaAs-Al/sub 0.2/Ga/sub 0.8/As mul- tilayer structures, Applied Physics Letters 26 , 463-5 (1975).
[Vol96]	M. Vollmer, E. J. Mayer, W. W. Ruhle, A. Kurtenbach, und K. Eberl, <i>Exciton relaxation dynamics in quantum dots with strong confinement</i> , Phys. Rev. B 54 , R17292-5 (1996).
[Vol26]	M. a. W. Vollmer, A., Z. Phys. Chem 119 , 277 (1926).
[Vur01]	I. Vurgaftman, J. R. Meyer, und L. R. Ram-Mohan, <i>Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys</i> , J. Appl. Phys. 89 , 5815-75 (2001).
[Wei90]	S. H. Wei und A. Zunger, <i>Band-gap narrowing in ordered and disordered semicon-</i> <i>ductor alloys,</i> Appl. Phys. Lett. 56 , 662-4 (1990).
[Wu87]	W. Wei-Yu, J. N. Schulman, T. Y. Hsu, und E. Uzi, <i>Effect of size nonuniformity on the absorption spectrum of a semiconductor quantum dot system</i> , Appl. Phys. Lett. 51 , 710-12 (1987).
[Yam93]	T. Yamauchi, T. Takahashi, J. N. Schulman, und Y. Arakawa, <i>Theoretical analysis of band structures and lasing characteristics in strained quantum wire lasers</i> , IEEE J. Quantum Electron. 29 , 2109-16 (1993).
[Yow95]	H. K. Yow, P. A. Houston, und M. Hopkinson, <i>Conduction band discontinuities in Ga/sub 0.5/In/sub 0.5/P-Al/sub x/Ga/sub 0.5-x/In/sub 0.5/P heterojunctions measured by internal photoemission</i> , Appl. Phys. Lett. 66 , 2852-4 (1995).
[Yu96]	Y. Yu und M. Cardona, <i>Fundamentals of Semiconductors</i> (Springer-Verlag Heidelberg, 1996).
[Yu99]	P. Yu, W. Langbein, K. Leosson, J. M. Hvam, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Egorov, A. E. Zhukov, A. F. Tsatsul'nikov, und G. Musikhin Yu, <i>Optical anisotropy in vertically coupled quantum dots</i> , Phys. Rev. B 60 , 16680-5 (1999).
[Zor93] [Zou98]	 P. S. Zory, <i>Quantum Well Lasers</i> (Academic Press, 1993). Z. Zou, O. B. Shchekin, G. Park, D. L. Huffaker, und D. G. Deppe, <i>Threshold temperature dependence of lateral-cavity quantum-dot lasers</i>, IEEE Photonics Technol. Lett. 10, 1672, 5 (1008).
[Zun99a] [Zun99b]	 M. K. Zundel, Dissertation, Universität Stuttgart, 1999. M. K. Zundel, K. Eberl, N. Y. Jin-Phillipp, F. Phillipp, T. Riedl, E. Fehrenbacher, und A. Hangleiter, <i>Self-assembled InP quantum dots for red LEDs on Si and injection lasers on GaAs</i>. J. Cryst. Growth 202, 1121-1125 (1999).
[Zun98]	M. K. Zundel, N. Y. Jin-Phillipp, F. Phillipp, K. Eberl, T. Riedl, E. Fehrenbacher, und A. Hangleiter, <i>Red-light-emitting injection laser based on InP/GaInP self-assembled</i> <i>auantum dots</i> . Appl. Phys. Lett. 73 , 1784-6 (1998).
[Zun97]	M. K. Zundel, P. Specht, K. Eberl, N. Y. JinPhillipp, und F. Phillipp, <i>Structural and optical properties of vertically aligned InP quantum dots</i> , Appl. Phys. Lett. 71 , 2972-2974 (1997).
[Zwi01]	V. Zwiller, L. Jarlskog, M. E. Pistol, C. Pryor, P. Castrillo, W. Seifert, und L. Samuelson, <i>Photoluminescence polarization of single InP quantum dots</i> , Phys. Rev. B 63 , 233301/1-4 (2001).

[Zwi93] G. Zwinge, I. Ziegenmeyer, H. H. Wehmann, G. P. Tang, und A. Schlachetzki, *InP on Si* substrates characterized by spectroscopic ellipsometry, J. Appl. Phys. **74**, 5889-91 (1993).

8.3 Veröffentlichungen

- Y. M. Manz, O.G. Schmidt, *Optical and structural anisotropy of InP/GaInP quantum dots for laser applications*, Appl. Phys. Lett. im Druck, (2003).
- Y. M. Manz, Schmidt, O. G., *A comparative study of an InP QD laser and a Ga_xIn_{1-x}P quantum well laser*, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **722**, K11.4.2 (2001).
- Y. M. Manz, O. G. Schmidt, und K. Eberl, Room-temperature lasing via ground state of current-injected vertically aligned InP/GaInP quantum dots, Appl. Phys. Lett. 76, 3343-5 (2000).
- M. Hayne, J. Maes, V. V. Moshchalkov, Y. M. Manz, und O. G. Schmidt, *Type II carrier confinement in epitaxially grown GaInP*, eingereicht bei Pys. Rev. Lett., (2003).
- O. G. Schmidt, Y. M. Manz, und K. Eberl, in *Nano-Optoelectronics*, edited by M. Grundmann (Springer, Leipzig, 2002), p. 339.
- M. Hayne, J. Maes, Y. M. Manz, O. G. Schmidt, K. Eberl, und V. V. Moshchalkov, *Electron and hole confinement in stacked self-assembled InP dots of different sizes*, Wiley-VCH. Physica Status Solidi B-Basic Research **224**, 31-5 (2001).
- K. Eberl, M. O. Lipinski, Y. M. Manz, W. Winter, N. Y. Jin-Phillipp, und O. G. Schmidt, *Self-assembling quantum dots for optoelectronic devices on Si and GaAs*, Elsevier. Physica E **9**, 164-74 (2001).
- O. G. Schmidt, M. O. Lipinski, Y. M. Manz, H. Heidemeyer, W. Winter, und K. Eberl, Lasers based on self-assembled InAs/GaAs and InP/GaInP quantum dots, Proc. 25th Int. Conf. Phys. Semicond., Osaka, 367 (2000).
- A. Christ, H. Giessen, W. W. Ruhle, K. Korona, J. Kuhl, M. Zundel, Y. Manz, und K. Eberl, *Carrier dynamics in stacked InP/GaInP quantum dots*, Wiley-VCH. Phys. Stat. Sol. B 221, 59-63 (2000).
- K. Eberl, M. Lipinski, Y. M. Manz, N. Y. Jin-Phillipp, W. Winter, C. Lange, und O. G. Schmidt, *Self-assembling InAs and InP quantum dots for optoelectronic devices*, Elsevier. Thin Solid Films **380**, 183-8 (2000).
- M. Hayne, R. Provoost, M. K. Zundel, Y. Manz, K. Eberl, und V. V. Moshchalkov, *Photoluminescence of stacked self-assembled InP quantum dots in high magnetic fields*, Physica E **8**, 125-128 (2000).
- M. Hayne, R. Provoost, M. K. Zundel, Y. Manz, K. Eberl, und V. V. Moshchalkov, *Hole coupling in stacked self-assembled InP quantum dots*, Physica E **6**, 436-439 (2000).
- M. Hayne, R. Provoost, M. K. Zundel, Y. M. Manz, K. Eberl, und V. V. Moshchalkov, *Electron and hole confinement in stacked self-assembled InP quantum dots*, Phys. Rev. B 62, 10324-8 (2000)

8.4 Danksagung

Ein herzliches Dankeschön an Alle, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Besonders danken möchte ich

- Prof. Dr. Klaus v. Klitzing für die Übernahme des Hauptberichts und sein stetes Interesse an dieser Arbeit.
- Prof. Tilman Pfau für das Interesse an dieser Arbeit und die freundliche Übernahme des Mitberichts.
- Dr. Karl Eberl für die freundliche Aufnahme in die MBE-Gruppe und die Betreuung bis zur Übernahme von Dr. Oliver G. Schmidt, dem ich für die kompetenten Diskussionen danke.
- Claudia Müller für AFM- und REM-Bilder und Monika Riek, Karsten Tötemeyer und André Matthes für die wertvolle Unterstützung bei der Laserprozessierung
- Dr. N. Yun Jin-Phillipp für TEM-Bilder und wertvollen Diskussionen.
- der MBE-Gruppe: Dr. Markus Zundel, meinem Vorgänger, dem ich die Vorarbeiten zu verdanken habe, Claudia Müller, Dr. Renate Zapf-Gottwick, Rudeesun Songmuang, Fred Schwerdt, Dr. Matthieu Stoffel, Dr. Guri Kar, Dr. Armando Rastelli, Karsten Tötemeyer, Ulrich Denker, Henry Heidemeyer, Wolfgang Winter, Maik Hauser, Christoph Deneke (danke für die schöne Zeit "on tour" in Kalifornien!) - es hat Spaß gemacht mit Euch (!) und der Gruppe von Klitzing, (Ulrike Waizmann besonders für Deine schöne Freundschaft und ebenfalls Stefan Kraus für die kraftspendenden Vier-Uhr-Tees!) und anderen lieben Kollegen in diesem Hause.
- Dr. Manus Hayne und Jochen Maes an der Universität Leuven/Belgien für die sehr gute Zusammenarbeit und fruchtbaren Diskussionen per e-mail.
- Dr. Thomas Riedl an der Universität Braunschweig für die sehr gute Zusammenarbeit und die wertvollen Diskussionen am Telefon.
- André Christ aus der Spektroskopie-Gruppe bei Herrn Dr. Jürgen Kuhl für die Unterstützung bei den Polarisationsmessungen und sehr guten Diskussionen.
- Frau Helga Ludwig für die Bereitstellung der "Einzelzelle" zum Zusammenschreiben.
- Henry Heidemeyer und Dr. Erik Ahlswede (danke Dir auch für die vielen guten Abendbrote usw.) für das Korrekturlesen der Arbeit.
- Meinen lieben Eltern für die unermüdliche Geduld mit mir und die liebevolle seelische Unterstützung.

8.5 Lebenslauf

Persönliche Daten:

Name:	Yvonne Marianne Manz
geboren am:	11. November 1971
in:	Stade
Familienstand:	ledig
Staatsangehörigkeit:	deutsch
Schulbildung:	
1977 - 1981	Grundschule Himmelpforten
1982 - 1984	Porta-Coeli-Schule Himmelpforten
1984 -1991	Vincent-Lübeck-Gymnasium Stade
05/1991	Abitur
Studium.	
Studium: Soptombor 1001	Paginn das Physik Studiums an dar Gaarg August Universität
September 1991	Göttingen
10/1993	Vordiplom
02/94 und 03/95	Studentische Hilfskraft bei DESY (Deutsches Elektronensyn- chrotron)
Diplomarbeit:	am 4. Phys. Institut der Universität Göttingen bei Prof. U.G. Ul- brich: "Einfluß elektrischer Felder beim Wachstum dünner Gold- filme- Zusammenhang zwischen der Mikrostruktur und dem elektrischen Widerstand"
26.06.1997	Diplom
02-08/1998	Entwicklungsarbeit für ein mikromechanisches Bauelement in F+E/Firma Bosch GmbH in Stuttgart-Schillerhöhe
seit 09/1998	Vorbereitung der Dissertation am Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Stuttgart in der Arbeitsgruppe Molekularstrahlepitaxie, Dr. Karl Eberl, Dr. O.G. Schmidt