Herstellung und Untersuchung von Mikroresonatoren

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades des Fachbereichs Physik der Universität Hamburg

> vorgelegt von DAVID ENDLER aus Boulder/Colorado

> > Hamburg

2002

Gutachter der Dissertation:	Prof. Dr. D. Heitmann Prof. Dr. G. Huber
Gutachter der Disputation:	Prof. Dr. D. Heitmann Prof. Dr. W. Hansen
Datum der Disputation:	20. Februar 2002
Dekan des Fachbereichs Physik und Vorsitzender des Promotionsausschusses:	Prof. Dr. FW. Büßer

Abstract

In this work the preparation and investigation of semiconductor microcavities is presented. The performed investigations are focused on optimizing the Molecular Beam Epitaxy growth of Distributed Bragg Reflectors and self–assembled grown InAs quantum dots.

Basic processes during Molecular Beam Epitaxy growth, the results of spectroscopic measurements and simulations performed on a computer, are the tools which were used to improve the preparation of microcavities. During this process, it became obvious that the calibration of the longtime flux rate with Reflection High Energy Electron Diffraction cannot be performed with a sufficient accuracy. For this reason, a pyrometer was installed in the Molecular Beam Epitaxy. By using this technique, a significant improvement in determining the longtime flux rates was achieved. Furthermore, an *in–situ* monitoring of the growth process can be performed.

In the same time we tried to improve the Molecular Beam Epitaxy growth of InAs quantum dots with respect to their optical properties. The early stages of the three–dimensional island growth mode as well as the dependence of the optical properties on growth conditions were investigated. From these results the size distribution of the self–assembled grown InAs quantum dots and the quantum efficiency could be significantly improved.

By combining the experiences obtained by the investigations on the Molecular Beam Epitaxy growth of Distributed Bragg Reflectors and self–assembled InAs quantum dots, another microcavity was fabricated. In the active layer of this resonator InAs quantum dots were embedded. The flux rates of the effusion cells were determined by pyrometric interferometry and the pyrometer was used for monitoring the growth process, too. Photoluminescence, transmission and reflection experiments were performed on this sample.

Inhaltsangabe

Gegenstand dieser Arbeit ist die Herstellung und Untersuchung von Halbleiter– Mikroresonatoren. Hierbei stehen insbesondere Optimierungsprozesse des Molekularstrahlepitaxie–Wachstums von dielektrischen Spiegeln und selbstorganisiert gewachsenen InAs–Quantenpunkten im Mittelpunkt des Interesses.

Auf der Basis von elementaren Prozessen, die beim Molekularstrahlepitaxie-Wachstums auf der Substratoberfläche stattfinden sowie unter Berücksichtigung der Ergebnisse von spektroskopischen Messungen an gewachsenen Mikroresonatoren und mit Hilfe von Computersimulationen wurden systematische Fehler, die während des Wachstums auftraten, erkannt und eliminiert. Im Laufe dieses Optimierungsprozesses konnte insbesondere festgestellt werden, daß eine Langzeit–Flußratenmessung mit Reflection High Energy Electron Diffraction stark fehlerbehaftet ist. Aus diesem Grund wurde ein Pyrometer in die Molekularstrahlepitaxie–Anlage integriert. Die Signale, welche von diesem optischen Analysegerät aufgezeichnet werden, können mit Hilfe der Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12) ausgewertet werden. Die Ergebnisse der Messungen zeigen, daß durch die Bestimmung der Langzeit–Flußraten durch Verwendung dieser Kalibirierungsmethode signifikant verbessert werden konnte. Darüberhinaus bietet das Pyrometer noch den Vorteil, daß eine *in–situ* Überwachung In–situ!Überwachung des gesamten Wachstumsprozesses möglich ist.

Gleichzeitig wurde an einer Verbesserung der optischen Eigenschaften von InAs-Quantenpunkten gearbeitet. Hier wurden insbesondere Überlegungen zum Entstehen der Wachstumsinseln angestellt und die für das Wachstum entscheidenden Parameter systematisch optimiert. Hierdurch konnte eine wesentlich homogenere Größenverteilung der InAs-Quantenpunkte auf der Substratoberfläche sowie eine erheblich größere Quantenausbeute des Photolumineszenzsignals erreicht werden.

Unter Berücksichtigung der gewonnenen Erkenntnisse über das Molekularstrahlepitaxie–Wachstum von Mikroresonatoren und InAs–Quantenpunkten wurde ein Mikroresonator hergestellt, in dessen Zentrum InAs–Quantenpunkte eingebettet wurden. Hierbei wurde sowohl die Kalibrierung der Flußraten als auch eine Aufzeichnung des Wachstumsprozesses mit Hilfe des Pyrometers durchgeführt. Anschließend wurden an dieser Probe Photolumineszenz–, Transmissions– und Reflexionsmessungen durchgeführt.

Inhaltsverzeichnis

1	Einl	eitung		1
2	Das	Materi	alsystem	5
	2.1	Galliu	marsenid (GaAs), Aluminiumarsenid (AlAs) und Indiumar-	
		senid ((InAs)	5
	2.2	Einteil	lchenzustände	6
		2.2.1	Einteilchenzustände im Volumenmaterial	6
		2.2.2	Einteilchenzustände in einem räumlichen Einschlußpo-	0
	• •	· · · · ·		8
	2.3	Vieltei		11
		2.3.1	Exzitonen im Volumenmaterial	12
		2.3.2	Exzitonen in einem räumlichen Einschlußpotential	13
3	The	oretisch	ne Grundlagen	15
	3.1	Lichtb	rechung an einem <i>i</i> -Schichten System	15
		3.1.1	Fresnel–Formeln	15
	3.2	Dielek	trische Spiegel	17
	3.3	Mikro	resonatoren	21
4	Die	Moleku	larstrahlepitaxie	27
	4.1	Grund	lagen	27
	4.2	Der W	Vachstumsprozeß	29
	4.3	Kalibr	ierung des Zellenflusses mit RHEED	29
		4.3.1	RHEED–Oszillationen	29
		4.3.2	Grenzflächenrauhigkeiten	32
		4.3.3	Shuttertransiente	32
		4.3.4	As-Desorption	33
		4.3.5	Flußkalibrierung mit RHEED	33
	4.4	Wachs	stumsmodelle	36
		4.4.1	Frank–van der Merwe–Wachstum	37
		4.4.2	Stranski–Krastanov–Wachstum	37

	4.5	Bestin	nmung der Oberflächenstruktur mit RHEED	43
		4.5.1	Geometrie der Beugungsreflexe	43
5	Mef	Smetho	de und Meßaufbau	47
	5.1	Photol	lumineszenz	47
	5.2	Der Pl	notolumineszenz–Meßaufbau	49
		5.2.1	Der Durchflußkryostat	50
		5.2.2	Die Anregungsquellen	52
		5.2.3	Das Fourier–Spektrometer	52
	5.3	Transr	nissions– und Reflexionsspektroskopie	54
6	Unt	ersuchu	ingen zum MBE–Wachstum von Mikroresonatoren	57
	6.1	Arbeit	sschritte zur Herstellung eines Mikroresonators	57
	6.2	Übersi	icht über die Proben vor Beginn dieser Arbeit	58
	6.3	Optim	ierung des Wachstumsprozesses	59
	0.0	6.3.1	Optimierung der Simulationsrechnungen	59
		6.3.2	Optimierung des Zellenflusses	61
7	Pvr	ometris	che Interferometrie	67
•	7.1	Grund	lagen	67
		7.1.1	Funktionsweise	68
		7.1.2	Kalibrierung des Pyrometers	70
	7.2	Flußka	alibrierung mit einem Pyrometer	71
	,	7.2.1	Experimenteller Vergleich der beiden Kalibrierungsme-	, 1
			thoden	74
		7.2.2	Abschließender Vergleich der beiden Kalibrierungsme-	
			thoden	75
	7.3	Herste	ellung der Probe #836	76
	7.4	In–siti	<i>u</i> Monitoring des MBE–Wachstums mit einem Pyrometer	78
		7.4.1	Langzeitverhalten des Ga-Flusses aufgezeichnet mit ei-	
			nem Pyrometer	79
		7.4.2	Pyrometersignal für das Wachstum eines Mikroresonators	81
		7.4.3	In-situ Kontrolle des MBE-Wachstums mit Hilfe des Py-	
			rometers	82
8	Unt	ersuchu	ingen zum MBE–Wachstum von InAs–Quantenpunkten	85
	8.1	Arbeit	sschritte zur Herstellung von InAs–Quantenpunkten	85
	8.2	Photol	umineszenzuntersuchungen an InAs–Quantenpunkten	89
		8.2.1	Intensitätsdichte und Laserspotdurchmesser des anregen-	
			den Lichtes	89
		8.2.2	Aufbau der untersuchten Proben	91

		8.2.3	Photolumineszenzspektren von InAs–Quantenpunkten in	00
		871	GaAs	92
		8.2.4	optimierung des wachstumsprozesses init Ame von Pho-	0/
		825	Intensitätsabhängige Photolumineszenzuntersuchungen	94
		0.2.5	an $\ln \Delta s_{-}$ Ouantenpunkten	104
	83	Photol	umineszenz– und Kanazitätssnektroskonie an InAs–	104
	0.5	Quante	npunkten	105
9	Unte	ersuchu	ngen an Mikroresonatoren	109
	9.1	Die Pro	bbe #455	109
	9.2	Die Pro	be #688	109
	9.3	Die Pro	bbe #836	110
		9.3.1	Photolumineszenzuntersuchungen an Probe #836	110
		9.3.2	Transmissions- und Reflexionsuntersuchungen an Probe	
			#836	118
10	Zusa	ammenf	àssung	123
Α	Auft	oau der	beschriebenen Proben	125
	A.1	Probe #	\$580	125
	A.2	Probe #	\$688	126
	A.3	Probe #	¥701	127
	A.4	Probe #	#816	128
	A.5	Probe #	¥939	129
Lit	eratu	ırverzei	chnis	131
Inc	lex			141
Da	nksag	gung		145

Abbildungsverzeichnis

Die Kristallstruktur von GaAs.	5
Die Bandstruktur von GaAs in der Nähe des Γ -Punktes	7
Schematische Darstellung der Bandlückendiskontinuität in einem	
Quantentopf	9
Freies Exziton im Kristallgitter.	12
Geometrie an der Grenzfläche.	16
Schematische Darstellung eines dielektrischen Spiegels mit zwei Schichten.	18
Schematische Darstellung eines dielektrischen Spiegels mit i	
Schichten.	19
Reflektivität eines dielektrischen Spiegels mit <i>i</i> Schichten	21
Schematische Darstellung eines Mikroresonators.	22
Berechnetes Transmissions- und Reflexionsspektrum eines Mi-	
kroresonators	23
Berechnete Dispersionsrelation eines Mikroresonators	25
Schematischer Aufbau einer MBE–Anlage.	28
Modifizierter Aufbau einer MBE–Anlage	30
Modell zur Entstehung von RHEED–Oszillationen	31
Beispiel für gemessene RHEED–Oszillationen.	34
Aus den Peakabständen ermittelte Flußgeschwindigkeiten.	35
Schematische Darstellung der drei Wachstumsmodi.	36
Schematische Darstellung des Lagenwachstums.	38
Beugungsbilder, reziprokes Gitter und Oberflächenmorphologie	
für verschiedene Oberflächenstrukturen.	44
Beugungsbilder für das Wachstum von InAs auf GaAs	46
Das Prinzip der Photolumineszenz.	48
Photolumineszenz aus angeregten Zuständen.	49
Der Photolumineszenz–Meßaufbau.	50
Der Durchflußkryostat.	51
	Die Kristallstruktur von GaAs

5.5 5.6	Das Fourier–Spektrometer	53 54
6.1	Ergebnisse der <i>in–situ</i> Messung des Zellenflusses	62
6.2	Reflexionsspektrum der Probe #455	63
6.3 6.4	Reflexionsspektrum der Probe #583	64
	rechnete Spektren	65
7.1	Modifizierter Aufbau einer MBE–Anlage	68
7.2	Zur Schichtdickenmessung mit Hilfe des Pyrometers	69
7.3	Abhängigkeit des Pyrometersignals von der Wellenlänge einer	
	Lichtquelle.	70
7.4	Schematische Darstellung der Abhängigkeit der Intensität eines	
	Pyrometersignals I von der Schichtdicke d. Die Berechnung er-	70
	folgte mit Hilfe der Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12).	72
7.5	Aufzeichnung eines Pyrometersignals über die Zeit $t. \ldots$	73
7.6	Reflexionsspektrum der Probe #836.	78
7.7	Pyrometersignal sowie deren fouriergeglättete Kurve für das	70
7.0	Wachstum einer reinen GaAs–Schicht.	79
7.8	Pyrometersignal für das Wachstum eines Mikroresonators	81
8.1	Vergleich des internen Meßgerätes mit einem externen	90
8.2	Bestimmung der Laserspotgröße	91
8.3	Aufbau der untersuchten Proben	92
8.4	Gemessenes Photolumineszenzspektrum von InAs-	0.2
05	Quantenpunkten in GaAs.	93
8.J	Stationen bei der Optimierung des wachstumsprozesses	95
8.0 9.7	PL-Spektren der Proben #907, #908 und #909	99 101
ð./	PL-Spektren der Proben #913, #914 und #915	101
0.0	PL-Spektrell der Proben #917, #918 und #919	103
0.9	A EM Bild dar Brobe #021	104
0.10	AFM-Dild del Piobe #951	103
8.11	Photolumineszenzspektren der Proben #939 und #931	107
9.1	Photolumineszenzspektren der Probe #836 und der Referenzprobe.	111
9.2	Modifizierter Versuchsaufbau zur winkelabhängigen Photolumi-	
0.0	neszenzmessung.	113
9.3	Winkelabhängige Photolumineszenzspektren der Probe #836 für	
. ·	s– und p–Polarisation	114
9.4	Berechnete und gemessene winkelabhängige Photolumineszenz-	
	spektren der Probe #836 für s–Polarisation.	115

9.5	Gemessene und berechnete Dispersionsrelation der Probe #836 116
9.6	Intensitätsabhängige Photolumineszenzmessung an Probe #836 117
9.7	An Probe #836 gemessenes Transmissions- und Reflexionsspektrum. 119
9.8	Temperaturabhängige Transmissions- und Reflexionsmessungen
	an Probe #836
9.9	An Probe #836 gemessenes Reflexions- und Photolumineszenz-
	spektrum

Kapitel 1

Einleitung

In den letzten 25 Jahren ist in der Physik eine schnell fortschreitende Fachrichtung innerhalb der Festkörperphysik entstanden, die der nanostrukturierten Halbleiter. Möglich wurde diese rasante Entwicklung durch die Möglichkeit, mit Hilfe der Molekularstrahlepitaxie (MBE^1) Halbleiterstrukturen für die jeweils gewünschte Anwendung quasi maßzuschneidern.

Aufgrund des schnell voranschreitenden Fortschritts im Bereich der MBE, genannt sei hier die Entwicklung der *RHEED*²–Methode [Neave et al., 1983], [van Hove et al., 1983], kamen schon bald industriell nutzbare Anwendungen aus dem Bereich der nanostrukturierten Halbleiter auf den Markt. Hierbei waren insbesondere niederdimensionale Halbleitersysteme sowohl für die Grundlagenforschung als auch für Anwendungen von großem Interesse. Einer der Höhepunkte auf diesem Gebiet ist die aus den III–V–Verbindungshalbleitern Galliumarsenid (GaAs) und Aluminiumgalliumarsenid (AlGaAs) bestehende *HEMT*³–Struktur, die bereits großindustriell im Bereich der Mobiltelefone und Satellitenempfänger zum Einsatz kommt.

Besonders in den letzten zehn Jahren stießen quasi nulldimensionale Halbleitersysteme auf immer mehr Interesse, da eine Reihe von interessanten Anwendungen, die solche Strukturen enthalten, denkbar sind. So wurde beispielsweise bereits im Jahre 1994 von Kirstaedter et al. ein Quantenpunktlaser realisiert [Kirstaedter et al., 1994]. In Zukunft sind vor allem Anwendungen im Bereich der optischen Speichermedien, optoelektronischen und logischen Bauelemente sowie insbesondere die Weiterentwicklung und Verbesserung von Quantenpunktlasern denkbar.

Während diese nulldimensionalen Systeme anfangs durch aufwendige lithographische Methoden strukturiert wurden, entdeckten Leonard et al. 1993 einen

¹Abk. für engl. Molecular Beam Epitaxie.

²Abk. für engl. Reflection High Energy Electron Diffraction.

³Abk. für engl. High Electron Mobility Transistor.

selbstorganisierenden Wachstumsprozeß, bei dem sich dreidimensionale Inseln von Indiumarsenid (InAs) auf GaAs–Substrate ablagern. Die Größe dieser Strukturen beträgt hierbei einige bis einige zehn Nanometer. Mit Hilfe von Photolumineszenzuntersuchungen konnten sie darüberhinaus zeigen, daß diese Strukturen eine erstaunlich homogene Größenverteilung besitzen und ein stärkeres Photolumineszenzsignal aufwiesen als in derselben Probe befindliche Quantentöpfe.

Durch die stetige Verbesserung der MBE und ihrer Komponenten konnte seit der Einführung dieser Technologie die Genauigkeit des Probenwachstums stark verbessert werden. Hierdurch wurde die Herstellung von komplexen Halbleiterstrukturen möglich, so konnte beispielsweise im Jahre 1988 von Iga et al. der *VCSEL*⁴ realisiert werden [Iga et al., 1988].

Kurze Zeit später wurden die ersten Untersuchungen an Mikroresonatoren angestellt [Yokoyama et al., 1990]. Diese bestehen aus zwei dielektrischen Spiegeln, zwischen denen eine Resonatorschicht eingebettet ist. Hierbei wird die Dicke der Resonatorschicht so gewählt, daß sich innerhalb dieser stehende Wellen ausbilden können. Die Schichtdicken der dielektrischen Spiegel sind so auf die Resonatorschicht abgestimmt, daß sich die an den Grenzflächen der Spiegel und der Resonatorschicht reflektierten Lichtstrahlen konstruktiv überlagern. Hierdurch kommt es zu einer enormen Überhöhung des elektrischen Feldes innerhalb der Resonatorschicht. Somit können also zum einen Strukturen, welche sich in der Resonatorschicht befinden, resonant angeregt werden, indem das anregende Licht in Resonanz mit der Resonatormode ist. Zum anderen können Anregungen innerhalb der Resonatorschicht resonant verstärkt werden, indem die Schichtdicken des Resonators derart angepaßt werden, daß das innerhalb des Resonators emittierte Licht in Resonanz mit der Mode ist.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der MBE–Wachstumsprozeß von Halbleiter– Mikroresonatoren untersucht. Hierbei wird insbesondere beschrieben, wie die zur Herstellung von qualitativ hochwertigen Proben notwendige Genauigkeit beim Wachstum von dielektrischen Spiegeln erreicht werden konnte. Wie die durchgeführten Untersuchungen zeigen, kann die Kalibrierung der Langzeit–Flußraten für das MBE–Wachstum mit Hilfe von RHEED die erforderte Genauigkeit nicht erreichen. Aus diesem Grund wurde vom Autor ein Pyrometer⁵ in die MBE– Anlage integriert. Durch die Auswertung der von diesem Gerät aufgezeichneten optischen Signale konnten die Langzeit–Flußraten der einzelnen Effusionszellen deutlich genauer bestimmt werden, wodurch wiederum die Qualität der Proben signifikant gesteigert werden konnte.

Des weiteren wurden Untersuchungen zum selbstorganisierten MBE-Wachstum

⁴Abk. für engl. Vertical Cavity Surface Emitting Laser.

⁵Griech. für Feuermesser.

von InAs–Quantenpunkten auf GaAs–Substraten angestellt. Hierbei wurden sowohl die Prozesse, welche zum Entstehen der Wachstumsinseln führen, als auch die optischen Eigenschaften dieser quasi nulldimensionalen Systeme analysiert. Ziel der Untersuchungen an den gewachsenen InAs–Quantenpunkten war deren optische Eigenschaften, hier seien insbesondere die Quantenausbeute und eine homogene Größenverteilung genannt, zu verbessern.

Schließlich wurden diese beiden Bereiche miteinander verknüpft und es wurde ein Mikroresonator hergestellt, in dessen Zentrum InAs–Quantenpunkte eingewachsen wurden. Hierbei mußten insbesondere Schwierigkeiten, die sich aus der Abstimmung der dielektrischen Spiegeln und den in die Resonatorschicht eingebetteten Quantenpunkten ergeben, überwunden werden. So zeigte sich, daß besonders die energetische Position des von den InAs–Quantenpunkten emittierten Lichtes, welche sich unmittelbar aus der Größe der InAs–Inseln ergibt, nur innerhalb von gewissen Grenzen reproduziert werden konnte. Da aber das von den Quantenpunkten emittierte Lumineszenzlicht aufgrund von Größenfluktuationen der Inselgröße verbreitert ist, ist die Wahrscheinlichkeit, daß das von Quantenpunkten einer bestimmten Größe emittierte Licht resonant verstärkt wird, sehr hoch.

Kapitel 2

Das Materialsystem

Im folgenden sollen die physikalischen Eigenschaften der III–V Halbleiter GaAs, Aluminiumarsenid (AlAs) und InAs, die für diese Arbeit relevant sind, vorgestellt werden.

2.1 Galliumarsenid (GaAs), Aluminiumarsenid (AlAs) und Indiumarsenid (InAs)

Die drei Verbindungshalbleiter GaAs, AlAs und InAs kristallieren in der Zinkblendestruktur aus. Das bedeutet, daß Atome des Konstituenten aus der dritten Hauptgruppe ein kubisch flächenzentriertes Raumgitter (fcc) bilden und die Arsen (As)–Atome um 1/4 der Raumdiagonalen entlang derselben versetzt in einem zweiten kubisch flächenzentrierten Raumgitter angeordnet sind (vgl. Abb. 2.1).



ABBILDUNG 2.1: Die Kristallstruktur von GaAs, aus [Sze, 1981].

Jedes Atom ist also von vier nächsten Nachbarn umgeben, die acht Elektronen der äußeren Schalen beider Atome tragen in Form von sp^3 –Hybridorbitalen zur Bindung bei. Die Bindungen sind, aufgrund leicht unterschiedlicher Elektronegativität, schwach polarisiert, was eine Erhöhung der Elektronendichte am Ort der As–Atome zur Folge hat. In (100)–Kristallrichtung besteht das Gitter aus einer alternierenden Folge von As– und Element–III–Ebenen, mit einem Abstand von 1/4 der Gitterkonstanten *a*.

2.2 Einteilchenzustände

Um alle physikalischen Phänomene eines Kristalls exakt beschreiben zu können, müßte man in der Lage sein, die Schrödingergleichung für das jeweilige System vollständig lösen zu können. Aufgrund der enormen Anzahl von Atomen¹ ist man jedoch auf Näherungsverfahren angewiesen.

Eine Möglichkeit, den Kristall zu beschreiben, liefert die *Einteilchennäherung*, welche die Bewegung eines Elektrons in einem starren Kristall beschreibt. Man "hält" also alle Atome und Elektronen des Festkörpers fest und faßt den Einfluß dieses Kristalls auf ein einzelnes Elektron in einem periodischen, effektiven und zeitunabhängigen Potential zusammen. Obwohl diese Näherung recht grob erscheint, lassen sich mit Hilfe der Einteilchennäherung viele Eigenschaften des Festkörpers gut beschreiben.

2.2.1 Einteilchenzustände im Volumenmaterial

Durch die oben beschriebene Periodizität des Potentials ergibt sich für die Bewegung eines Elektrons in diesem Gitter eine Bandstruktur. Dabei haben diese Bänder ihren Ursprung in den bindenden und antibindenden Hybridorbitalen der kovalenten Bindungen der Atome.

Von der Einteilchennäherung ausgehend gibt es mehrere Ansätze, die Bandstruktur für die gesamte *Brioullinzone*² zu berechnen. Genannt seien hier die *Pseudopotentialmethode* und die *Tight–Binding–Näherung*³. Eine Übersicht über die Vor– und Nachteile der einzelnen Methoden geben Yu und Cardona [Yu und Cardona, 1999].

Im folgenden sollen Anregungen mit Photonen beschrieben werden. Für solche optischen Anregungen ist es zweckmäßig, den Impulsübertrag der Photonen $\Delta \vec{k}_{Photon}$ gleich null zu setzen.

Weiterhin reicht es in den meisten Fällen aus, die Bandstruktur nur in unmittelbarer Umgebung von Punkten hoher Symmetrie in der Brioullinzone zu betrachten, da die freien Ladungsträger des Halbleiters hier bevorzugt lokalisiert sind. Die Berechnung der Energiebandstrukturen in der Umgebung von solchen Punkten

 $^{^{1}}$ In der Größenordnung 10^{23} cm $^{-3}$.

²Einheitszelle des Kristalls im reziproken Raum.

³Auch Linear Combination of Atomic Orbitals (*LCAO*)–Methode.

mit hoher Symmetrie kann nun mit Hilfe der $\vec{k} \cdot \vec{p}$ -Methode durchgeführt werden. Diese ermöglicht eine Beschreibung der lokalen Bandstruktur mit sehr hoher Genauigkeit.

Liegt ein nichtentartetes Band mit Bandkantenminimum im Zentrum der Brillouinzone vor, so wird im Rahmen der Effektivmassennäherung der Einfluß des periodischen Kristallpotentials in eine effektive Masse des Elektrons projiziert [Slater, 1949], die im allgemeinen eine tensorielle Größe $(m_e^*)_{ij}$ ist. In der Nähe des Γ -Punktes kann die Bandstruktur in guter Näherung als isotrop angenommen werden, wodurch die effektive Masse eine skalare Größe wird.

Um die Valenzbänder zu berechnen, reicht die vereinfachte Rechnung in der Effektivmassennäherung nicht mehr aus. Da die Valenzbänder (lh) und (hh) am Γ –Punkt entartet sind, darf die Spin–Bahn–Wechselwirkung



ABBILDUNG 2.2: Die Bandstruktur von GaAs in der Nähe des Γ -Punktes. Dargestellt sind das zweifach entartete, parabolische Leitungsband (e), ein Schwerlochband (hh, heavy hole), ein Leichtlochband (lh, light hole) und das tiefer liegende Split– Off–Band (soh, split off hole). Außerdem sind der Gesamtdrehimpuls und seine z– Komponente $|Jm_i\rangle$ angegeben.

nicht mehr vernachlässigt werden. Daher wurde von Luttinger und Kohn die $\vec{k} \cdot \vec{p}$ Störungsrechnung entwickelt, welche die Effektivmassennäherung dahingehend erweitert, daß auch Zustände beschrieben werden können, bei denen die Bandkantenminima nicht im Zentrum der Brillouinzone liegen und solche, bei denen die Bänder entartet sind [Luttinger und Kohn, 1955, Luttinger, 1956]. Die Zustände in den entarteten Valenzbändern können durch den Gesamtdrehimpuls $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ und seine z-Komponente m_j charakterisiert werden. Dabei ist Lder Bahndrehimpuls und S der Spin der Elektronen. An der Valenzbandkante befindet sich ein vierfach entarteter Zustand mit $|\vec{J}| = 3/2$, der sich aus einem Schwerlochband mit $m_j = \pm 3/2$ und einem Leichtlochband mit $m_j = \pm 1/2$ zusammensetzt. Durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung liegt ein weiteres Band mit $|\vec{J}| = 1/2$ energetisch etwas tiefer und wird deswegen als Split-Off-Band bezeichnet (vgl. Abb. 2.2).

MATERIALKONSTANTEN VON GAAS, ALAS UND INAS

Die Tabelle 2.1 gibt eine Übersicht über einige der Materialkonstanten der drei Kompositionshalbleiter GaAs, AlAs und InAs.

	Gitterkon- stante (nm)	Bandlücke (eV)	Effektive Masse			
Material			Elektronen	Leichte	Schwere	
				Löcher	Löcher	
GaAs	0,565 ^{a)}	$1,52^{b)}$	$0,0665m_e^{\rm c})$	$0,090 m_e^{ m d}$	$0,377m_e^{d}$	
AlAs	$0,5657^{a)}$	2,89 ^{e)}	$0,1545m_e^{\rm e}$	$0,150m_e^{e}$	$0,760m_e^{\rm e)}$	
InAs	0,606 ^{f)}	0,41 ^{f)}	$0,024m_e^{f}$	$0,026m_e^{f}$	$0,410m_e^{f}$	

 TABELLE 2.1: Einige physikalische Materialkonstanten von GaAs, AlAs und InAs.

^{a)} bei 4,2 K [Adachi, 1985].

^{b)} nach Formel $E_G^{GaAs}(T) = 1,519 \text{ eV} - \frac{5,405 \cdot 10^{-4} T^2}{T+204} \text{ eV}$ [Thurmond, 1975].

^{c)} nach [Vrehen, 1968].

^{d)} nach [Ekenberg und Altarelli, 1987].

e) nach [Adachi, 1985].

^{f)} nach [Hrivnák, 1989].

Bei den in Tabelle 2.1 angegebenen Werten für AlAs ist zu beachten, daß dieser Halbleiter eine indirekte Bandlücke besitzt. Der Wert für die Bandlücke von AlAs ist der energetische Abstand zwischen der Leitungsbandkante am X–Punkt zur Valenzbandkante am Γ –Punkt. Die energetische Lücke zwischen Leitungs– und Valenzband am Γ –Punkt beträgt 3,13 eV [Landolt-Bernstein, 1982].

Wie bereits erwähnt, besitzen die drei vorgestellten Halbleiter dieselbe Kristallstruktur. Aus Tabelle 2.1 geht des weiteren hervor, daß die Gitterkonstanten von GaAs und AlAs annähernd gleich groß sind. Im Gegensatz dazu ist die Gitterkonstante von InAs rund 7,2% größer. Diese Tatsache wird bei der Präparation der Proben, die in Kapitel 4 beschrieben wird, von entscheidender Bedeutung sein.

2.2.2 Einteilchenzustände in einem räumlichen Einschlußpotential

Wie bereits in Kapitel 1 erwähnt, sind Systeme mit reduzierter Dimensionalität von großem Interesse. An dieser Stelle soll ein stark vereinfachendes Modell zur Beschreibung von Einteilchenzuständen in einem räumlichen Einschlußpotential⁴ vorgestellt werden⁵. Dabei sollen die grundlegenden Methoden zur Beschreibung eines solchen Systems zuerst an einem 2D–Modell erläutert werden und anschließend auf Systeme niedrigerer Dimensionalität erweitert werden.

⁴Auch engl. Confinement.

⁵Eine genauere Beschreibung der Einteilchenzustände in einem Quantentopf liefert die Enveloppenfunktionsnäherung (auch *EFA* Abk. für engl. für Envelope–Function Approximation), die auf Bastard zurückgeht [Bastard, 1981].

EINTEILCHENZUSTÄNDE IN EINEM EINDIMENSIONALEN QUANTENTOPF MIT ENDLICH HOHEN WÄNDEN

Der eindimensionale *Quantentopf* stellt eine vergleichsweise einfache Möglichkeit dar, ein räumliches Einschlußpotential innerhalb eines Festkörpers zu realisieren. Dieser besteht aus einer Doppelheterogrenzfläche, auch Sandwich–Struktur genannt (vgl. Abb. 2.3).



ABBILDUNG 2.3: Schematische Darstellung der Bandlückendiskontinuität in einem Quantentopf. Ein Material mit kleinerer Bandlücke (hier beispielsweise GaAs) wird zwischen zwei Barrieren (hier AlGaAs) eingewachsen.

Dabei wird ein Material mit kleinerer Bandlücke E_G^L zwischen zwei Barrieren mit größerer Bandlücke E_B^H eingebettet. Es ergibt sich also ein Potentialverlauf, der dem quantenmechanischen Modell eines Potentialtopfes mit endlich hohen Wänden in einer Dimension gleicht. Die Ladungsträger können sich nicht mehr frei in der Wachstumsrichtung z bewegen, es entsteht ein anziehender Potentialwall für Elektronen und Löcher in der Schicht mit kleinerer Bandlücke E_G^L .

Charakteristisch für einen Quantentopf ist die Dicke L_z der eingeschlossenen Schicht, welche einige nm beträgt. Dadurch wird die Bewegung der Elektronen in z-Richtung also stark eingeschränkt, wodurch Quantisierungseffekte auftreten, die stark von der Quantentopfbreite L_z abhängen.

Zur mathematischen Beschreibung des Quantentopfes werden folgende Größen eingeführt:

- E_e Energetischer Abstand zwischen dem niedrigsten Elektronenzustand und der Leitungsbandkante.
- E_h Energetischer Abstand zwischen dem höchsten Lochzustand und der Valenzbandkante.
- E_G^{QW} Energetischer Abstand zwischen dem niedrigsten Elektronenzustand und dem höchsten Lochzustand im Quantentopf.
- ΔE_C Potentialtopftiefe des Leitungsbandes am Γ -Punkt.
- ΔE_V Potentialtopftiefe des Valenzbandes am Γ -Punkt.

Mit Hilfe des Gleichungssystems

$$\Delta E_C = Q \quad (E_G^H - E_G^L) \tag{2.1}$$

$$\Delta E_V = (1 - Q)(E_L^H - E_G^L)$$
(2.2)

$$E_G^{QW} = E_G^L + E_e(L_z) + E_h(L_z)$$
(2.3)

$$\sqrt{\frac{m_e^{*L}E_eL_z^2}{2\hbar^2}} = \arccos\sqrt{\frac{m_e^{*L}E_e}{m_e^{*H}\Delta E_C}}$$
(2.4)

$$\sqrt{\frac{m_h^{*L}E_hL_z^2}{2\hbar^2}} = \arccos\sqrt{\frac{m_h^{*L}E_h}{m_h^{*H}\Delta E_V}}$$
(2.5)

können für ein bestimmtes L_z die Energiezustände E_e und E_h bei Kenntnis der effektiven Massen $m_{e,h}^{*H,L}$ und des Diskontinuitätsparameters⁶ Q bestimmt werden. Im Gleichungssystem (2.1) bis (2.5) beschreiben die beiden Gleichungen (2.4) und (2.5) die Lösung der Schrödingergleichung für das Problem eines Teilchens in einem endlich hohen Potentialtopf in Abhängigkeit von der Potentialtopfbreite L_z und der Potentialtopftiefe ΔE_C bzw. ΔE_V [Landau und Lifschitz, 1979].

EINTEILCHENZUSTÄNDE IN EINEM KASTEN MIT ENDLICH HOHEN WÄNDEN

Eine Möglichkeit, die Bewegung der Elektronen in allen drei Raumrichtungen einzuschränken, bietet der nulldimensionale Quantentopf, auch Kasten oder Quantenpunkt genannt. Hier sind die Ladungsträger in einem nulldimensionalen Potentialtopf gefangen und von endlich hohen Barrieren umgeben.

 $^{^{6}}$ Der Diskontinuitätsparameter Q ist eine Konstante, die für die in dieser Arbeit relevanten Kombinationen von Barrieren– und Topfmaterial bekannt ist.

Unter der Annahme, daß das Einschlußpotential in einer Raumrichtung jeweils unabhängig von den beiden anderen ist, kann das Problem mit Hilfe eines Separationsansatzes gelöst werden. Analog zum Gleichungssystem (2.1) bis (2.5) für ein eindimensionales Einschlußpotential ergibt sich für den dreidimensionalen Fall:

$$\Delta E_C = Q \quad (E_G^H - E_G^L) \tag{2.6}$$

$$\Delta E_V = (1 - Q)(E_L^H - E_G^L)$$
(2.7)

$$E_G^{QW} = E_G^L + E_{e,x} + E_{h,x} + E_{e,y} + E_{h,y} + E_{e,z} + E_{h,z}$$
(2.8)

$$\sqrt{\frac{m_e^{*L}E_{e,x}L_x^2}{2\hbar^2}} = \arccos\sqrt{\frac{m_e^{*L}E_{e,x}}{m_e^{*H}\Delta E_C}}$$
(2.9)

$$\sqrt{\frac{m_h^{*L}E_{h,x}L_x^2}{2\hbar^2}} = \arccos\sqrt{\frac{m_h^{*L}E_{h,x}}{m_h^{*H}\Delta E_V}}$$
(2.10)

$$\sqrt{\frac{m_e^{*L}E_{e,y}L_y^2}{2\hbar^2}} = \arccos\sqrt{\frac{m_e^{*L}E_{e,y}}{m_e^{*H}\Delta E_C}}$$
(2.11)

$$\sqrt{\frac{m_h^{*L} E_{h,y} L_y^2}{2\hbar^2}} = \arccos\sqrt{\frac{m_h^{*L} E_{h,y}}{m_h^{*H} \Delta E_V}}$$
(2.12)

$$\sqrt{\frac{m_e^{*L}E_{e,z}L_z^2}{2\hbar^2}} = \arccos\sqrt{\frac{m_e^{*L}E_{e,z}}{m_e^{*H}\Delta E_C}}$$
(2.13)

$$\sqrt{\frac{m_h^{*L}E_{h,z}L_z^2}{2\hbar^2}} = \arccos\sqrt{\frac{m_h^{*L}E_{h,z}}{m_h^{*H}\Delta E_V}}.$$
(2.14)

2.3 Vielteilchenzustände

Bei der Einteilchennäherung wurden Wechselwirkungen zwischen den Ladungsträgern vernachlässigt. Ein Elektron, das aus dem Valenz– in das Leitungsband angeregt wird, unterliegt aber der Coulombwechselwirkung mit dem gleichzeitig erzeugten Loch. Dies führt zur Bildung eines Quasiteilchens, dem Exziton. Das Exziton ist ein gebundener Zustand aus Elektron und Loch, dessen grundlegenden Eigenschaften im Anschluß für Exzitonen im Volumenmaterial GaAs beschrieben werden.

2.3.1 Exzitonen im Volumenmaterial

Bei den Exzitonen in den hier behandelten III–V Halbleitern handelt es sich um sogenannte Wannier–Exzitonen. Der räumliche Abstand von Elektron zu Loch dieser Exzitonen ist groß gegen die Länge der Einheitszelle des Kristalls (vgl. Abb. 2.4). Im Gegensatz zu Frenkel–Exzitonen, bei denen der Abstand zwischen Elektron und Loch in etwa die Länge der Einheitszelle aufweist, können sich die Wannier–Exzitonen frei durch den Kristall bewegen. Das Exziton kann als ein aus einem Elektron und einem Loch bestehendes Teilchen in einem dielektrischen Medium, dem Halbleiter, angesehen werden.



ABBILDUNG 2.4: Freies Exziton im Kristallgitter.

In guter Näherung kann das System als wasserstoffähnliches angesehen werden, wobei für das Coulomb–Potential

$$V(|\vec{r_e} - \vec{r_h}|) = -\frac{e^2}{4\pi\varepsilon\varepsilon_0|\vec{r_e} - \vec{r_h}|}$$
(2.15)

geschrieben werden kann. Hierbei ist ε die Dielektrizitätskonstante des Kristalls. Die Lösung der Schrödingergleichung erfolgt durch Transformation der Ortskoordinaten von Elektron $(\vec{r_e})$ und Loch $(\vec{r_h})$ in Schwerpunktkoordinaten und Einführung der reduzierten Masse μ^* , mit $\frac{1}{\mu^*} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h}$. Für die Exzitonenenergieniveaus erhält man die Gleichung

$$E_{FX}(n) = -\frac{1}{2} \cdot \frac{\mu^* e^4}{(4\pi\varepsilon\varepsilon_0\hbar)^2} \cdot \frac{1}{n^2} = -Ry^* \cdot \frac{1}{n^2} \quad \text{mit } n = 1, 2, 3, \dots$$
 (2.16)

mit der Hauptquantenzahl⁷ n und der effektiven *Rydbergkonstanten* Ry^* , die der Bindungsenergie $E_{FX}(1)$ entspricht:

$$E_{FX}(1) = \frac{1}{2} \cdot \frac{\mu^* e^4}{(4\pi\varepsilon\varepsilon_0\hbar)^2} = 1Ry^*.$$
 (2.17)

Analog zum Wasserstoffatom läßt sich ein effektiver Bohrradius a_B^* definieren, der ein Maß für die räumliche Ausdehnung des Exzitons darstellt:

$$a_B^*(n) = \frac{4\pi\varepsilon\varepsilon_0\hbar^2}{\mu e^2} n .$$
(2.18)

2.3.2 Exzitonen in einem räumlichen Einschlußpotential

Wenn die räumliche Ausdehnung des Potentialtopfes in Wachstumsrichtung kleiner wird als der Bohrsche Radius des Exzitons, so werden die Eigenschaften des Exzitons durch die Einschränkung der Dimensionalität stark beeinflußt. Die Bindungsenergie wird größer, da Elektron und Loch gezwungen werden, einander näher zu kommen. Im idealen 2D–System ergibt sich für die Rydbergserie:

$$E_{FX}(n) = -\frac{Ry^*}{\left(n - \frac{1}{2}\right)^2} \,. \tag{2.19}$$

Dies bedeutet eine Erhöhung der Grundzustandsenergie $E_{FX}(1)$ um einen Faktor vier gegenüber dem dreidimensionalen Fall. Für den effektiven Bohrschen Radius a_B^* ergibt sich dementsprechend

$$a_B^*(n) = \frac{4\pi\varepsilon\varepsilon_0\hbar^2}{\mu e^2} \left(n - \frac{1}{2}\right)$$
(2.20)

ein kleinerer Wert als bei Volumenexzitonen.

⁷Wie im Wasserstoffatom können die Lösungen und Eigenwerte durch drei Quantenzahlen beschrieben werden: der Hauptquantenzahl n, der Drehimpulsquantenzahl l und der magnetischen Quantenzahl m. Für isotrope effektive Massen sind die Energieniveaus bezüglich des Drehimpulses entartet und bei Abwesenheit eines Magnetfeldes allein von der Hauptquantenzahl n abhängig.

Kapitel 3

Theoretische Grundlagen

3.1 Lichtbrechung an einem *i*–Schichten System

An dieser Stelle soll auf die Lichtbrechung an einem *i*–Schichten System eingegangen werden. Die Lösung für dieses Problem spielt eine wesentliche Rolle bei der mathematischen Beschreibung von Mikroresonatoren.

3.1.1 Fresnel–Formeln

Die Transmission und Reflexion von Licht an ebenen, parallelen Grenzflächen kann durch die Fresnel–Formeln beschrieben werden, siehe z. B. [Born und Wolf, 1993]. Diese folgen unmittelbar durch Stetigkeitsbetrachtungen an den Grenzflächen aus den aus der Elektrodynamik bekannten Maxwell–Gleichungen [Maxwell, 1891].

Für ein System mit einer Grenzfläche, wie in Abbildung 3.1 dargestellt, gilt für die Amplituden der Reflektivität r^p (p-polarisiertes Licht) und r^s (s-polarisiertes Licht), sowie für die Amplitude der Transmissivität t (s. z.B. [Hecht, 1994])¹:

$$r_{10}^{p} = \frac{\frac{k_{z,1}}{\varepsilon_{1}} - \frac{k_{z,0}}{\varepsilon_{0}}}{\frac{k_{z,1}}{\varepsilon_{1}} + \frac{k_{z,0}}{\varepsilon_{0}}}$$
(3.1)

$$r_{10}^s = \frac{k_{z,1} - k_{z,0}}{k_{z,1} + k_{z,0}} \tag{3.2}$$

$$t_{10} = 1 + r_{10} . ag{3.3}$$

¹Formeln, in denen die Polarisation nicht explizit angegeben ist, gelten entsprechend für sund p-Polarisation.



ABBILDUNG 3.1: Geometrie an der Grenzfläche.

Dabei ist

(3.4)

$$k_{z,i} = \sqrt{\varepsilon_i \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 - k_{x,1}^2}$$
(3.5)

und

$$k_{x,i} = \left(\frac{\omega}{c}\right)\sqrt{\varepsilon_i}\,\sin\theta_i\,. \tag{3.6}$$

In den Formeln (3.1) bis (3.6) ist ε_i die Dielektrizitätskonstante der *i*-ten Schicht und θ_i der Winkel, unter dem das Licht auf die *i*-te Schicht trifft. Die Reflektivität ergibt sich als Absolutquadrat der Amplituden r_{10}^p und r_{10}^s :

$$R_{10} = \frac{1}{2} \left(\left| r_{10}^p \right|^2 + \left| r_{10}^s \right|^2 \right)$$

Das Problem für *i* Grenzschichten läßt sich rekursiv lösen. Das bedeutet, man teilt das System in zwei auf. Und zwar in eines, welches die oberste Schicht enthält und in ein zweites, welches die gesamten darunter befindlichen Schichten enthält. Für dieses Quasi–Zweischichtensystem können die Reflektivitäts– bzw. die Transmissivitätsamplituden nach (3.1) bis (3.12) berechnet werden. Anschließend faßt man die oberen beiden Schichten zu einer Einheit zusammen, faßt alle darunter liegenden Schichten ebenfalls zusammen und berechnet für dieses System die Amplituden der Reflektivität und der Transmissivität mit Hilfe der Formeln:

$$r_{nn-1}^{p} = \frac{\frac{k_{z,n}}{\varepsilon_{n}} - \frac{k_{z,n-1}}{\varepsilon_{n-1}}}{\frac{k_{z,n-1}}{\varepsilon_{n}} + \frac{k_{z,n-1}}{\varepsilon_{n-1}}} \qquad r_{nn-1}^{s} = \frac{k_{z,n} - k_{z,n-1}}{k_{z,n} + k_{z,n-1}}$$
(3.8)

$$r_{n\dots0}^{p} = \frac{r_{nn-1}^{p} + r_{n-1\dots0}^{p} e^{2ik_{z,n-1}d_{n-1}}}{1 + r_{nn-1}^{p}r_{n-1\dots0}^{p} e^{2ik_{z,n-1}d_{n-1}}} \qquad r_{n\dots0}^{s} = \frac{r_{nn-1}^{s} + r_{n-1\dots0}^{s} e^{2ik_{z,n-1}d_{n-1}}}{1 + r_{nn-1}^{s}r_{n-1\dots0}^{s} e^{2ik_{z,n-1}d_{n-1}}}$$
(3.8)

$$t_{n\dots0}^{p} = \frac{t_{nn-1}^{p}t_{n-1\dots0}^{p} e^{ik_{z,n-1}d_{n-1}}}{1 + r_{nn-1}^{p}r_{n-1\dots0}^{p} e^{2ik_{z,n-1}d_{n-1}}} \qquad t_{n\dots0}^{s} = \frac{t_{nn-1}^{s}t_{n-1\dots0}^{s} e^{ik_{z,n-1}d_{n-1}}}{1 + r_{nn-1}^{s}r_{n-1\dots0}^{s} e^{2ik_{z,n-1}d_{n-1}}}$$
(3.9)
(3.9)

Dabei ist d_{n-1} die Dicke der Schicht n-1. Dieses Verfahren wiederholt man so lange, bis man die Reflektivitätsamplituden $r_{n...0}^p$ und $r_{n...0}^s$ bzw. die Transmissivitätsamplituden $t_{n...0}^p$ und $t_{n...0}^s$, die alle Grenzflächen berücksichtigen, berechnen kann. Die Reflektivität $R_{n...0}$ und die Transmissivität $T_{n...0}$ des *i*-Grenzflächenproblems ergeben sich dann zu:

$$R_{n\dots0} = \frac{1}{2} \left(\left| r_{n\dots0}^p \right|^2 + \left| r_{n\dots0}^s \right|^2 \right)$$
(3.11)

$$T_{n\dots 0} = \frac{k_{x,n}}{k_{z,1}} \cdot \frac{1}{2} \left(\left| r_{n\dots 0}^p \right|^2 + \left| r_{n\dots 0}^s \right|^2 \right) \ . \tag{3.12}$$

Mit Hilfe der Formeln (3.1) bis (3.12) lassen sich also Reflexions– sowie Transmissionsspektren für beliebige *i*–Schichten Systeme berechnen, deren Schichtdicken und dielektrischen Konstanten bekannt sind.

3.2 Dielektrische Spiegel

Die dielektrischen Spiegel² stellen einen Spezialfall eines *i*–Schichten Systems dar. Sie bestehen aus alternierenden Schichten zweier Materialien unterschiedlicher Brechungsindizes³ n_H und n_L mit $n_H > n_L$ und den Schichtdicken d_H und d_L , wobei

$$n_H d_H = n_L d_L = \frac{\lambda_{vac}}{4} \tag{3.13}$$

²Auch *DBRs* (Abk. für engl. Distributed Bragg Reflectors).

³Der Brechungsindex *n* eines Materials ergibt sich aus $n = \sqrt{\varepsilon}$.

gilt. Dabei ist λ_{vac} die Wellenlänge des einfallenden Lichtes im Vakuum. Ist Gleichung (3.13) erfüllt, so interferieren die an den Grenzflächen reflektierten Strahlen konstruktiv.



ABBILDUNG 3.2: Schematische Darstellung eines dielektrischen Spiegels mit zwei Schichten.

Die Abbildung 3.2 stellt diesen Sachverhalt schematisch dar. Die reflektierten Strahlen s_r und s_{trt} sind in Phase.

Physikalisch läßt sich dieser Sachverhalt mit Hilfe der Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12) erklären: Für die Reflektivitätsamplitude r_{LH} beim Übergang von Medium L mit kleinerem Brechungsindex n_L zu Medium H mit größerem Brechungsindex n_H ergibt sich mit $\theta_1 = 0$ nach (3.2)

$$r_{LH} = \frac{n_L - n_H}{n_L + n_H}$$
(3.14)

ein negativer Wert für den s-polarisierten Teil der Reflektivität. Für das elektrische Feld ergibt sich also ein Phasensprung von π . Im Falle des Übergangs von Medium H mit größerem Brechungsindex n_H zu Medium L mit kleinerem Brechungsindex n_L ergibt sich dementsprechend

3.2 Dielektrische Spiegel

$$r_{HL} = \frac{n_H - n_L}{n_H + n_L}$$
(3.15)

ein positiver Wert für die Amplitude r_{HL} . Hieraus folgt mit der Randbedingung (3.13) eine konstruktive Interferenz für die reflektierten Strahlen s_r und s_{trt}. Äquivalentes gilt für ein System mit *i* Schichten (vgl. Abb. 3.3). Die Reflektivität steigt für Licht der Wellenlänge λ_{vac} nahezu exponentiell mit der Anzahl an Schichten *i* an, wohingegen die Transmissivität dementsprechend stark abnimmt.



ABBILDUNG 3.3: Schematische Darstellung eines dielektrischen Spiegels mit i Schichten.

Die Reflektivität eines dielektrischen Spiegels mit einer großen Anzahl *i* an Schichten ist für einen endlichen, symmetrischen Bereich um die Wellenlänge λ_{vac} nahezu eins. Dieser Bereich wird *Stoppband* genannt und seine Breite $\Delta \lambda_{Stoppband}$ läßt sich mit Hilfe der Formel

$$\Delta \lambda_{Stoppband} = \frac{2 \lambda_{vac} \Delta n}{\pi \, n_{eff}} \tag{3.16}$$

abschätzen [Yariv, 1989]. In Formel (3.16) ist Δn die Differenz der Brechungsindizes n_H und n_L sowie n_{eff} der effektive Brechungsindex, der sich aus dem arithmetischen Mittel von n_H und n_L ergibt.

Die Reflektivität im Zentrum des Stoppbandes eines dielektrische Spiegels mit i Schichten kann durch

$$R = \left(\frac{n_H^{i+1} - n_L^{i-1} n_{sub}}{n_H^{i+1} + n_L^{i-1} n_{sub}}\right)^2$$
(3.17)

näherungsweise bestimmt werden [Svelto, 1989]. Die Formel (3.17) besitzt allerdings nur für eine ungerade Anzahl *i* Gültigkeit. Zudem wird vorausgesetzt, daß das Wachstum mit einer Schicht mit Brechungsindex n_H auf einem Substrat mit Brechungsindex n_{sub} begonnen wurde. Im Falle von senkrechter Inzidenz ist in der Literatur auch die Formel

$$R = \frac{1 - \frac{n_{sub}}{n_0} \left(\frac{n_L}{n_H}\right)^{2I}}{1 + \frac{n_{sub}}{n_0} \left(\frac{n_L}{n_H}\right)^{2I}}$$
(3.18)

zu finden [Born und Wolf, 1993]. In Formel (3.18) steht n_0 für den Brechungsindex des die dielektrischen Spiegel auf der Oberseite umgebenden Mediums und I für die Anzahl an Spiegelpaaren.

Die Abbildung 3.4(a) zeigt berechnete Reflexionskurven für dielektrische Spiegel verschiedener Spiegelzahl *i*. Die Berechnung erfolgte mit Hilfe der Fresnel– Formeln (3.1) bis (3.12). Sämtliche Parameter, die zur Berechnung des Reflexionsspektrums in Abbildung 3.4 verwendet wurden, befinden sich in Tabelle 3.1.

 TABELLE 3.1: Die zur Berechnung der Reflexionskurven in Abbildung 3.4 verwendeten

 Parameter.

n_{sub}	n_L	n_H	θ_1	λ_{vac} (nm)
3,30	2,87	3,30	0	980

Mit den in Tabelle 3.1 aufgeführten Werten ergibt sich nach (3.16) für die Breite des Stoppbandes ein Wert von $\Delta \lambda_{Stoppband} = 178, 8$ nm. Ein Vergleich mit Abbildung 3.4 ergibt eine gute Übereinstimmung mit der Breite des Stoppbandes für ein große Anzahl *i* an dielektrischen Spiegeln.



(a) Berechnete Reflektivitätsspektren für dielektrische Spiegel. Mit zunehmender Anzahl an dielektrischen Spiegeln ist das Stoppband stärker ausgeprägt.

(b) Berechnete Reflektivität in Abhängigkeit von der Anzahl an dielektrischen Spiegeln.



In Abbildung 3.4(b) ist ein Vergleich der Reflektivitätswerte dargestellt, welche zum einen mit Hilfe der Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12) und zum anderen mit den Gleichungen (3.17) und (3.18) berechnet wurden.

Die dielektrischen Spiegel, welche in diesem Kapitel behandelt wurden, bilden die Grundlage für die Mikroresonatoren, welche im folgenden Kapitel ausführlich besprochen werden.

3.3 Mikroresonatoren

Befindet sich eine Schicht der Dicke

$$d_M = m \, \frac{\lambda_{vac}}{2} \qquad \text{mit} \quad m \in \mathbb{N}$$
 (3.19)

zwischen zwei dielektrischen Spiegeln, so erhält man einen Mikroresonator (vgl. Abb. 3.5), in welchem sich stehende Wellen ausbilden können. Wie sich anhand von Gleichung (3.18) nachvollziehen läßt, ist dabei die Schichtung der den Resonator umgebenden Schichten von entscheidender Bedeutung. Unter der Annahme, daß das Wachstum mit einer Schicht des Brechungsindizes n_H begonnen und mit einer Schicht des Indizes n_L beendet wurde, so ergibt sich aus (3.18) für $n_L < n_H$ bei genügend großen *i* für die Reflektivität R = 1. Ist hingegen $n_H < n_L$, so folgt für große *i* aus (3.18) R = -1. Im ersten Fall erhält man also für das elektrische

Feld einen Phasensprung von π , im zweiten Fall hingegen keinen. Somit bilden sich also stehende Wellen, die entweder einen Bauch (für $n_L < n_H$) oder einen Knoten (für $n_H < n_L$) an der Grenzfläche Spiegel–Resonator besitzen.



ABBILDUNG 3.5: Schematische Darstellung eines Mikroresonators. Auf das Substrat wird eine bestimmte Anzahl dielektrischer Spiegel gewachsen. Im Anschluß daran wird eine Spacerschicht, in die optional ein Quantentopf oder Quantenpunkte eingebettet werden können, aufgedampft. Diese Spacerschicht besitzt, je nach Anwendung, die Dicke $d = \frac{\lambda_{vac}}{2}$ oder $d = \lambda_{vac}$. Eine weitere definierte Anzahl an dielektrischen Spiegeln sowie eine dünne *Cap Layer*⁵, die die Probe vor Oxidation schützt, vervollständigen den Mikroresonator.

Bei den im folgenden betrachteten Mikroresonatoren schließt sich an den Resonator jeweils eine Lage der niedriger brechenden Spiegelschicht an. Somit unterliegt das Licht, welches den Resonator verläßt, keinem Phasensprung. Darüberhinaus soll Licht, welches von den Strukturen in der Mitte des Resonators emittiert wird, mit Hilfe dieser Resonatoranordnung verstärkt werden. Daher muß die Bedingung (3.19) weiter eingeschränkt werden. Eine resonante Verstärkung des Signals ist nämlich nur dann möglich, wenn das dielektrische Feld in der Mitte des Resonators einen Bauch aufweist. Somit ergibt sich also

$$d_M = m\lambda_{vac}$$
 mit $m \in \mathbb{N}$ (3.20)

als Bedingung für die Dicke d_M des Mikroresonators.

Die Abbildung 3.6 zeigt ein mit Hilfe der Fresnel–Formeln (3.1)bis (3.12) berechnetes Transmissions- und Reflexionsspektrum eines Mikroresonators. Deutlich zu erkennen ist das Stoppband, in dessen Bereich die Reflektivität nahezu den Wert 1 bzw. die Transmissivität den Wert 0 annimmt. Etwa in der Mitte des Stoppbandes, bei der Wellenlänge λ_{vac} , bricht die Reflektivität abrupt ein und die Transmissivität steigt stark an.

3.3 Mikroresonatoren

TABELLE 3.2: Die zur Berechnung der Transmissions- und Reflexionskurve in Abbildung 3.6 verwendeten Parameter.

n_M	n_L	n_H	θ_1	λ_{vac} (nm)
3,30	2,87	3,30	0	1060



ABBILDUNG 3.6: Berechnetes Transmissions– und Reflexionsspektrum eines Mikroresonators. Die zur Berechnung verwendeten Parameter sind in Tabelle 3.2 aufgeführt.

Dieser Effekt ist darauf zurückzuführen, daß sich in der Resonatorschicht eine stehende Welle ausbildet, die an jeder Grenzfläche der dielektrischen Spiegel konstruktiv interferiert. Dieser Einbruch in der Reflektivität und der gleichzeitige Anstieg der Transmissivität wird auch *Resonatormode* genannt.

Für den Fall einer symmetrischen Struktur, wenn sich also die gleiche Anzahl an dielektrischen Spiegeln auf beiden Seiten des Resonators befinden, gilt für die Reflektivität bei senkrechter Inzidenz [Savona et al., 1995]:

$$R = 1 - 4 \frac{n_{ext}}{n_M} \left(\frac{n_L}{n_H}\right)^{2I} . \tag{3.21}$$

Dabei ist n_{ext} der Brechungsindex des die gesamte Struktur umgebenden Mediums, n_M der Brechungsindex des Mikroresonators und I die Anzahl der Spiegelpaare.

Die Annahme einer symmetrischen Struktur ist in der Praxis allerdings nicht haltbar, da sich auf der einen Seite der Struktur meist das Substrat und auf der anderen Seite Luft befindet und diese beiden Medien im allgemeinen einen unterschiedlichen Brechungsindex besitzen. Diese Asymmetrie kann kompensiert werden, indem man die Anzahl der Spiegelpaare auf der Substratseite vergrößert, so daß die Reflektivität vom Zentrum der Cavity aus nach außen gesehen zu beiden Seiten gleich groß ist.

Die Güte der Resonatormode wird durch die *Finesse* F beschrieben. Diese ist definiert als der Quotient aus der Wellenlänge λ_{min} , bei der die Reflektivität minimal ist, und der Halbwertsbreite $\Delta \lambda$ der Resonatormode:

$$F = \frac{\lambda_{min}}{\Delta\lambda} \,. \tag{3.22}$$

Aus dem Transmissions- und Reflexionspektrum in Abbildung 3.6 wird deutlich, daß nicht nur Licht, welches von der Mitte des Resonators ausgestrahlt wird, resonant verstärkt wird, sondern auch Licht, welches mit der Resonatorwellenlänge λ_{vac} in die Probe eingestrahlt wird. In der Mitte des Resonators ergibt sich eine deutliche Überhöhung der Amplitude des elektrischen Feldes [Björk et al., 1995]. Von besonderer Bedeutung im Laufe der Arbeit wird noch die Winkelabhängigkeit der Resonatormode sein. Licht, welches sich nicht senkrecht zur Probenoberfläche durch den Resonator bewegt, muß einen längeren Weg durch die jeweilige Resonatorschicht zurücklegen. Somit wird die Bedingung (3.13) jetzt für Licht einer größeren Wellenlänge erfüllt, die Resonatormode wird zu kleineren Wellenlängen bzw. größeren Energien hin verschoben. Die Beschreibung dieses Sachverhaltes kann ebenfalls mit Hilfe der Fresnel-Formeln (3.1) bis (3.12) erfolgen und ist in Abbildung 3.7 dargestellt.


ABBILDUNG 3.7: Berechnete Dispersionsrelation eines Mikroresonators für spolarisiertes (schwarz) und p-polarisiertes Licht (rot). Dargestellt ist die Position der Resonatormode in Abhängigkeit vom Winkel gegen die Senkrechte zur Probenoberfläche. Die zur Berechnung verwendeten Parameter sind in Tabelle 3.2 aufgeführt.

Kapitel 4

Die Molekularstrahlepitaxie

Die Entwicklung der MBE zu einem großtechnischen Verfahren zur Herstellung von dünnen Schichten wurde hauptsächlich durch zwei voneinander unabhängige Ideen vorangetrieben [Ploog, 1985]. Zum einen handelt es sich dabei um die "Drei–Temperaturen–Methode" von Günther [Günther, 1958] und zum anderen um die Untersuchungen zur Wechselwirkung von Ga– und As–Strahlen mit GaAs–Substraten [Arthur, 1968]. In der Folgezeit waren es hauptsächlich Günther, Davey und Pankey [Davey und Pankey, 1968], die die entscheidenden Impulse zur Weiterentwicklung dieses Verfahrens lieferten. Etwa ab Ende der 70er Jahre kamen dann die ersten kommerziellen MBE–Anlagen auf den Markt.

4.1 Grundlagen

Unter Epitaxie versteht man das orientierte Aufwachsen von Gastsubstanzen auf die kristalline Oberfläche eines Wirtskristalls (Substrat). Epitaxie–Verfahren werden zur kontrollierten Herstellung dünner, kristalliner Halbleiter–Schichten hoher Perfektion verwendet. Die Anordnung der Gitterbausteine in diesen dünnen Schichten wird entscheidend durch die Struktur des Substrats beeinflußt.

Es gibt, je nach wissenschaftlich-technischen Anforderungen, verschiedene Epitaxie-Verfahren. Als Beispiele seien stellvertretend die Metall-Organochemische-Gasphasen-Deposition ($MOCVD^1$), die Flüssigphasen-Epitaxie (LPE^2) und die MBE genannt.

Das MBE–Verfahren ermöglicht ein atomlagengenaues Wachstum kristalliner Halbleiter– und Metallschichten. Wie in Abbildung 4.1 dargestellt, werden die durch thermisches Verdampfen in geheizten Effusionszellen entstehenden Molekularstrahlen auf ein ebenfalls geheiztes Substrat, den sogenannten *Wa*-

¹Abk. für engl. Metal–Organic Chemical Vapor Deposition.

²Abk. für engl. Liquid Phase Epitaxie.

fer, gelenkt. Dort reagieren die auftreffenden Moleküle bzw. Atome mit der Substratoberfläche. Bei einer ausreichend hohen Substrattemperatur diffundieren sie ausreichend schnell auf ihre Gitterplätze, so daß ein epitaktisches Wachstum möglich ist.



Stickstoffkühlschild

ABBILDUNG 4.1: Schematischer Aufbau einer MBE–Anlage.

Vor den Austrittsöffnungen der einzelnen Effusionszellen sind *Shutter* angebracht, mit denen die Molekularstrahlen abrupt ein- bzw. ausgeblendet werden können. Die Flußraten der einzelnen Materialien werden über die Effusionszellentemperatur geregelt. Die niedrigen Wachstumsraten von typischerweise einer Monolage³ pro Sekunde, d.h. der vollständigen Anlagerung beispielsweise einer Ga- und einer As-Lage, erlauben die Herstellung von extrem dünnen Halbleiter-Heterostrukturen.

Das MBE–Verfahren zeichnet sich gegenüber anderen Epitaxie–Verfahren dadurch aus, daß bei der Reaktion an der Grenzfläche Gas–Festkörper keine Fremdgase beteiligt sind. Diese Tatsache erfordert Ultrahochvakuum–Bedingungen mit einem Restgaspartialdruck von 10^{-10} mbar.

³Auch Netzebene.

4.2 Der Wachstumsprozeß

Um ein gitterangepaßtes und damit spannungsfreies Wachstum zu erzielen, müssen verschiedene Voraussetzungen erfüllt sein.

Zunächst muß das Substrat eine äußerst glatte Oberfläche besitzen. Des weiteren sollten die in den Verdampferzellen gelagerten Materialien möglichst rein sein. Zudem ist ein möglichst geringer Restgaspartialdruck erforderlich. Die Substrattemperatur muß so hoch gewählt werden, daß die auftreffenden Atome genügend viele Gitterplatzwechsel auf der Substratoberfläche vollziehen. Wird die Temperatur allerdings zu hoch gewählt, verdampfen die Teilchen instantan von der Oberfläche. Ist das Substrat hingegen zu kalt, werden die Gitterplätze nicht ausreichend schnell besetzt und es werden Punktdefekte in den Kristall eingebaut. Unter Punktdefekten versteht man Baufehler im Kristall, wie Leerstellen oder Atome auf Zwischengitterplätzen.

Während der Einbau von Fremdatomen durch eine Verringerung des Restgaspartialdruckes weitgehend minimiert werden kann, können Stöchiometriefehler, wie Ga auf As-Plätzen und umgekehrt, die Perfektion des Kristalls herabsetzen.

Da die Effusionszellen nicht senkrecht zur Substratoberfläche ausgerichtet sind, wird die Probe während des Wachstums rotiert, um ein möglichst homogenes Wachstum zu erzielen.

4.3 Kalibrierung des Zellenflusses mit RHEED

Die Kalibrierung des Zellenflusses geschieht standardmäßig mit Hilfe der RHEED–Methode. Mit Hilfe dieser lassen sich nicht nur die Flüsse der einzelnen Zellen bestimmen (vgl. Kap. 4.3.5), sondern zusätzlich noch Informationen über die Oberflächenbeschaffenheit des Substrats gewinnen (vgl. Kap. 4.5). Aufgrund der Tatsache, daß die Flußkalibrierung für das gewünschte Probendesign (vgl. Tab. 6.1 auf Seite 58) nicht ausreichend genau durchgeführt werden konnte, wurde vom Autor zusätzlich ein Pyrometer in die MBE–Anlage integriert (vgl. Kap. 7). Während die RHEED–Methode vor allem für dünne Schichten von einigen Monolagen exakte Ergebnisse liefert, ist mit Hilfe der pyrometrischen Interferometrie eine wesentlich präzisere Kontrolle des Zellenflusses für "dicke" Schichten (größer 10 nm) möglich.

4.3.1 RHEED–Oszillationen

Wie in Abbildung 4.2 zu sehen, treffen die hochenergetischen Elektronen unter einem kleinen Winkel (ca. 1 bis 4°) auf die Substratoberfläche. Dabei tritt ein Teil der Elektronen in Wechselwirkung mit den äußersten Netzebenen der Probe,

wohingegen der andere Teil direkt reflektiert wird. Die Intensität dieses direkt reflektierten Reflexes⁴ ist von der Oberflächenrekonstruktion⁵, der Atomdichte und der Stufendichte auf der Oberfläche abhängig.



ABBILDUNG 4.2: Modifizierter Aufbau einer MBE-Anlage.

Neave und Joyce beobachteten als erste eine Oszillation des direkt reflektierten Elektronenstrahls während des Wachstums und korrelierten die Frequenz dieser Oszillationen mit der Wachstumsgeschwindigkeit [Neave et al., 1983]. Diesen Zusammenhang schlossen sie aus der Tatsache, daß die Intensität des Spiegelreflexes die Oberflächenrauhigkeit widerspiegelt (vgl. Abb. 4.3).

⁴Auch Spiegelreflex.

⁵Die Oberflächenrekonstruktion stellt eine Art Übergitter auf der Oberfläche dar. Dabei gehen nicht abgesättigte Hybridorbitale Bindungen (sog. *Bridge Bonds*) ein. Hierzu siehe auch [Heyn, 1994].



ABBILDUNG 4.3: Modell zur Entstehung von RHEED–Oszillationen. Nach [Joyce et al., 1986].

Zu Beginn des Wachstums ist die Oberfläche glatt. Durch die Anlagerung von Teilchen auf der Substratoberfläche bilden sich sogenannte Wachstumsinseln. Diese rauhen die Oberfläche auf und die Intensität des Spiegelreflexes nimmt ab. Weitere auftreffende Teilchen lagern sich an den Inseln an, so daß diese größer werden. Bei näherungsweise halber Bedeckung ist die Reflektivität minimal und steigt bei Fortführung des Wachstums wieder an, da es jetzt zum Zusammenschluß von Wachstumsinseln⁶ kommt. Hat sich eine komplette Monolage angelagert, so erreicht die Intensität des reflektierten Elektonenstrahls wieder den Ausgangswert vor Beginn des Wachstums. Somit kann eine Periode der Oszillationen der Deposition von exakt einer Monolage zugeordnet werden.

4.3.2 Grenzflächenrauhigkeiten

Im Laufe des Wachstums läßt sich jedoch eine Dämpfung der Oszillationenamplitude beobachten, die sich durch eine zunehmende Aufrauhung der Substratoberfläche während des Wachstums erklären läßt [Neave et al., 1983], [van Hove et al., 1983]. Diese Aufrauhung rührt daher, daß auf der Oberfläche schon das Wachstum weiterer Lagen beginnt, bevor die darunter liegende Lage komplettiert ist. Es entstehen also zusätzliche Wachstumsinseln, die eine Zunahme der Stufendichte und damit eine Abnahme der Reflektivität bewirken. In diesem Fall spricht man von einem "aus der Phase laufen" der Inselbildung. Oszillationen lassen sich nur an Inseln beobachten, die "in Phase" wachsen [Heyn und Harsdorff, 1997], [Heyn et al., 1997]. Dennoch können unter der Bedingung, daß die Substratoberfläche vor Wachstumsbeginn glatt ist, im Laufe einer Wachstumsperiode ausreichend viele Oszillationen aufgezeichnet werden, um den Zellenfluß zu bestimmen.

Zudem können die entstandenen Wachstumsinseln durch Wachstumspausen wieder abgebaut werden [Sudijono et al., 1993]. Dieses geschieht prinzipiell durch zwei Prozesse: Zum einen verringert sich durch Randdiffusion die Randrauhigkeit von Wachstumsinseln und Stufen. Zum anderen können sich Teilchen von den Rändern kleinerer Inseln ablösen und somit zur Auflösung von Wachstumsinseln führen [Neave et al., 1983], [Lewis et al., 1985], [Däweritz et al., 1991]. Während dieses Ausheilungsprozesses der Oberfläche steigt die Intensität des Spiegelreflexes in etwa bis auf den Ausgangswert vor der Materialdeposition an [Neave et al., 1983]. Das bedeutet, man kann mehrere RHEED–Messungen an ein und derselben Probe unter nahezu identischen Voraussetzungen durchführen, wodurch sich statistische Fehler praktisch vollständig eliminieren lassen.

4.3.3 Shuttertransiente

Dennoch ist in dieser Art den Zellenfluß zu messen ein systematischer Fehler enthalten. Die Annahme, daß bei geschlossenem Zellen–Shutter kein und nach Öffnen des Shutters sofort ein konstanter und über die Zellentemperatur eindeutig zu definierender Materialtransport zur Probe stattfindet, erweist sich als haltlos.

⁶auch Koaleszenz

Durch das Öffnen des Shutters erhöht sich die thermische Abstrahlung der Zelle in Richtung des Shutters, da die Wärmestrahlung jetzt nicht mehr vom Shutter zurück in den Tiegel reflektiert wird. Die Temperatur in der Effusionszelle wird also verringert, was wiederum zu einer Abnahme der Zellenemission, also zu einer kleineren Wachstumsgeschwindigkeit führt. Dieser Effekt wird als Shuttertransiente bezeichnet [Miller, 1992].

Die Größe dieses Effektes ist zum einen von der Zellentemperatur und zum anderen von der Zeit abhängig, die seit dem letzten Schließen des Shutters vergangen ist. Wird der Shutter nur für wenige Sekunden geschlossen, so wird sich ein bedeutend kleinerer "Wärmestau" ergeben als für den Fall, wenn der Shutter für einige Minuten geschlossen bleibt.

Wie die Abbildung 4.5 auf Seite 35 illustriert, sind die RHEED–Oszillationen des GaAs schon ausgedämpft, bis der Fluß aus der Effusionszelle einen konstanten Wert angenommen hat. Ebenfalls zu erkennen ist, daß die RHEED–Oszillationen von GaAs wesentlich kurzlebiger sind als die des AlAs.

Die einzige Möglichkeit, diesen systematischen Fehler zu beheben besteht darin, der Substratoberfläche die Möglichkeit zur Ausheilung zu geben, ohne dabei den Ga- bzw. den Al-Shutter zu schließen. Dieses läßt sich durch Schließen des Mainshutters (vgl. Abb. 4.2 auf Seite 30) bewerkstelligen. Die aus den Zellen austretenden Teilchen prallen gegen die Wand des Mainshutters und werden vom Stickstoffkühlschild eingefangen. Die Substratoberfläche ihrerseits hat ausreichend Zeit, die Oberflächenrauhigkeiten abzubauen.

4.3.4 As–Desorption

Diese Methode birgt allerdings für den Fall des GaAs die Gefahr, daß As von der Oberfläche und sogar aus unteren Kristallschichten desorbiert. Dieser Prozeß ist stark temperaturabhängig und bei den üblichen Wachstumstemperaturen schon deutlich zu spüren [Heyn, 1994]. Daß As sogar aus unteren Schichten desorbiert, ist auf folgenden Prozeß zurückzuführen: Das nach der vollständigen Desorption des As von der Oberfläche freiliegende Ga diffundiert und bildet dreidimensionale Cluster [Foxon et al., 1973]. Dadurch werden As-terminierte Bereiche freigelegt, aus denen weitere As-Desorption möglich ist. An der Oberfläche bleiben die Ga-Cluster zurück und ein weiteres epitaktisches Wachstum von GaAs auf diesem Substrat ist nicht möglich.

4.3.5 Flußkalibrierung mit RHEED

Wie bereits in Kapitel 4.3.1 erwähnt, wird zur Messung der aktuellen Flußrate die Intensität des direkt reflektierten Elektronenstrahls beobachtet. Dieser trifft, nachdem er an der Substratoberfläche reflektiert wurde, auf den Leuchtschirm

(vgl. Abb. 4.2 auf Seite 30). Die Intensität dieses Reflexes auf dem Leuchtschirm kann mit Hilfe einer empfindlichen *CCD*⁷–Kamera beobachtet werden. Das Kamerasignal wird mittels einer *Frame–Grabber* Karte digitalisiert und an einen Computer weitergeleitet. Zusätzlich kann das Kamerabild in Echtzeit über einen Zusatzmonitor beobachtet werden [Heyn, 1994].

Die Abbildung 4.4 zeigt die gemessene Spiegelreflex–Intensität als Funktion der Zeit. Deutlich zu erkennen sind die auf Seite 29 beschriebenen RHEED– Oszillationen.



ABBILDUNG 4.4: Beispiel für zeitlich versetzt gemessene RHEED–Oszillationen von GaAs (rot) und AlAs (schwarz).

Aus der Frequenz der RHEED–Oszillationen kann nun die aktuelle Wachstumsgeschwindigkeit bestimmt werden. Bildet man jeweils den Mittelwert aus ersten 45 Frequenzen, so ergibt sich für GaAs eine Flußgeschwindigkeit von $F_{\text{GaAs}} = 1,07 \frac{\text{ML}}{\text{sec}}$ und für AlAs $F_{AlAs} = 0,57 \frac{\text{ML}}{\text{sec}}$.

⁷Abk. für engl. Charge Coupled Device.



ABBILDUNG 4.5: Aus den Peakabständen in Abbildung 4.4 ermittelte Flußgeschwindigkeiten für GaAs (rot) und AlAs (schwarz). Die Meßwerte wurden jeweils mit einer exponentiell abfallenden Funktion erster Ordnung genähert, die für die beiden Materialien als durchgezogene Linie eingetragen ist.

In Abbildung 4.5 sind die Flußgeschwindigkeiten, die sich aus den einzelnen RHEED–Oszillationen von Abbildung 4.4 ergeben, aufgetragen. Für das AlAs ist die Shuttertransiente deutlich zu erkennen. Ebenfalls auffällig ist das starke Rauschen, das sich hier speziell für die Bestimmung der GaAs–Flußrate ergibt. Dennoch ist auch hier eine deutliche Abnahme der Flußgeschwindigkeit für größere Zeiten zu erkennen. Unter der Annahme, daß sich der Fluß nach Öffnen des Zellenshutters exponentiell⁸ einem Sättigungswert nähert, erhält man die beiden in Abbildung 4.5 dargestellten Näherungskurven. Vergleicht man die Flußgeschwindigkeiten, die man aus der Mittelwertbildung erhalten hat, mit den Sättigungswerten, welche sich aus der beschriebenen Näherungsfunktion ergeben, so fällt auf, daß sich im Falle des GaAs ein besonders eklatanter Unterschied dieser beiden Werte ergibt. Der Wert, der sich aus der Mittelwertbildung ergibt,

⁸Hierbei wird von einer exponentiell abfallenden Funktion erster Ordnung der Form $y = y_0 + A \cdot \exp\left(-\frac{t}{c}\right)$ ausgegangen. Der Wert y_0 ist dabei der Sättigungswert für große Zeiten t.

liegt um 27,3% über dem Sättigungswert. Für das AlAs liegen die beiden Werte relativ nahe beieinander, die Differenz beträgt lediglich 3,6%. Daß die Shuttertransiente für das GaAs sehr viel höher ausfällt, kann durch den unterschiedlichen Aufbau der Ga– und der Al–Effusionszellen begründet werden. Bei der Ga–Zelle handelt es sich um eine *Double–Filament–Effusionszelle*, während die Al-Zelle eine *Single–Filament–Effusionszelle* ist. Im ersten Fall gibt es zwei Heizelemente sowie zwei Regler, welche sich jeweils am Boden bzw. am oberen Ende des Tiegels befinden. Die gewünschte Temperatur des Tiegels wird also über zwei voneinander unabhängige Wärmequellen reguliert. Es zeigt sich, daß hierdurch die Einstellung eines Gleichgewichts eine längere Zeit in Anspruch nimmt als im Fall der Al–Zelle, die nur ein Heizelement sowie einen Regler besitzt, der die Temperatur der Effusionszelle einstellt.

4.4 Wachstumsmodelle

Beim MBE–Wachstum von Kristallen wird zwischen drei verschiedenen Modi unterschieden (vgl. Abb. 4.6).



ABBILDUNG 4.6: Schematische Darstellung der drei Wachstumsmodi.

Welcher Wachstumsmechanismus für bestimmte Materialien auftritt, hängt entscheidend davon ab, wie stark die Bindung zwischen den auftreffenden Teilchen untereinander und zwischen den Teilchen und der Unterlage ist.

4.4 Wachstumsmodelle

Frank-van der Merwe-Wachstum

Auch Lagenwachstum [Frank und van der Merwe, 1949]. Die Atome der obersten Schicht sind untereinander schwächer gebunden als an die darunter liegende Schicht. Beispiel: AlAs auf GaAs.

Volmer-Weber-Wachstum

Auch Inselwachstum [Volmer und Weber, 1926]. Die Bindung der Atome in der obersten Schicht ist stärker als die Bindung an die Unterlage. Beispiel: Die meisten Metalle auf Halbleiter.

Stranski-Krastanov-Wachstum

Auch Lagen-plus-Inselwachstum [Stranski und von Krastanov, 1939]. Bildet eine Art Mischform und wird in Kapitel 4.4.2 besprochen. Beispiel: InAs auf GaAs.

Da in der vorliegenden Arbeit nur das Frank-van der Merwe-Wachstum und das Stranski-Krastanov-Wachstum von Bedeutung sind, wird im folgenden nur auf diese beiden Wachstumsmodi eingegangen. Dabei liegt der Schwerpunkt auf dem Stranski-Krastanov-Wachstum.

4.4.1 Frank–van der Merwe–Wachstum

Beim MBE–Wachstum von AlAs auf GaAs tritt unter geeigneten Bedingungen (vgl. Kap. 4.2) das Lagenwachstum auf. Eine schematische Darstellung des Prozesses zeigt Abbildung 4.7.

Die ersten auftreffenden Atome bilden Wachstumsinseln der Höhe einer Monolage. Sobald die Schicht in etwa zur Hälfte bedeckt ist, bilden sich kaum noch neue Wachstumsinseln. Vielmehr lagern sich die Atome, die jetzt die Oberfläche erreichen, an die Ränder der bereits bestehenden Inseln an und vergrößern diese. Im weiteren Verlauf des Wachstums werden die Inseln zusammenwachsen (koaleszieren) und nach Deposition einer Monolage ist die Oberfläche wieder glatt.

4.4.2 Stranski–Krastanov–Wachstum

Stranski und von Krastanov waren im Jahr 1939 die ersten, die das Lagenplus-Inselwachstum beobachteten [Stranski und von Krastanov, 1939]. Eaglesham und Cerullo konnten 1990 das Stranski-Krastanov-Wachstum an einer MBE-Anlage realisieren [Eaglesham und Cerullo, 1990]. Sie wuchsen Germanium auf eine Silizium (100) Oberfläche und beobachteten ein versetzungsfreies Stranski-Krastanov-Wachstum. Im selben Jahr untersuchten Guha et al. den Einfluß des In-Anteils x in $In_xGa_{1-x}As$ auf den Wachstumsmodus



ABBILDUNG 4.7: Schematische Darstellung des Lagenwachstums.

[Guha et al., 1990]. Ab einer bestimmten kritischen Schichtdicke Θ_c ändert sich der Modus abhängig von der In–Konzentration x von einem zweidimensionalen (2D) Wachstum in einen dreidimensionalen (3D). Zu dieser Zeit war man bemüht, die Bildung der dreidimensionalen Inseln zu unterdrücken [Copel et al., 1989], da man annahm, daß der Umschlag des Wachstumsmodus durch Versetzungen zu erklären sei [Matthews und Blakeslee, 1974], [Matthews und Blakeslee, 1975], [Dodson und Tsao, 1987] und [Price, 1991].

Leonard et al. untersuchten 1993 schließlich systematisch die beim MBE– Wachstum von InGaAs auf GaAs entstehenden Inseln [Leonard et al., 1993]. Sie fanden heraus, daß diese Inseln eine sehr homogene Größe besitzen und ein stärkeres Photolumineszenzsignal zeigten als darunter liegende Quantentöpfe (vgl. Kap. 2.2.2). In dieser und weiteren Untersuchungen erkannten Leonard et al. die Möglichkeit, ein dreidimensionales Einschlußpotential mit Hilfe eines Wachstumsprozesses zu realisieren [Leonard et al., 1994b].

In der Folgezeit, die bis heute andauert, standen vor allem zwei Probleme im Mittelpunkt des Interesses: Zum einen ist der Prozeß des Stranski–Krastanov– Wachstums noch nicht vollständig verstanden, und zum anderen wird versucht, die Parameter, welche das MBE–Wachstum von InAs–Quantenpunkten auf GaAs bestimmen, zu optimieren.

3D-KEIMBILDUNG BEIM MBE-WACHSTUM VON INAS-QUANTENPUNKTEN AUF GAAS (100)

Wie bereits in Tabelle 2.1 auf Seite 8 dargestellt, besitzt der Halbleiter InAs eine um 7,2% größere Gitterkonstante als das GaAs. Dieser Unterschied ist die treibende Kraft für die Entstehung der dreidimensionalen Inseln von InAs auf GaAs.

Beim Aufdampfen von InAs auf GaAs bildet sich zunächst die für das Stranski-Krastanov-Wachstum typische *Wetting Layer*⁹. Diese erste Monolage InAs "benetzt" das darunterliegende GaAs-Substrat und wächst verspannt auf. Ab einer bestimmten kritischen InAs-Bedeckung Θ_c vollzieht sich aufgrund der in das System eingebrachten Verspannung der Wechsel vom zweidimensionalen Lagenwachstum zum dreidimensionalen Inselwachstum. Da diese Veränderung des Wachstumsmodus ohne äußere Einwirkungen geschieht, wird auch von einem *selbstorganisierten* Wachstum der InAs-Quantenpunkte gesprochen.

Neue Erklärungsversuche dieses Effekts stützen sich hauptsächlich auf thermodynamische Modelle [Priester und Lannoo, 1995] und [Moll et al., 1998] oder auf Lösungen von Ratengleichungen, welche die Kinetik der Atome auf der Kristalloberfläche beschreiben [Dobbs et al., 1997], [Joyce et al., 1997], [Koduvulev und Zangwill, 1999] [Heyn und Dumat, 2001] und [Heyn, 2001].

Die Tatsache, daß bisher noch kein Modell gefunden wurde, welches alle Phänomene des Stranski–Krastanov–Wachstums erklären kann, ist durch die Vielzahl an Parametern erklärbar, die in dieses Problem einfließen. Das gesamte System wird, wie jedes physikalische, versuchen, den energetisch günstigsten Zustand anzunehmen. Das bedeutet, daß das System zu jeder Zeit bestrebt sein wird, die Summe aus den Energietermen, welche für dieses Problem relevant sind, zu minimieren. Einen wesentlichen Beitrag zur Gesamtenergie liefert dabei die Verspannungsenergie, die aufgebracht werden muß, damit der Unterschied in der Größe der Gitterkonstanten überwunden werden kann. Hinzu kommt die Oberflächenenergie, welche dafür sorgt, daß die Oberfläche des aufgedampften Materials möglichst gering ist. Ein weiterer Term ist die Bindungsenergie, die angibt, wie stark die auftreffenden Atome an der jeweiligen Stelle an den Kristall gebunden werden.

Des weiteren sind auch kinetische Effekte von Bedeutung. Hier spielt die Diffusionsenergie eine entscheidende Rolle. Diese ist stark von der Substrattemperatur abhängig und kann als Maß dafür aufgefaßt werden, wie viele Platzwechsel ein Atom vollzieht, bevor es fest in den Kristall eingebaut wird. Schließlich kommt noch die Interdiffusionsenergie hinzu, die ebenfalls stark von der Substrattemperatur abhängig ist und Platzwechsel zwischen Atomen von der Oberfläche und Atomen aus der darunter liegenden Schicht ermöglicht.

⁹Engl. für Benetzungsschicht.

Beim Wachstum von InAs auf GaAs entstehen quasi sofort nach Wachstumsbeginn sogenannte *Nukleationszentren*, die als Keime für das zunächst zweidimensionale Inselwachstum dienen. Mit zunehmender Bedeckung werden diese Inseln größer und das Wachstum schlägt ab einer durch die Verspannung vorgegebenen Größe von einem zweidimensionalen zu einem dreidimensionalen um. Für das genannte Beispiel besteht Einigkeit darüber, daß es ab einer kritischen Bedeckung von etwa $\Theta_c = 1,7$ ML für hinzukommende Atome energetisch günstiger ist, sich auf den entstehenden Wachstumsinseln und nicht an deren Rändern anzulagern [Bhatti et al., 1999]. Dabei lösen sich zum Teil auch Atome aus der Wetting Layer heraus und lagern sich auf den Inseln an. Dieser Effekt wurde von Wu et al. und von Fafard et al. beobachtet und mit Hilfe von Raster–Tunnel– Mikroskopie(*STM*¹⁰)–Untersuchungen [Wu et al., 1997] bzw. Photolumineszenzuntersuchungen [Fafard et al., 1999] verifiziert.

Da nicht an jeder Stelle des Substrats exakt dieselben Bedingungen vorzufinden sein werden, können die Quantenpunkte zum Teil recht unterschiedliche Größen besitzen. Dennoch ist die Größenfluktuation dieser Strukturen aufgrund der oben erwähnten Energieminimierung recht gering, da das Erreichen dieses Zustandes durch die Kinetik determiniert wird. Zudem kann die Größenverteilung durch die Wahl von geeigneten Wachstumsparametern optimiert werden (vgl. Seite 41).

Möchte man die InAs–Quantenpunkte wieder mit GaAs überwachsen, so sind mehrere Effekte zu berücksichtigen. Zum einen ist das In bestrebt, sich an der Oberfläche anzusammeln¹¹ und kann bei genügend hohen Temperaturen dorthin segregieren. Zum anderen findet ein *Intermixing*¹² von In und Ga statt [García et al., 1997]. Hierbei muß zwischen zwei Prozessen unterschieden werden: Zum einen wird Ga aus dem Substrat beim Wachstum der Quantenpunkte in diese durch Diffusionsprozesse eingebaut, zum anderen diffundiert auch das In aus den Quantenpunkten in das GaAs, mit dem die InAs–Inseln überwachsen werden.

Joyce et al. konnten mit Hilfe von STM–Untersuchungen zeigen, daß bei Substrattemperaturen größer 420°C Ga in die InAs–Quantenpunkte eingebaut wird [Joyce et al., 1998]. Dieser Effekt ist, da es sich um einen Interdiffusionsprozeß handelt, stark temperaturabhängig. Bei üblichen Wachstumstemperaturen von 500–530°C entstehen also keine reinen InAs–Quantenpunkte, vielmehr können nach Joyce et al. bis zu 30% Ga in die Inseln diffundieren.

Um das In/Ga–Intermixing beim Überwachsen der Quantenpunkte mit GaAs zu unterbinden, deponierten Arzberger et al. eine dünne Schicht AlAs auf den InAs– Quantenpunkten [Arzberger et al., 1999]. Aus Photolumineszenzuntersuchungen

¹⁰Abk. für engl. Scanning Tunnel Microscopy.

¹¹Auch Segregation.

¹²Engl. für Vermischung.

schlossen sie, daß die Vermischung von In und Ga stark reduziert werden konnte. Darüberhinaus zeigten die Proben eine bessere Größenverteilung der InAs-Quantenpunkte als solche ohne AlAs-Bedeckungsschicht.

PARAMETER BEIM MBE-WACHSTUM VON INAS-QUANTENPUNKTEN AUF GAAS (100)

Die Art und Weise wie die InAs–Quantenpunkte mit Hilfe von MBE hergestellt werden, hat entscheidenden Einfluß auf deren optische Eigenschaften [Chu et al., 1999]. Folgende Parameter beeinflussen die Form und die Dichte und damit auch die optischen Eigenschaften von InAs–Quantenpunkten:

- 1) Menge an InAs, die auf dem Substrat deponiert wird,
- 2) Substrattemperatur, bei der InAs aufgedampft wird,
- 3) Menge an As, die dem System zur Verfügung steht,
- 4) Anzahl der Wachstumspausen, die während der Deposition von InAs gemacht werden,
- 5) Flußrate des In.

Chu et al. untersuchten systematisch die Abhängigkeit des Photolumineszenzsignals von den ersten drei genannten Parametern und kamen dabei zu folgenden Ergebnissen:

Abhängigkeit von der InAs-Bedeckung:

Bei zunehmender Bedeckung konnte anfangs eine Zunahme der Größe kohärenter Inseln beobachtet werden. Gleichzeitig nimmt die Größenverteilung der Inseln ab, woraus die Autoren schlossen, daß größere, kohärente Inseln eine homogenere Größenverteilung besitzen als kleinere. Deponiert man noch mehr InAs auf der Probe, werden Versetzungen in die größeren Inseln eingebaut. Wahrscheinlich wachsen die großen Inseln, in die Versetzungen eingebaut werden, schneller [Drucker, 1993] und bauen eventuell sogar die kleinen kohärenten Inseln ab [Leonard et al., 1994b].

Abhängigkeit von der Substrattemperatur:

Die Substrattemperatur beeinflußt in großem Maße die Prozesse, die beim Einbau von eintreffenden Atomen auf der Oberfläche stattfinden (vgl. Seite 39). Insbesondere wird durch höhere Temperaturen auf der Oberfläche die Diffusionslänge¹³ der In-Atome erhöht. Chu et al. beobachteten eine Zunahme der Inselgröße mit ansteigenden Substrattemperaturen und bei weiterer Erhöhung der Temperatur eine Abnahme der Inselgröße. Die anfängliche Zunahme der Inselgröße erklärten sie durch die Bildung von sogenannten "verbotenen Zonen" [Ngo et al., 1996] um die Nukleationszentren herum, in welchen keine neuen Nukleationszentren entstehen können und deren Fläche von der Diffusionslänge abhängig ist. Neuere Erkenntnisse zeigen jedoch, daß diese Argumentation nur für das zweidimensionale Wachstum gültig ist. Beim dreidimensionalen Inselwachstum greift der durch die Verspannung ausgelöste Wechsel bei hohen Substrattemperaturen schon für kleinere Inselgrößen [Heyn und Dumat, 2001]. In diesem Falle würden also bei zunehmender Substrattemperatur die Inseln kleiner. Daß diese trotzdem größer werden, liegt am Intermixing. Dabei wird durch den ansteigenden Ga-Anteil in den Quantenpunkten die mit zunehmender Temperatur größer werdende Verspannung reduziert und die Inselgröße nimmt wiederum zu. Bei einer weiteren Erhöhung der Substrattemperatur beobachteten Chu et al. eine Abnahme der Inselgröße. Diesen Effekt erklärten sie mit der Desorption von In-Atomen von der GaAs-Oberfläche, wodurch die Größe und die Dichte der Inseln abnehmen (vgl. hierzu auch [Heyn, 2002]). Bei hohen Wachstumstemperaturen konnten die Autoren darüberhinaus das Intermixing von Ga und In deutlich erkennen.

Abhängigkeit vom As-Druck:

Der As-Druck beeinflußt ebenfalls die Diffusionslänge der In-Atome auf der Oberfläche. Da für ein In-Atom bei geringerem As-Angebot die Wahrscheinlichkeit, auf ein As-Atom zu treffen, entsprechend kleiner ist, vergrößert sich die Diffusionslänge für geringeren As-Druck. Daher konnten Chu et al. auch hier eine Zunahme der Inselgröße mit abnehmendem As-Druck bei gleichzeitiger Abnahme der Größenverteilung beobachten.

Während einer Wachstumsunterbrechung finden weiterhin Diffusionsprozesse statt. Insbsondere sind hierbei die Oberflächendiffusion und das Intermixing zu erwähnen. Im Falle des Stranski-Krastanov-Wachstums von InAs auf GaAs wird den In-Atomen also genügend Zeit gegeben, um sich auf den bereits entstandenen Wachstumsinseln anzulagern. Zudem wird vermutet, daß aufgrund der längeren Wachstumsdauer der Quantenpunkte mehr Ga aus dem Substrat in die Inseln diffundieren wird, woraus eine Zunahme der Inselgröße resultiert. Aus diesen Gründen werden häufig bewußt Wachstumspausen eingelegt, typischer-

¹³Mittlere freie Weglänge eines Teilchens, bevor es fest in die Kristallstruktur eingebaut wird.

weise in derselben Größenordnung wie die Wachstumsphasen, um eine homogenere Größenverteilung und größere InAs-Quantenpunkte zu erhalten.

Die Wachstumsgeschwindigkeit wird durch die Flußrate des In bestimmt. Wird die Substrattemperatur nicht zu hoch gewählt, so kann davon ausgegangen werden, daß jedes In–Atom, welche die Substratoberfläche erreicht, dort eingebaut wird. Für kleine In–Flußraten besitzen die In–Atome eine hohe Diffusionslänge auf der Oberfläche. Analog zu der Abhängigkeit vom As–Druck ergibt sich hier also eine kleinere Größenverteilung bei gleichzeitiger Zunahme der Inselgröße für abnehmenden In–Zellenfluß.

4.5 Bestimmung der Oberflächenstruktur mit RHEED

Wie bereits in Kapitel 4.3 angekündigt, soll an dieser Stelle diskutiert werden, wie durch Detektion des gebeugten Elektronenstrahls Rückschlüsse auf die Struktur der Probenoberfläche gezogen werden können.

4.5.1 Geometrie der Beugungsreflexe

Der Elektronenstrahl, welcher unter einem kleinen Winkel auf die Substratoberfläche trifft, tritt in Wechselwirkung mit den obersten Netzebenen der Probe. In Abhängigkeit von der Oberflächenstruktur ergeben sich jeweils typische Beugungsmuster, welche in Abbildung 4.8 dargestellt sind.

Für den Fall, daß sich auf der Oberfläche dreidimensionale Inseln gebildet haben, oder die Oberfläche sehr rauh ist, erfolgt eine Transmissions–Beugung mit entsprechender dreidimensionaler Periodizität der Streuzentren. Im Beugungsbild ergeben sich an den Stellen Reflexe, an denen die Schale der Ewald–Kugel einen Punkt im reziproken Gitter schneidet. Das Beugungsbild ist für diesen Fall also ein Abbild des reziproken Gitters (vgl. Abb. 4.8(a)).

Bei gestuften oder glatten Oberflächen haben die Elektronen aufgrund der streifenden Inzidenz nur eine geringe Eindringtiefe senkrecht zur Oberfläche. In diesem Fall sind die drei Laue-Bedingungen nicht mehr erfüllt, und das reziproke Gitter besteht aus regelmäßig angeordneten Stäben, welche senkrecht zur Substratoberfläche ausgerichtet sind [Cho, 1971]. Der Abstand *d* der reziproken Gitterstäbe beträgt dabei $d = \frac{2\pi}{a}$ bei einem Material mit Gitterkonstante *a*. Durch Unebenheiten, wie beispielsweise Verkippungen einzelner Kristallbereiche oder Stufen, kommt es zu einer Verbreiterung der Stäbe [Henzler und Göpel, 1994]. Somit schneidet die Schale der Ewald-Kugel die Gitterstäbe nicht in einem einzigen Punkt, sondern entlang einer bestimmten Strecke. Im Beugungsbild ist dieser Effekt in Form von Linien¹⁴ zu beobachten (vgl. Abb. 4.8(b)). Bei glatten

¹⁴Auch Streaks für engl. Streifen.



ABBILDUNG 4.8: Beugungsbilder (oben), reziprokes Gitter (Mitte) und Oberflächenmorphologie (unten) für (a) dreidimensionales Inselwachstum, (b) zweidimensionales Inselwachstum und (c) eine glatte Oberfläche. In allen drei Beugungsbildern ist unterhalb des halbkreisförmigen Abbildes des reziproken Gitters der Spiegelreflex zu erkennen.

Oberflächen hingegen sind die Punktreflexe dementsprechend auf einem Kreis angeordnet. Zusätzlich ist in diesem Fall der Spiegelreflex im Beugungsbild zu sehen (vgl. Abb. 4.8(c)).

Weitere periodische Beugungsreflexe können durch Oberflächenrekombinationen entstehen [Neave und Joyce, 1978], sollen im Rahmen dieser Arbeit aber nicht weiter diskutiert werden.

BEUGUNGSREFLEXE FÜR DAS WACHSTUM VON INAS AUF GAAS

In Abbildung 4.9 auf Seite 46 sind die einzelnen Stadien des Wachstums von InAs auf GaAs dargestellt. Da das InAs bei einer für GaAs typischen Wachstumstemperatur von etwa 600°C unmittelbar nach Erreichen der Oberfläche von dieser sofort wieder verdampfen würde, wird zunächst die Substrattemperatur auf etwa

500°C abgesenkt. Bei dieser Temperatur rauht die Probenoberfläche leicht auf (vgl. 4.9(a) und (b)). Wie bereits auf Seite 39 beschrieben, wächst die erste Monolage InAs verspannt auf die GaAs-Oberfläche auf. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 4.9(c) zu sehen: Der Abstand der Beugungsreflexe ist deutlich größer geworden, was auf eine größere Gitterkonstante des sich auf der Probenoberfläche befindlichen Materials schließen läßt. Wird weiterhin InAs auf dem Substrat deponiert, so vollzieht sich bei der kritischen Bedeckung Θ_c der Umschlag vom zweidimensionalen Schichtenwachstum zum dreidimensionalen Inselwachstum. Wie in auf Seite 43 dargelegt, ergibt sich für das Beugungsbild ein Abbild des reziproken Gitters. Dieses Beugungsbild ist für den vorliegenden Fall in Abbildung 4.9(d) dargestellt.

Die dreidimensionalen Beugungsreflexe, auch *Chevrons*¹⁵ genannt, lassen Rückschlüsse auf die Form der InAs–Quantenpunkte zu [Nabetani et al., 1994]. Seither wurde mit verschiedenen Methoden versucht, die Form der Quantenpunkte zu bestimmen. An dieser Stelle seien neben der Untersuchung mit RHEED [Nabetani et al., 1994], [Mirin et al., 1995], [Lee et al., 1998] noch das Verfahren der Röntgenbeugung [Schmidbauer et al., 1998], [Zhang et al., 2000] und das der TEM¹⁶ [Márquez et al., 2001] genannt.

¹⁵Engl. für Winkel, Zacken

¹⁶Engl. Abk. für Transmission Electron Microscope.





(a) GaAs–Oberfläche bei 600°C

(b) GaAs–Oberfläche bei 500°C



(c) Oberfläche nach Deposition von 1 ML InAs

(d) Oberfläche nach Deposition von 2 ML InAs

ABBILDUNG 4.9: Beugungsbilder für das Wachstum von InAs auf GaAs, aus [Heyn et al., 2000]. Dargestellt sind glatte GaAs–Oberflächen bei einer Substrattemperatur von 600°C (a) und 500°C (b). Nachdem eine Monolage InAs deponiert wurde, ergibt sich das in (c) dargestellte Beugungsbild. Der mit Pfeil hervorgehobene Spot stammt von dem Glühen der In–Effusionszelle, welche dadurch auf dem Fluoreszenzschirm sichtbar wird. Ab einer kritischen Schichtdicke Θ_c können Reflexe beobachtet werden (d), die auf ein dreidimensionales Inselwachstum schließen lassen.

Kapitel 5

Meßmethode und Meßaufbau

5.1 Photolumineszenz

Unter dem Begriff Lumineszenz faßt man alle Leuchterscheinungen zusammen, die nicht auf hohe Temperaturen ("glühen") der leuchtenden Substanz zurückgeführt werden können. Vielmehr entsteht das von der Probe ausgesandte Licht durch einen dreistufigen Prozeß, der in Abbildung 5.1 dargestellt ist. Im ersten Schritt wird ein Elektron aus einem Valenzband in ein Leitungsband angeregt. Diese Anregung über die Bandlücke der zu untersuchenden Halbleiterprobe hinweg kann durch folgende Prozesse erreicht werden:

- Lichteinstrahlung (Photolumineszenz),
- Elektronenstrahlung (Kathodolumineszenz),
- Radioaktive Strahlung (Radiolumineszenz),
- Chemische Reaktion (Chemolumineszenz),
- Elektrische Injektion an pn–Übergängen.

Im folgenden werden die wesentlichen Prozesse der Photolumineszenz vorgestellt.

Zunächst wird ein Elektron durch Absorption eines Photons aus einem Valenzband in ein Leitungsband angeregt. Dabei muß die Energie des absorbierten Photons größer sein als die Bandlücke der zu untersuchenden Halbleiterprobe. In dem Valenzband wird dabei ein Loch erzeugt. Anschließend wird das System versuchen, einen Zustand minimaler Energie zu erreichen. Hierfür gibt es mehrere konkurrierende Prozesse: Zum einen könnte das System die zugeführte Energie durch Emission eines Photons derselben Energie des eingestrahlten Lichtes abgeben. Zum anderen können das Elektron und das Loch durch Streuprozesse an Phononen, Defekten, Störstellen, Grenzflächen und anderen Ladungsträgern Energie abgeben [Ridley, 1988]. Da diese Streuprozesse wesentlich wahrscheinlicher sind, relaxieren das Elektron und das Loch bis an die Kante des jeweiligen Bandes. Aufgrund der Tatsache, daß keiner der genannten Streuprozesse in der Lage ist, Energien in der Größe der Bandlücke aufzunehmen, kommt es zu einer strahlenden Rekombination von Elektron und Loch. Die Energie des emittierten Photons entspricht in etwa der der Bandlücke.



ABBILDUNG 5.1: Das Prinzip der Photolumineszenz.

Das emittierte Photon besitzt nicht exakt die Energie der Bandlücke, da die beiden an der Rekombination beteiligten Teilchen elektrisch geladen sind und somit der Coulombwechselwirkung unterliegen. Kurz vor der Rekombination bilden das Elektron und das Loch ein Quasi-Teilchen, das Exziton (vgl. Kap. 2.3). Daher wird die Energie des Photons um die Bindungsenergie des Exzitons abgesenkt. Mit Hilfe der Photolumineszenzspektroskopie ist man nicht nur in der Lage, Aussagen über die Größe der Bandlücke zu treffen, sondern sie kann darüberhinaus noch Informationen über höhere Energieniveaus liefern. Hierzu müßte es möglich sein, das Licht von Rekombinationen aus angeregten, also energetisch höheren Niveaus zu detektieren. Das wiederum bedeutet, daß die Relaxation der Elektronen in das energetisch niedrigste Leitungsband (für die Löcher entsprechend das energetisch höchste Valenzband) "verhindert" werden muß. Dies kann dadurch erreicht werden, daß so viele Elektronen in höhere Leitungsbänder angeregt werden, daß es hier mehr Elektronen als Plätze im untersten Leitungsband gibt (für die Löcher gilt entsprechend das gleiche). Jetzt rekombinieren auch Elektronen aus angeregten Zuständen mit den entsprechenden Lochniveaus unter Aussendung von Photonen höherer Energie (vgl. Abb. 5.2).

Aufgrund der endlichen Lebensdauer der angeregten Zustände können insbesondere in Photolumineszenzspektren von Quantenpunkten Rekombinationen



ABBILDUNG 5.2: Sobald genügend Elektronen in höhere Leitungsbänder angeregt werden, kann neben der Rekombination aus dem Grundzustand auch die aus angeregten Energieniveaus beobachtet werden.

aus höheren Niveaus beobachtet werden, bevor der Grundzustand gesättigt ist [Sugawara, 1999]. Dieser Effekt wird sich auch in den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen zeigen (vgl. Kap. 8.2.5).

5.2 Der Photolumineszenz–Meßaufbau

In Abbildung 5.3 ist die verwendete Photolumineszenz–Apparatur schematisch dargestellt. Die zu untersuchende Probe befindet sich in einem Helium–Badkryostaten¹. Als Anregungsquelle dient Laserlicht², das mit Hilfe der Linse L₃ fokussiert und über ein Prisma in den Kryostaten eingekoppelt wird. Das von der Probe emittierte Licht wird von der Linse L₂ aufgesammelt, durch die Linse L₁ auf das Fourier–Spektrometer³ fokussiert und dort detektiert. Die einzelnen Komponenten sollen im folgenden näher vorgestellt werden.

³Hersteller: Bruker, Modell: IFS66V.

¹Hersteller: Oxford, Modell: Optistat.

²Es standen zwei Laserquellen zur Verfügung:

a Helium–Neon–Laser, Hersteller: Uniphase, Modell: 1135P, Ausgangsleistung 10mW bei 632,8nm,

b Argon-Ionen-Laser, Hersteller: Coherent, Modell: Innova 300, Ausgangsleistung 5W (Multilinemodus).



ABBILDUNG 5.3: Der Photolumineszenz–Meßaufbau. Als Anregungsquelle dient ein Argon–lonen–Laser, dessen Licht über den Spiegel S14, die Linse L3 und ein Prisma auf die Probe gelenkt wird. Das Photolumineszenzlicht wird von der Linse L2 aufgesammelt und mit Hilfe der Linse L1 auf das Fourier–Spektrometer fokussiert und anschließend von diesem detektiert.

5.2.1 Der Durchflußkryostat

Wie in Abbildung 5.4 dargestellt, besteht der Durchflußkryostat aus drei Kammern. Die äußerste Kammer wird mit Hilfe eines Turbopumpstandes⁴ evakuiert. Sie dient also als Isoliervakuum, der Wärmeaustausch zwischen Umgebung und Probe wird stark herabgesetzt. In die zweite, spiralförmige Kammer (in der Abbildung 5.4 schematisch zylindersymmetrisch dargestellt) kann flüssiges Helium aus einem Heliumreservoir in den Kryostaten transferiert werden. Das Helium kommt zu keiner Zeit in direkten Kontakt mit dem Probenstab, welcher in die dritte Kammer eingeführt wird. Die Kühlung erfolgt vielmehr über ein Wärmeaustauschgas (Helium) und durch thermischen Kontakt zwischen der zweiten Kammer und ei-

⁴Hersteller: Balzer, Modell: TSH 055.

nem Wärmetauscher an dem Probenstab. Um einen konstanten Heliumfluß zu gewährleisten, wird das flüssige Helium mit Hilfe einer Membranpumpe⁵, welche an die mittlere Kammer des Kryostaten angeschlossen ist, abgesaugt. Der Membranpumpe vorgeschaltet ist ein Flußcontroller⁶, mit welchem sich der Helium– Fluß durch den Kryostaten und damit die Temperatur an der Probe regulieren läßt.



ABBILDUNG 5.4: Schematische Darstellung des Durchflußkryostaten. Die äußerste Kammer dient als Isoliervakuum und wird mit Hilfe eines Turbopumpstandes evakuiert. Durch die mittlere Kammer wird mittels einer Membranpumpe flüssiges Helium He(I) gepumpt. Die Kühlung des Probenhalters PH erfolgt zum einen über das Austauschgas und zum anderen über den Wärmetauscher WT. Durch die Fenster F1 bis F4 kann Licht in den Kryostaten ein– bzw. aus diesem ausgekoppelt werden.

⁵Hersteller: Oxford, Modell: GF3/VPZ0233.

⁶Hersteller: Oxford, Modell: VC 31.

5.2.2 Die Anregungsquellen

Als Anregungsquelle stand zum einen ein Helium–Neon Laser mit einer Ausgangsleistung von 10mW bei einer Wellenlänge von 632,8nm zur Verfügung. Des weiteren konnten die Proben mit Hilfe eines Argon–Ionen–Lasers angeregt werden. Dieser kann im Multilinemodus mit einer Leistung von 5W betrieben werden, oder im Singlelinemodus. In diesem Fall ist, wie in Tabelle 5.1 dargestellt, die Leistung abhängig von der gewählten Wellenlänge.

Wellenlänge	Energie	rgie max. Leistung	
(nm)	(eV)	(W)	
457,9	2,71	0,35	blau
465,8	2,66	0,15	
472,7	2,62	0,2	
476,5	2,60	0,6	
488,0	2,54	1,5	
496,5	2,50	0,6	
501,7	2,47	0,4	
514,5	2,41	2,0	grün

TABELLE 5.1: Die Linien des Argon-Ionen-Lasers im Singlelinemodus.

5.2.3 Das Fourier–Spektrometer

Aufgrund der Tatsache, daß an den Halbleiterproben nicht ausschließlich Photolumineszenzmessungen, sondern auch andere optische Charakterisierungsmessungen durchgeführt wurden, stellt das Fourier–Spektrometer eine optimale Lösung dar. Durch die Möglichkeit, verschiedene Lichtquellen sowie verschiedene interne oder externe Detektoren nutzen zu können, bietet es ein großes Spektrum an Einsatzmöglichkeiten über einen weiten spektralen Bereich vom Ultravioletten bis zum Nahinfraroten. Weitere Vorteile sind die hohe Auflösung und ein hervorragendes Signal–zu–Rausch Verhältnis.



ABBILDUNG 5.5: Das Fourier–Spektrometer. Dargestellt ist eine Messung mit Hilfe der internen Halogenlampe HL. Das Licht wird über den Spiegel S1, die Lochblende LB und den Spiegel S3 auf den Strahlenteiler ST gelenkt. Von hier aus trifft das Licht zum einen auf den fixen Spiegel S4 und zum anderen auf den beweglichen Spiegel S5. Das von diesen beiden Spiegeln reflektierte Licht gelangt, nachdem es den Strahlenteiler erneut passiert hat, über die Spiegel S8 und S10 zum Detektor D1, wo die Intensität des Signals in Abhängigkeit von der Position des Spiegels S5 aufgezeichnet wird. Durch entsprechende Positionierung der Spiegel S2, S6 und S9 können auch externe Signale detektiert, das Licht der internen Halogenlampe aus dem Spektrometer ausgekoppelt und Spektren mit Hilfe eines zweiten Detektors D2 aufgezeichnet werden.

Herzstück des Fourier–Spektrometers stellt ein Michelson–Interferometer dar, welches aus einem fixen Spiegel (S4), einem Strahlenteiler (ST) und einem beweglichen Spiegel (S5) besteht (vgl. Abb. 5.5). Durch die lineare Bewegung

des Spiegels (S5) erfährt jede Wellenlänge des in das Interferometer einfallenden Lichtes entsprechend eine sinusförmige Variation in der Intensität. Je nach Spiegelposition und Wellenlänge interferieren die von den beiden Spiegeln (S4) und (S5) reflektierten Wellen konstruktiv oder destruktiv und werden auf einen Detektor gelenkt. Hier wird das resultierende Signal von einer Diode aufgezeichnet und seine Intensität in Abhängigkeit von der aktuellen Spiegelposition gemessen. Auf diese Weise erhält man die von der Bewegung des Spiegels (S5) abhängige Fouriertransformierte des Wellenlängenspektrums. Diese wird an einen angeschlossenen Computer übermittelt, der das reale Spektrum berechnet. Weiterhin übernimmt dieser Rechner ebenfalls die Steuerung des Experiments.

5.3 Transmissions- und Reflexionsspektroskopie

Neben den Photolumineszenzuntersuchungen wurden auch Transmissions- und Reflexionsexperimente an Mikroresonatoren durchgeführt. Mit Hilfe dieser Experimente wurden die Position sowie die Güte der Resonatormode bestimmt. Die Abbildung 5.6 zeigt einen schematischen Aufbau der Transmissions- und Reflexionsspektroskopie-Anordnung.



ABBILDUNG 5.6: Der Transmissions- und Reflexionsspektroskopie-Aufbau.

Als Anregungsquelle dient eine Halogenlampe, die in das Fourierspektrometer

eingebaut ist. Das Licht dieser Lampe, welches das Spektrometer durch den Ausgang A2 verläßt, wird mittels der Linse L1 auf die Probe fokussiert. Die Messung des Spotdurchmessers d_S auf der Probe ergab $d_S = 0,28$ mm.

Für die Transmissionsmessungen wird das durch die Probe transmittierte Licht mit Hilfe der Linse L2 aufgesammelt und durch die Linse L3 auf den Detektor D3 abgebildet. Das von der Probe reflektierte Licht wird von der Linse L4 auf den Detektor D4 abgebildet.

Diese Methode, die Reflektivität und Transmissivität zu bestimmen, hat den Vorteil, daß die Messungen am selben Probenort durchgeführt werden können. Gleichzeitig beinhaltet sie jedoch auch einen systematischen Fehler. Dieser liegt darin, daß die Winkel, unter denen das Licht detektiert wird, nicht gleich sind. Da die Dispersionsrelation der Resonatormode für kleine Winkel jedoch eine kleine Steigung besitzt (vgl. Abb. 3.7 auf Seite 25), wird dieser Fehler in den weiteren Betrachtungen nicht weiter berücksichtigt und sowohl für die Transmissions- als auch für die Reflexionsmessungen ein Einfallswinkel von $\theta = 0^{\circ}$ angenommen.

Da die beschriebene Anordnung eine Messung der Transmission und der Reflexion an ein und demselben Probenort ermöglicht, kann aus diesen Untersuchungen auf die Menge an von der Probe absorbiertem Licht geschlossen werden.

Kapitel 6

Untersuchungen zum MBE–Wachstum von Mikroresonatoren

In diesem Kapitel sollen zunächst die einzelnen Schritte, die zur Herstellung eines Mikroresonators notwendig sind, kurz vorgestellt werden. Anschließend wird ein Überblick über die an der Hamburger MBE vor Beginn dieser Arbeit hergestellten Mikroresonatoren gegeben. Aus optischen Spektroskopieuntersuchungen an diesen Proben wurden einige Hypothesen entwickelt, welche Wachstumsbedingungen entscheidenden Einfluß auf die Qualität des Mikroresonators haben könnten. Diese Hypothesen wurden durch die Anfertigung von neuen Proben überprüft.

6.1 Arbeitsschritte zur Herstellung eines Mikroresonators

Bei der Herstellung eines Mikroresonators mit Hilfe der MBE sind folgende Schritte notwendig:

- 1) Simulationsrechnungen zur Optimierung des Probendesigns,
- 2) Kalibrierung der MBE-Anlage,
- 3) Wachstum der Probe.

Die Optimierung des Probendesigns wurde im Rahmen dieser Arbeit mit Hilfe eines selbstgeschriebenen Computerprogramms realisiert. Dieses Programm berechnet das Reflexionsspektrum des gewünschten Probendesigns mit Hilfe der Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12). Des weiteren werden die Breite des Stoppbandes (vgl. Kap. 3.2), die energetische Lage der Resonatormode und die Finesse (vgl. Kap. 3.3) des simulierten Mikroresonators ausgegeben. Mit Hilfe der aus den Simulationen gewonnen Daten wird ein Ablaufplan erstellt, welcher von der Steuerungssoftware der MBE–Anlage umgesetzt werden kann. Um eine möglichst gute Übereinstimmung von simulierter und gewachsener Probe zu erhalten, ist eine äußerst genaue Kalibrierung der Flußraten (vgl. Kap. 4.3) vonnöten.

Anschließend kann mit der Herstellung der Probe begonnen werden.

6.2 Ubersicht über die Proben vor Beginn dieser Arbeit

In Tabelle 6.1 ist der Aufbau der Proben #89, #161, #176 und #342 dargestellt, die vor Beginn dieser Arbeit an der Hamburger MBE–Anlage hergestellt wurden.

					_
	#161		#89, #		
Cap Layer	2nm	GaAs	2nm	GaAs	
	60,32nm	Al _{0,4} Ga _{0,6} As	60,32nm	Al _{0,4} Ga _{0,6} As	w24
	67,28nm	AlAs	67,28nm	AlAs	X24
nicht rotiert	111,27 nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As	54,05 nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As	
	10,00nm	GaAs	8,00nm	GaAs	
nicht rotiert	111,27 nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As	54,05 nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As	
	67,28nm	AlAs	67,28nm	AlAs	
	60,32nm	Al _{0,4} Ga _{0,6} As	60,32nm	Al _{0,4} Ga _{0,6} As	x33
	GaAs–Wafer		GaA		

TABELLE 6.1: Aufbau der Mikroresonatoren #89, #161, #176 und #342.

Während die dielektrischen Spiegel für alle vier Proben nominell identisch sein sollten, wurde in die Probe #161 eine Spacerschicht der Dicke λ eingewachsen, wohingegen die Dicke dieser Schicht bei den anderen drei Proben $\frac{\lambda}{2}$ beträgt. Die berechnete Resonatormode liegt jeweils bei 806nm. In Tabelle 6.2 sind die aus Reflexionsmessungen gewonnenen Resonatorpositionen für die vier Proben dargestellt.

Probe	#89	#161	#176	#342
nominelle Peakposition (nm)	806	806	806	806
gemessene Peakposition (nm)	827	796	765	750
Differenz von nomineller zu				
gemessener Peakposition (nm)	21	-10	-41	-56

 TABELLE 6.2: Simulierte und gemessene energetische Lage der Resonatormode für verschiedene Proben.

6.3 Optimierung des Wachstumsprozesses

Wie aus Tabelle 6.2 eindeutig hervorgeht, ist eine Optimierung des Wachstumsprozesses vonnöten. Hierfür wurden zunächst Hypothesen über mögliche Fehlerquellen aufgestellt:

- 1) Ungenaue Kenntnis der optischen Konstanten bei der Simulation.
- 2) Schwankender Zellenfluß während des Wachstums bedingt durch
 - Füllhöhenstandänderungen,
 - indirekte Kontrolle des Zellenflusses über die Zellentemperatur,
 - unbekannte Vorgänge beim Wärmeübertrag von Heizelement auf den Zellentiegel.
- 3) Ungenaue Kenntnis der Flußraten.

6.3.1 Optimierung der Simulationsrechnungen

Aufgrund der Tatsache, daß bis auf eine Ausnahme die gemessene Resonatormode im Vergleich zur simulierten bei zu hohen Energien lag, wurden in einem ersten Ansatz die Schichtdicken der Mikroresonatoren vergrößert¹. Dabei wurden die Schichtdicken anhand der Erkenntnisse des zuletzt gewachsenen Mikroresonators verändert.

Zudem wurde auch das Probendesign dahingehend verändert, daß in das Zentrum des Mikroresonators einseitig modulationsdotierte Quantentöpfe eingewachsen wurden. Eine schematische Darstellung dieses Probendesigns ist in Tabelle 6.3 gezeigt.

¹Dies entspricht einer Erhöhung der dielektrischen Konstanten, über die die Schichtdicken des Resonators nach (3.13) berechnet werden.

Cap-Layer	2nm	GaAs		
	64,50nm	Al _{0,4} Ga _{0,6} As	w24	
	71,98nm	AlAs	X24	
nicht rotiert	43.77 nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As		
	45.00nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As : Si		
	20.00nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As		
	30.00nm	GaAs		
	65.00nm	$Al_{0,2}Ga_{0,8}As$		
nicht rotiert	43.77nm	$Al_{0,2}Ga_{0,8}As$		
	71,98nm	AlAs	v22	
	64,50nm	Al _{0,4} Ga _{0,6} As	722	
	G			

TABELLE 6.3: Aufbau der Proben #277, #350, #372, #413, #416 und #436.

Die Tabelle 6.2 zeigt die aus Reflexionsmessungen gewonnenen Ergebnisse an den Proben #277, #350, #372, #413, #416 und #436. Ziel der Bemühungen war die Herstellung eines Mikroresonators, dessen Resonatormode bei einer Wellenlänge von 830nm liegt.

TABELLE 6.4: Simulierte und gemessene energetische Lage der Resonatormode für verschiedene Proben. Bei der Probe #350 konnte keine Resonatormode beobachtet werden.

Probe	#277	#350	#372	#413	#416	#436
nominelle Peakposition (nm)	830	830	836	836	862	880
gemessene Peakposition (nm)	799		784	805	805	859
Differenz von nomineller zu						
gemessener Peakposition (nm)	-31		-52	-31	-57	-21

Anhand der gewonnenen Daten drängte sich die Vermutung auf, daß die Simulationsrechnungen nicht allein für die Abweichung der Resonatormode vom Sollwert verantwortlich sein können. Besonders deutlich wird dies, wenn man die beiden Proben #413 und #416 miteinander vergleicht. Obwohl die Simulationen mit denselben optischen Parametern durchgeführt wurden, zeigt die Probe #413 eine
Abweichung von 31nm gegenüber dem Sollwert, die Probe #416 dagegen eine Abweichung von 57nm. Insbesondere ist verwunderlich, daß die gemessene Resonatormoden der beiden Proben identisch sind, obwohl die Resonatormode von Probe #416 nominell 26nm über der von Probe #413 liegen sollte.

6.3.2 Optimierung des Zellenflusses

Der Effekt, daß die energetische Lage der Resonatormode generell zu hoch ist, könnte durch Schwankungen im Zellenfluß erklärt werden. Die Wachstumsdauer eines Mikroresonators beträgt in etwa 8 bis 10 Stunden. In dieser Zeit sollte der Zellenfluß nur minimalen Schwankungen unterworfen sein. In dieser Zeit wird jedoch eine beträchtliche Menge an Material aus den Effusionszellen verdampft. Somit könnten sich Änderungen des Zellenflusses durch Füllstandhöhenänderungen ergeben.

Um diesen Effekt zu untersuchen, wurde das Langzeitverhalten der Effusionszellen mit Hilfe der RHEED–Methode aufgezeichnet. Dabei wurde während des Wachstums eines Mikroresonators zu verschiedenen Zeitpunkten die aktuelle Wachstumsgeschwindigkeit mit RHEED gemessen. Die Ergebnisse dieser Messung sind in Tabelle 6.5 und Abbildung 6.1 dargestellt.

Zeit (min)	Fluß GaAs $\left(\frac{ML}{sec}\right)$	Fluß AlAs $\left(\frac{ML}{sec}\right)$
0	0,868	
5	0,865	
20		0,573
90	0,814	
96		0,621
98	0,883	
104		0,65
106	0,927	
112		0,664
630	0,913	
635	0,898	
640		0,598
645		0,6
650	0,896	
655		0,588

TABELLE 6.5: Ergebnisse der *in-situ* Messung des Zellenflusses. Ausgewertet wurden jeweils zehn RHEED–Oszillationen.



ABBILDUNG 6.1: Ergebnisse der in-situ Messung des Zellenflusses.

In erster Näherung wurde für die Änderung des Zellenflusses eine lineare Zubzw. Abnahme der Flußgeschwindigkeit angenommen.

Die in Abbildung 6.1 dargestellten Daten stammen zum einen aus der Flußkalibrierung, die vor Beginn des Wachstums durchgeführt wurde. Die Meßpunkte zwischen 90 und 112 Minuten wurden jeweils zu Beginn des Wachstums eines neuen dielektrischen Spiegels aufgenommen. Hierbei wurde nach Beendigung eines Spiegels eine Wachstumspause von einer Minute eingelegt, um eine möglichst glatte Oberfläche zum Beginn der Messung zu erhalten.

Dennoch waren für das Wachstum der Spiegel fünf und sechs nur noch wenige RHEED–Oszillationen vom Untergrundrauschen zu unterscheiden. Aus diesem Grund konnten für die Bestimmung der Wachstumsgeschwindigkeit jeweils nur zehn Oszillationen ausgewertet werden.

Die Streuung der Meßwerte in Abbildung 6.1 deutet an, daß die *in-situ* Messung des Zellenflusses mit RHEED aufgrund der großen Oberflächenrauhigkeit außerordentlich starken Schwankungen unterworfen ist.

Nach Beendigung des Wachstums der gesamten Resonatorstruktur wurden RHEED–Daten für die Zeiten nach 630 Minuten aufgenommen. Hier ist die Abweichung der Meßwerte vom Mittelwert wieder geringer, da der Oberfläche ausreichend Zeit zur Glättung gegeben wurde.

Aus den gewonnenen Daten wurde eine Zunahme des Galliumflusses von $32,80_{00}^{/00}$ pro Stunde und eine Abnahme des Aluminiumflusses von $5,50_{00}^{/00}$ pro Stunde angenommen. Darauf basierend wurde ein Mikroresonator hergestellt, der wiederum das in Tabelle 6.3 auf Seite 60 dargestellte Design besitzen sollte. Die Wachstumszeiten für die jeweiligen Schichten wurden an das gemessene Langzeitverhalten der Effusionszellen angepaßt. Das berechnete und die an dieser Probe gemessenen



Reflexionsspektren sind in Abbildung 6.2 dargestellt.

ABBILDUNG 6.2: Berechnetes und gemessene Reflexionsspektren der Probe #455. Die Wachstumszeiten der Probe wurden an das mit RHEED bestimmte Langzeitverhalten der Effusionszellen angepaßt. Die schwarze Kurve stellt das Reflexionsspektrum bei senkrechter Inzidenz dar. Da die energetische Lage der Resonatormode winkelabhängig ist, wurde für die Messung der roten Kurve der Einfallswinkel so gewählt, daß die Modenposition mit der berechneten (blaue Kurve) übereinstimmt.

Eine weitere Diskussion der Eigenschaften dieses Mikroresonators ist in Kapitel 9.1 zu finden.

Bedauerlicherweise konnte in einem weiteren Versuch die Methode nicht bestätigt werden. In diesem zweiten Versuch wurde während eines mehrstündigen Wachstums in gleichmäßigen Abständen von einer Stunde die aktuelle Wachstumsgeschwindigkeit mit RHEED bestimmt. Für den Zellenfluß des Aluminiums ergab sich wiederum eine Abnahme von $3,7 \, 0/_{00}$ pro Stunde, für den Galliumfluß ergab sich jetzt im Gegensatz zur oben beschriebenen Probe eine Abnahme von $2,7 \, 0/_{00}$ pro Stunde. Das Reflexionsspektrum des mit Hilfe dieser Ergebnisse hergestellten Mikroresonators² ist in Abbildung 6.3 dargestellt. Da die Resonatormode energetisch oberhalb des berechneten Wertes liegt, wird durch Verkippung

²Auch diese Probe sollte wiederum das in Tabelle 6.3 auf Seite 60 dargestellte Design haben.

der Probe die Abweichung von der nominellen Peakposition größer (vgl. Abb. 3.7 auf Seite 25.



ABBILDUNG 6.3: Gemessenes Reflexionsspektrum (schwarz) der Probe #583 sowie deren berechnetes Spektrum (rot). Die Wachstumszeiten der Probe wurden an das gemessene Langzeitverhalten der Effusionszellen angepaßt.

Allen bisherigen Versuchen, den Zellenfluß zu optimieren, liegt offensichtlich ein entscheidender systematischer Fehler zugrunde. Bisher wurde nach Beendigung des Wachstums die MBE–Anlage jeweils in einen *Standby*–Modus heruntergefahren. Dabei werden die Temperaturen aller Effusionszellen sowie die Temperatur des Probenhalters abgesenkt. Selbst wenn der zeitliche Abstand zwischen der Herstellung zweier Mikroresonatoren nicht allzu groß ist, so können sich durch das Abkühlen und erneute Aufheizen der Effusionszellen die Wachstumsbedingungen entscheidend verändert haben. Um diesen systematischen Fehler zu eliminieren, wurden zwei Mikroresonatoren direkt hintereinander gewachsen, ohne dabei die Anlage in den oben beschriebenen Standby–Modus herunterzufahren³. Dabei wurde der erste der beiden Mikroresonatoren direkt nach Beendigung des Wachstums spektroskopisch vermessen und die Ergebnisse aus diesen Messungen

³Die Temperatur des Probenhalters mußte abgesenkt werden, da andernfalls ein Ausschleusen einer Probe aus der MBE–Anlage unmöglich ist.

bildeten die Grundlage für die Herstellung des zweiten Mikroresonators⁴. Die Reflexionskurven dieser beiden Mikroresonatoren sowie deren simulierte Spektren sind in Abbildung 6.4 zu sehen.



ABBILDUNG 6.4: Reflexionsspektren der Proben #687 und #688 (schwarz) sowie deren berechnete Spektren (rot).

Deutlich zu erkennen ist, daß die Resonatormode der Probe #687 drastisch vom Sollwert abweicht. Dahingegen ist die Differenz zwischen berechneter und gemessener Resonatormode für die Probe #688 klein genug, so daß unter Ausnutzung der Winkelabhängigkeit die Mode so verändert werden kann, daß diese mit der berechneten Position übereinstimmt.

Bei der Berechnung der Schichtdicken von Probe #688 wurde davon ausgegangen, daß die Verschiebung der Resonatormode nicht auf das Langzeitverhalten der Effusionszellen zurückzuführen ist, sondern auf eine ungenaue Kenntnis der absoluten Flußraten. Diese Annahme stützt sich auf Simulationsrechnungen, in denen versucht wurde, das gemessene Reflexionsspektrum von Probe #687 theoretisch zu reproduzieren. Dabei ergab sich, daß durch eine konstante Veränderung der Schichtdicken eine wesentlich bessere Übereinstimmung zwischen gemessener und berechneter Reflexionskurve erzielt werden konnte, als durch eine lineare Zu– bzw. Abnahme der jeweiligen Zellenflüsse während des Wachstums. Diese Annahme kann durch die in Kapitel 7.4.1 beschriebenen Untersuchungen weiter untermauert werden.

Weitere Untersuchungen und Experimente zu der Probe #688 befinden sich in

⁴Diese beiden Mikroresonatoren sollten die im Anhang A.2 gezeigte Gestalt besitzen. Der Unterschied zu dem in Tabelle 6.3 gezeigten Design ist, daß die Resonatormode der Probe #688 bei einer höheren Wellenlänge liegt.

Kapitel 9.2.

Mit Hilfe der Ergebnisse dieser Untersuchung kann also auch die Hypothese 2) als mögliche Fehlerquelle ausgeschlossen werden. Obwohl die Herstellung eines Mikroresonators nach der oben beschriebenen Methode durchaus erfolgversprechend erscheint, ist die Fabrikation außerordentlich arbeits- und zeitaufwendig. Daher wurde in einem nächsten Arbeitsschritt nach Möglichkeiten gesucht, die Genauigkeit der Flußkalibrierung zu verbessern.

Kapitel 7

Pyrometrische Interferometrie

Wie bereits in Kapitel 4.3.5 ausführlich diskutiert, berücksichtigt eine Messung des aktuellen Zellenflusses mit RHEED nicht die Shuttertransiente. Zudem ist, wie die *in-situ* Untersuchungen während des Wachstums eines Mikroresonators gezeigt haben, die Oberflächenstruktur zum Zeitpunkt der Messung von signifikanter Bedeutung und kann das Signal-zu-Rausch Verhältnis und damit das Ergebnis einer Flußmessung mit RHEED stark beeinflussen.

In diesem Kapitel soll nun gezeigt werden, daß die pyrometrische Interferometrie ein geeignetes Werkzeug darstellt, um diesen Mangel zu beheben.

7.1 Grundlagen

Die Idee, Schichtdicken mit Hilfe von thermischer Strahlung zu bestimmen, ist vergleichsweise alt. Dumin [Dumin, 1967] war im Jahr 1967 der erste, der mit Hilfe von Pyrometrie die Schichtdicke von epitaktisch gewachsenen Siliziumfilmen auf Saphir bestimmte. Das Konzept von Dumin wurde von Clark wieder aufgegriffen [Clark, 1970] und von SpringThorpe et al. 1989 für MBE–Anwendungen wiederentdeckt [SpringThorpe et al., 1989]. Seitdem berichten zahlreiche Gruppen, daß sie mit Hilfe der pyrometrischen Interferometrie qualitativ hochwertige Proben herstellen können z.B. [Houng et al., 1994]. Darüberhinaus wurde am Fraunhofer–Institut für Integrierte Schaltungen in Erlangen das *PYRITTE–RS*¹–System entwickelt, welches mit Hilfe von reflexionsunterstützender pyrometrischer Interferometrie sowohl die Oberflächentemperatur als auch die aktuelle Schichtdicke während des MBE– Wachstums bestimmen kann und bereits in der Halbleiter–Entwicklung und –Fertigung eingesetzt wird.

¹Abk. für engl. Pyrometric Interferometry Reflection Supported.

7.1.1 Funktionsweise

Für manche Anwendungen ist die Temperaturmessung von Stoffen nicht über einen direkten thermischen Kontakt möglich. Hier bieten Pyrometer den Vorteil, die Temperatur über die vom Körper abgestrahlte Wärme bestimmen zu können. Dabei werden die auf die Öffnung des Pyrometers treffenden Wärmestrahlen auf Thermoelemente oder Sensoren fokussiert, die eine Temperaturmessung mit hoher Genauigkeit ermöglichen.

Wie in Kapitel 4.1 bereits erwähnt und in Abbildung 7.1 zu sehen, wird das Substrat von einer Wärmequelle, welche sich auf der Rückseite des Substrathalters befindet, erhitzt. Die Wärme breitet sich mittels Konduktion durch das Substrat in Richtung Oberfläche aus und wird dort in Form von Wärmestrahlung abgegeben. Diese emittierte Strahlung trifft auf ein senkrecht zur Probe ausgerichtetes Pyrometer und wird von diesem detektiert.



ABBILDUNG 7.1: Modifizierter Aufbau einer MBE-Anlage.

Befindet sich in der Nähe der Substratoberfläche eine Heterogrenzfläche, wird die emittierte Wärmestrahlung aufgrund der an den Grenzflächen stattfindenden Reflexionen und Interferenzen mit einer an die Wachstumsgeschwindigkeit gekoppelten Periode oszillieren (vgl. Abb. 7.2).



ABBILDUNG 7.2: Zur Schichtdickenmessung mit Hilfe des Pyrometers.

Da die Grenzfläche an der Unterseite des Substrats stark aufgerauht ist, geht bei der Reflexion an dieser Stelle die Phaseninformation verloren. Aus diesem Grund ist die auf der vorherigen Seite erwähnte Heterogrenzschicht vonnöten, andernfalls sind keine Oszillationen des Pyrometersignals zu erkennen. Wächst man verschiedene Materialien epitaktisch auf das Substrat, erhält man also ein Signal, welches von der Anzahl der Grenzflächen, deren Schichtdicken und dielektrischen Konstanten sowie maßgeblich von der Dicke der obersten Schicht abhängt. Die Auswertung dieses Pyrometersignals erfolgt mit Hilfe der in Kapitel 3.1.1 vorgestellten Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12). Vereinfacht wird die Berechnung für den vorliegenden Fall durch die Tatsache, daß das Pyrometer senkrecht zur Probe steht (vgl. Abb. 7.1). Dadurch muß nicht zwischen s– und p–Polarisation des Lichts unterschieden werden.

Aufgrund der Tatsache, daß jede elektromagnetische Strahlung, welche sich durch einen Festkörper bewegt, nach dem Lambert–Beer'schen Gesetz exponentiell abgeschwächt wird, kann das Pyrometersignal nicht für beliebig dicke Schichten aufgezeichnet werden. Dennoch kann, typische Wachstumsgeschwindigkeiten von etwa $1\frac{\text{ML}}{\text{sec}}$ (für GaAs) vorausgesetzt, das Pyrometersignal bei Wachstum eines Materials über einen Zeitraum von rund zwei Stunden aufgezeichnet werden. Darüberhinaus "zählt", wie bereits erwähnt, als absorbierende Schicht nur die oberste. Das bedeutet, so lange sich eine Grenzfläche zwischen zwei verschiedenen Materialien in ausreichender Nähe zur Oberfläche befindet, ist das Signal in jedem Fall deutlich vom Untergrundrauschen zu unterscheiden.

7.1.2 Kalibrierung des Pyrometers

Um eine Flußkalibrierung mit einem Pyrometer durchführen zu können, muß dessen Detektionswellenlänge bekannt sein. Bei dem hier verwendeten Pyrometer² handelt es sich jedoch nicht um ein monochromatisches, sondern um ein polychromatisches Pyrometer. Die Abbildung 7.3 zeigt die Kennlinie des Pyrometers.



ABBILDUNG 7.3: Abhängigkeit des Pyrometersignals von der Wellenlänge einer Lichtquelle. Die Kennlinie wurde mit Hilfe eines durchstimmbaren Titan–Saphir Lasers bei konstanter Ausgangsleistung aufgenommen. Die schwarz gefüllten Quadrate markieren die Meßwerte, die rot eingezeichnete Kurve beschreibt die direkte Verbindungslinie zwischen zwei benachbarten Meßwerten.

Die Detektionswellenlänge λ_d des Pyrometers ergibt sich als gewichteter Mittelwert aus den *n* Meßwerten (vgl. Tab. 7.1) mit den Koordinaten $(x_{P,i}, y_{P,i})$ (mit i = 1, ..., n):

²Firma: Ircon, Modell: 3V-10C02.

$$\lambda_P = \frac{\sum_{i=0}^{n} x_{P,i} \cdot y_{P,i}}{\sum_{i=0}^{n} y_{P,i}}.$$
(7.1)

TABELLE 7.1: Meßwerte zur Bestimmung der Kennlinie des Pyrometers. Die Werte für die Laserwellenlängen 880nm und 980nm liegen unterhalb der Nachweisgrenze des Pyrometers und können daher nicht exakt angegeben werden.

Laserwellenlänge (nm)	Pyrometersignal (°C)
880	≤ 400
890	478
900	528
905	638
910	674
920	671
930	643
940	641
950	607
960	563
970	481
980	≤ 400

Für die Detektionswellenlänge λ_P ergibt sich somit nach (7.1) ein Wert von

$$\lambda_P = 927, 3$$
nm.

Dieser hier gemessene Wert stimmt sehr gut mit jenem überein, den Lange für ein baugleiches Pyrometer mit Hilfe von Ellipsometriemessungen erhalten hat [Lange, 2000].

7.2 Flußkalibrierung mit einem Pyrometer

An dieser Stelle soll gezeigt werden, wie eine Messung des aktuellen Zellenflusses mit Hilfe eines Pyrometers bewerkstelligt werden kann. Hierfür ist die Kenntnis der Detektionswellenlänge λ_D des Pyrometers sowie der dielektrischen Konstante ε des aufzudampfenden Materials vonnöten.

Für den Fall der Transmission an einem n-Grenzflächensystem ergibt sich, wie in Abbildung 7.4 dargestellt, nach den Fresnel-Formeln (3.1) bis (3.12) eine sinusförmige Abhängigkeit

$$I_P(d) = A \cdot \sin\left(\frac{2\pi}{D}d\right) \tag{7.2}$$

der Intensität I_P des transmittierten Lichtes von der Schichtdicke d.



ABBILDUNG 7.4: Schematische Darstellung der Abhängigkeit der Intensität eines Pyrometersignals I_P von der Schichtdicke d. Die Berechnung erfolgte mit Hilfe der Fresnel-Formeln (3.1) bis (3.12).

Die Periode *D* dieser Sinusschwingung ist nach den Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12) wiederum über folgende Beziehung mit der Detektionswellenlänge λ_D des Pyrometers verknüpft:

$$\frac{D}{2} = \frac{\lambda_D}{4\sqrt{\varepsilon}} \,. \tag{7.3}$$

Unter der Annahme, daß alle Teilchen, die die jeweilige Effusionszelle verlassen,

in das Substrat eingebaut werden, ist die Flußrate des Materials M F_M gleich der Wachstumsgeschwindigkeit v_G :

$$F_{\rm M} = v_G = \frac{d}{t} . \tag{7.4}$$

In der Praxis sieht die Flußkalibrierung mit einem Pyrometer nun wie folgt aus: Der Shutter der entsprechenden Zelle, in diesem Beispiel Ga, wird geöffnet. Das Pyrometersignal wird so lange über der Zeit t aufgenommen, bis ein deutlich erkennbares Maximum und ein Minimum aufgezeichnet wurden. Nach (7.3) und (7.4) entspricht der zeitliche Abstand $t_{D/2}$ dieser beiden Punkte genau dem Wachstum einer Schicht der Dicke $\frac{\lambda_D}{4\sqrt{\varepsilon}}$. Somit ergibt sich also für die Flußrate:

$$F_{\text{GaAs}} = \frac{\lambda_D}{4t_{D/2}\sqrt{\varepsilon_{\text{GaAs}}}} \,. \tag{7.5}$$



ABBILDUNG 7.5: Aufzeichnung eines Pyrometersignals über die Zeit *t*. Das starke Rauschen des Pyrometersignals rührt von der Rotation des Probenhalters her (vgl. Kap. 4.2). Ausgewertet wird die Zeit $t_{D/2}$, mit deren Hilfe die Flußrate der Ga–Zelle nach Formel (7.5) bestimmt werden kann.

Die Abbildung 7.5 zeigt die Intensität eines Pyrometersignals (schwarz) in Abhängigkeit von der Zeit t für das Wachstum von GaAs. Aus der geglätteten Kurve (rot) können das Minimum bei $t_{min} = 185$ sec und das Maximum bei $t_{max} = 443$ sec mit einer Genauigkeit von ± 2 sec bestimmt werden. Aus (7.5) folgt nun die Flußrate³:

$$F_{\text{GaAs}} = \frac{\lambda_D}{4(t_{max} - t_{min})\sqrt{\varepsilon_{\text{GaAs}}}}$$
$$= 0,78 \pm 0,1\frac{\text{ML}}{\text{sec}}.$$

7.2.1 Experimenteller Vergleich der beiden Kalibrierungsmethoden

Um den gemessenen Wert für die Detektionswellenlänge λ_P weiter zu verifizieren, wurden darüberhinaus noch Flußmessungen mit RHEED und dem Pyrometer an einer Probe durchgeführt. Die RHEED-Messung wurde zu verschiedenen Zeitpunkten t_i (i = 1, ..., 6) durchgeführt, wobei zwischen den einzelnen Messungen der Mainshutter geschlossen wurde. Diese Methode ermöglicht eine Messung des Zellenflusses im Gleichgewichtszustand (vgl. Kap. 4.3.3). Im Anschluß an die Flußmessung mit RHEED wurde der aktuelle Zellenfluß mit Hilfe des Pyrometers bestimmt. Eine gleichzeitige Messung ist leider nicht möglich, da beim Schließen des Mainshutters nicht nur die Molekularstrahlen, sondern auch das Pyrometer "ausgeblendet" werden (vgl. Abb. 4.2 auf Seite 30). Die Ergebnisse der einzelnen Messungen können aus der nachfolgenden Tabelle 7.2 entnommen werden.

³Aufgrund der Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Konstante wird mit einem Wert von $\varepsilon_{\text{GaAs}} = 16,4836$ gerechnet, die nach Bardinal et al. bei einer Temperatur von 600°C gilt [Bardinal et al., 1995].

TABELLE 7.2: Ergebnisse der RHEED– und Pyrometermessungen an einer Probe. Zu einem Zeitpunkt $t_0 = 0$ sec wurde mit der Flußmessung des GaAs begonnen. Nachdem die RHEED–Oszillationen abgeklungen waren, wurde der Mainshutter geschlossen. Zum Zeitpunkt t_1 wurde dieser wieder geöffnet und eine weitere Flußmessung durchgeführt. Dementsprechend wurde zur Zeit t_2 verfahren. Die Messung des Aluminiumflusses wurde in gleicher Weise durchgeführt. Zur Bestimmung des Galliumflusses wurden jeweils 20 Oszillationen ausgewertet, zur Messung des Aluminiumflusses konnten jeweils 90 Oszillationen zur Berechnung verwendet werden. Im Anschluß an die RHEED–Messungen wurde zu den Zeitpunkten t_6 und t_7 eine Messung des jeweiligen Zellenflusses mit dem Pyrometer durchgeführt.

	RHEED–Messung			
Zeitpunkt	Ga–Fluß $\left(\frac{ML}{sec}\right)$	Al–Fluß $\left(\frac{ML}{sec}\right)$		
$t_0 = 0 \sec$	0,99			
$t_1 = 180 \text{sec}$	0,94			
$t_2 = 360 \text{sec}$	0,90			
$t_3 = 600 sec$		0,70		
$t_4 = 840 \text{sec}$		0,67		
$t_5 = 1080 \text{sec}$		0,66		
$t_6 = 1500 \text{sec}$	0,90			
$t_7 = 2000 \text{sec}$		0,65		

Aus den Werten in Tabelle 7.2 ist deutlich zu erkennen, daß für das Wachstum von GaAs die Shuttertransiente von größerer Bedeutung ist, als für das Wachstum von AlAs. Dies liegt zum einen darin begründet, daß bei den Flußmessungen zur Bestimmung des Aluminiumflusses das Zeitintervall von Beginn der Datenaufnahme bis zur vollständigen Ausdämpfung des RHEED–Signals um den Faktor 4,5 größer ist. Zum anderen ist auch hier der unterschiedliche Aufbau der beiden Zellen zu beachten (vgl. Seite 36). Des weiteren ist festzuhalten, daß für große Zeiten (t_3 und t_6) die Werte der Flußkalibrierung für die beiden Meßmethoden praktisch identisch sind.

7.2.2 Abschließender Vergleich der beiden Kalibrierungsmethoden

Wie in Kapitel 7.1.1 erläutert, kann mit Hilfe eines Pyrometers das Wachstum einer Schicht über eine Dauer von etwa zwei Stunden beobachtet werden. Somit kann also der Einfluß der Shuttertransiente aufgrund der langen Lebensdauer des Signals vollständig eliminiert werden. Dahingegen ist das RHEED–Signal schon nach etwa einer Minute nicht mehr vom Rauschen zu trennen. Dennoch kann auch die Flußkalibrierung mit der RHEED–Methode den Fehler, der durch die Shuttertransiente entsteht, bereinigen, allerdings besteht aufgrund der As–Desorption die Gefahr, daß ein epitaktisches Wachstum auf der Oberfläche nicht mehr möglich ist (vgl. Kap. 4.3.4.

Ist eine Stelle des Substrats zu lange dem hochenergetischen Elektronenstrahl ausgesetzt, so kann dieser Ort kontaminiert werden, so daß hier bevorzugt Punktdefekte in den Kristall eingebaut werden⁴. Das Pyrometersignal eignet sich im Gegensatz dazu hervorragend für eine *in–situ* Langzeit–Überwachung des Wachstumsprozesses. Selbst bei langen Wachstumsdauern ist eine lückenlose Aufzeichnung des Signals möglich. Das Signal ist allerdings stark verrauscht, was auf die Rotation der Probe zurückzuführen ist. Dieses Rauschen kann allerdings entweder durch eine gleitende Mittelwertbildung oder mit Hilfe einer Fourier–Analyse beseitigt werden, wie in Kapitel 7.4.1 beschrieben wird.

Aus diesen Betrachtungen kann also geschlossen werden, daß mit dem Pyrometer eine Langzeitmessung des Zellenflusses möglich ist, verbunden mit einer *in–situ* Schichtdickenmessung während des gesamten Kristallwachstums. RHEED hingegen eignet sich zur Flußkalibrierung für das Wachstum von dünnen Schichten. Darüberhinaus kann die RHEED–Methode, wie in Kapitel 4.5 dargestellt, außerordentlich wichtige Informationen über die Oberfläche des Substrats liefern.

7.3 Herstellung der Probe #836

Unter Ausnutzung der in Kapitel 6 gewonnenen Erkenntnisse und unter Einsatz des Pyrometers, mit dem die Flußkalibrierung sowie eine *in-situ* Aufzeichnung des Pyrometersignals durchgeführt wurde, wurde ein weiterer Mikroresonator hergestellt, dessen Aufbau in Tabelle 7.3 dargestellt ist. In der Mitte der Resonatorschicht wurden InAs–Quantenpunkte eingewachsen, deren Photolumineszenzsignal durch die Resonatorstruktur verstärkt werden soll. Da das Photolumineszenzsignal aufgrund von Größenfluktuationen der Quantenpunkte verbreitert ist (vgl. Seite 40), besteht ein gewisser "Spielraum" in der energetischen Lage der Resonatormode.

⁴Hierbei handelt es sich hauptsächlich um Kohlenstoffkontamination aufgrund von elektroneninduzierter Dissoziation von Kohlenwasserstoffen aus dem Restgas.

	72,3 nm	GaAs	w24
	88,5 nm	AlAs	λ24
	139,5 nm	GaAs (580°C)	
	5,0 nm	GaAs (475°C)	
	2,3 ML	InAs	
	144,5 nm	GaAs	
	88,5 nm	AlAs	v 28
	72,3 nm	GaAs	X20
	300,0 nm	GaAs	
Supergitter	2,8 nm	AlAs	v10
	2,8 nm	GaAs	X10
	GaA		

TABELLE 7.3: Aufbau der Probe #836.

Mit Hilfe der in Tabelle 7.3 schematisch dargestellten Probe soll das von den selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkt!InAs– InAs–Quantenpunkten, welche sich im Zentrum des Resonators befinden, emittierte Photolumineszenzlicht durch die Resonatorstruktur verstärkt werden. Von besonderem Interesse ist hierbei, ob sich aufgrund der imensen Überhöhung der elektrischen Feldstärke im Innern des Resonators bereits nichtlineare Effekte nachweisen lassen.

Wie in Abbildung 7.6 zu erkennen, stimmt die energetische Lage von gemessener Resonatormode recht gut mit der durch Simulationsrechnungen ermittelten Position überein. Somit kann also davon ausgegangen werden, daß die Schichtdicken der dielektrischen Spiegel sehr nahe an den Werten liegen, die mit Hilfe der Formeln (3.13) und (3.20) berechnet wurden. Daß die Güte des Resonators nicht so gut wie die des berechneten ist, kann dadurch begründet werden, daß die in Abbildung 7.6 dargestellt Messung bei Raumtemperatur durchgeführt wurde. Die Optimierung der Schichtdicken wurde dagegen für eine Temperatur von 4,2K durchgeführt. Reflexionsmessungen bei 4,2K sowie an dieser Probe durchgeführte Photolumineszenz– und Transmissionsuntersuchungen befinden sich in Kapitel 9.3. Das während des Wachstums der Probe #836 aufgezeichnete Pyrometersignal ist in Abbildung 7.7 auf Seite 79 dargestellt und wird dort weiter diskutiert.



ABBILDUNG 7.6: Reflexionsspektrum der Probe #836 (schwarz) sowie deren berechnetes Spektrum (rot). Der Inset zeigt den Bereich um die Resonatormode.

7.4 *In–situ* Monitoring des MBE–Wachstums mit einem Pyrometer

Neben der Möglichkeit, die Zellenflüsse für das MBE–Wachstum zu kalibrieren, bietet das Pyrometer noch als weitere Option die des *in–situ* Monitorings während des MBE–Wachstums. In Kapitel 7.2.2 wurde bereits erwähnt, daß die Zeitspanne, in der das Pyrometersignal noch deutlich vom Untergrund zu trennen ist, um zwei Größenordnungen über der von RHEED–Messungen liegt. Somit ist es also möglich, mit Hilfe des Pyrometers das Langzeitverhalten der Zellenflüsse zu beobachten.

Im folgenden soll daher auf diese Möglichkeit näher eingegangen werden. Anschließend wird ein weiteres Beispiel zum Monitoring für eine kompliziertere Struktur präsentiert und zuletzt werden weitere Chancen und Probleme der *insitu* Überwachung diskutiert.

7.4.1 Langzeitverhalten des Ga–Flusses aufgezeichnet mit einem Pyrometer

Die Abbildung 7.7 zeigt das Pyrometersignal einer reinen GaAs–Schicht, die auf ein GaAs/AlAs Supergitter gewachsen wurde. Wie bereits auf Seite 69 erwähnt, ist es möglich, das Signal einer wachsenden Schicht über einen Zeitraum von etwa eineinhalb Stunden aufzuzeichnen.



ABBILDUNG 7.7: Pyrometersignal sowie deren fouriergeglättete Kurve für das Wachstum einer reinen GaAs–Schicht.

Deutlich zu erkennen ist das schlechte Signal-zu-Rausch Verhältnis. Begründen läßt sich das starke Rauschen des Signals durch die Tatsache, daß das Substrat während des Wachstums um die Mittelachse senkrecht zur Oberfläche rotiert wird (vgl. Kap. 4.2). Da diese Rotation nicht exakt in der Ebene senkrecht zur Detektionsrichtung verläuft, kann nicht jederzeit das Maximum des Signals vom Pyrometer detektiert werden. Somit wird dem Signal zusätzlich eine hochfrequente Schwingung aufgeprägt, deren Frequenz durch die Winkelgeschwindigkeit der rotierenden Probe gegeben ist.

Um das Rauschen des Pyrometersignals zu unterdrücken, bietet es sich an, eine

Fourier–Analyse durchzuführen. Dabei wird in einem ersten Schritt das gesamte Meßsignal fouriertransformiert. Wie in Abbildung 7.7 zu sehen, ist die Schwingung, welche auf die Rotation der Probe zurückzuführen ist, sehr viel hochfrequenter als die Oszillationen, die aus der Änderung der Schichtdicke stammen. Schneidet man den hochfrequenten Teil aus dem fouriertransformierten Meßsignal heraus und führt eine Fourierrücktransformation durch, so erhält man ein nahezu perfekt geglättetes Signal, welches in Abbildung 7.7 als rote Kurve dargestellt ist.

Mit Hilfe des aufgezeichneten Pyrometersignals ist es zudem möglich, Aussagen über das Langzeitverhalten der Effusionszellen zu machen. Wie in Abbildung 7.7 zu erkennen, ist eine Bestimmung des Zellenflusses über eine Dauer von etwa eineinhalb Stunden möglich. Hierzu wurden die Maxima und Minima der Pyrometeroszillationen aus der geglätteten Kurve (rot) in Abbildung 7.7 entnommen und mit Hilfe der Formel (7.5) ausgewertet. Die Ergebnisse dieser Flußmessungen sind in Tabelle 7.4 dargestellt.

Minimum (sec)	Maximum (sec)	Differenz (sec)	Fluß (ML/sec)
83			
	385	302	0,73
697,5		312,5	0,71
	1003,5	306	0,72
1313		309,5	0,72
	1629,5	316,5	0,70
1945,5		316	0,70
	2254,5	309	0,72
2567,5		313	0,71
	2880	312,5	0,71
3198		318	0,70
	3510,5	312,5	0,71
3822		311,5	0,71
	4131,5	309,5	0,72
4443		311,5	0,71
	4760	317	0,70

TABELLE 7.4: Aus Abbildung 7.7 entnommene Positionen der Maxima und Minima und daraus berechnete Flußgeschwindigkeiten.

Die Daten zeigen deutlich, daß der Zellenfluß über die gesamte Wachstumsdauer nahezu unverändert bleibt. Der leicht erhöhte Wert zu Beginn der Messung kann nicht mehr durch die Shuttertransiente erklärt werden, das Gleichgewicht im Zellenfluß sollte sich bereits eingestellt haben. Dennoch kann diese Messung eindeutig belegen, daß der Zellenfluß über einen großen Zeitraum konstant bleibt.

7.4.2 Pyrometersignal für das Wachstum eines Mikroresonators

Auch das Wachstum komplizierterer Strukturen läßt sich mit dem Pyrometer aufzeichnen. Die Abbildung 7.8 zeigt das Pyrometersignal, das während des Wachstums eines Mikroresonators aufgenommen wurde.



ABBILDUNG 7.8: Pyrometersignal für das Wachstum eines Mikroresonators.

Das Wachstum beginnt mit einem AlAs/GaAs–Übergitter, gefolgt von einem GaAs–Spacer. Anschließend wurden die unteren Spiegelpaare aufgewachsen, daraufhin die Cavity und schließlich die oberen Spiegelpaare.

Während des Wachstums der Spiegelpaare ist zu beobachten, daß das Pyrometersignal an der Grenzschicht zwischen zwei aufeinanderfolgenden Schichten um einen gewissen Betrag springt. Dieser Effekt beruht auf der Tatsache, daß sobald ein Zellenshutter geöffnet wird, nicht nur Molekularstrahlen, sondern auch Wärmestrahlen die Effusionszelle verlassen. Diese Wärmestrahlen werden an der Substratoberfläche reflektiert und schließlich vom Pyrometer als zusätzliche Wärme registriert.

7.4.3 *In–situ* Kontrolle des MBE–Wachstums mit Hilfe des Pyrometers

Durch den Einsatz des Pyrometers eröffnet sich weiterhin die Möglichkeit, die Schichtdicke während des Wachstums zu überwachen. Da die Wärmestrahlung des Pyrometers ebenfalls den Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12) genügt, kann die gegenwärtige Schichtdicke aus dem Pyrometersignal berechnet werden. Mit den bisherigen Möglichkeiten war man lediglich in der Lage, diese Schichtdicken vor dem Wachstum indirekt über die Zellentemperaturen bzw. über die Shutteröffnungszeiten zu regulieren.

Somit wäre man imstande, die Qualität der Proben durch eine gezielte, direkte Steuerung jeder einzelnen Schicht weiter zu verbessern. Ausgehend von einem bestimmten Probendesign müßte das Spektrum, welches die Transmission von Wärmestrahlung der Detektionswellenlänge λ_D durch die Probe beschreibt, mit Hilfe der Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12) berechnet werden. Während des Wachstums könnte dann das vom Pyrometer aufgezeichnete Spektrum mit dem simulierten verglichen werden. Hierdurch ließe sich der Zeitpunkt, an dem eine Schicht exakt die gewünschte Dicke erreicht hat, genau bestimmen. Durch eine Kopplung an die MBE–Steuerungssoftware könnten dann entsprechende Signale an diese gesendet werden, um ein Öffnen bzw. Schließen der jeweiligen Shutter zu bewirken.

Die Umsetzung dieses Ansatzes ist allerdings mit der Lösung folgender Probleme verknüpft:

- 1) Eine Kopplung an die MBE-Steuerungssoftware ist derzeit noch nicht möglich,
- 2) Das starke Rauschen des Pyrometersignals erschwert den Vergleich mit dem simulierten Signal,
- Die Diskontinuität des Pyrometersignals beim Öffnen bzw. Schließen eines Shutters läßt sich quantitativ schwer erfassen.

Kopplung an die MBE–Steuerungssoftware

Die MBE–Steuerungssoftware ist gegenwärtig nicht in der Lage, externe Signale zu verarbeiten. Derzeit wird allerdings an einer neuen Software gearbeitet, die eine mühelose Einbindung externer Routinen ermöglicht.

Signal-zu-Rausch Verhältnis des Pyrometersignals

Aufgrund des schlechten Signal-zu-Rausch Verhältnisses des Pyrometersignals ist eine exakte Steuerung dünner Schichten (kleiner 10nm) kritisch. Da zur Glättung des Pyrometersignals eine bestimmte Anzahl an Meßdaten aufgenommen werden muß, besitzt die Pyrometermethode eine gewisse Totzeit, in der eine Steuerung des Wachstumsprozesses nicht möglich ist.

Diskontinuitäten im Pyrometersignal

Wie in Kapitel 7.4.2 bereits erwähnt, springt das Pyrometersignal beim Betätigen eines Shutters um einen gewissen Betrag. Diese Sprünge sind aufgrund verschiedener Mechanismen quantitativ nur schwer zu erfassen. Zum einen beeinflußt die Shuttertransiente den Betrag des Temperaturunterschieds. Dabei können sich durch unterschiedlich lange Wartezeiten bis zum Öffnen eines Shutters verschiedene Shuttertransienten ergeben. Zudem ist die absolute Größe des Temperatursprungs auch davon abhängig, welche Effusionszellen geöffnet sind. Schließlich ist auch die Rotation des Wafers, welche das Signal stark verrauscht, von entscheidender Bedeutung. Dabei kann die Amplitude des Rauschens in etwa halb so groß wie die des Signals sein. Im allgemeinen kann nicht davon ausgegangen werden, daß sich der Wafer stets an derselben Stelle befindet, wenn ein Shutter betätigt wird. Daher können sich, je nach Position des Wafers zum Zeitpunkt des Öffnens bzw. Schließens eines Shutters, signifikante Unterschiede in der Größe des Sprunges ergeben.

Kapitel 8

Untersuchungen zum MBE–Wachstum von InAs–Quantenpunkten

Nachdem im vorigen Kapitel das Wachstum von dielektrischen Schichten im Mittelpunkt des Interesses stand, sollen hier die Untersuchungen und Überlegungen, welche das Wachstums von InAs–Quantenpunkten betreffen, vorgestellt werden. Dabei soll das Hauptaugenmerk auf einer Verbesserung der optischen Eigenschaften der selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkte liegen. Hierbei soll insbesondere die Photolumineszenzausbeute maximiert sowie eine hohe Reproduzierbarkeit gewährleistet werden.

8.1 Arbeitsschritte zur Herstellung von InAs-Quantenpunkten

Da sich mit Hilfe der Wachstumsparameter, die beim Wachstum von InAs-Quantenpunkten eine Rolle spielen, die Struktur der nulldimensionalen Quantenpunkte wesentlich beeinflussen läßt, kann das selbstorganisierte Inselwachstum für verschiedene Anwendungen optimiert werden. Dabei können, wie auf Seite 41 beschrieben, folgende Größen reguliert werden:

- 1) Die Menge an GaAs, die in die InAs-Quantenpunkte diffundiert, indirekt über die Substrattemperatur, aber auch direkt für den Fall, wenn InGaAs deponiert wird,
- Die Dichte der Quantenpunkte pro Flächeneinheit über die Substrattemperatur, die Wachstumsgeschwindigkeit und den As-Druck,
- Die Größenverteilung der InAs–Quantenpunkte über die Menge an deponiertem InAs und die Substrattemperatur.

4) Die Größe der Quantenpunkte über die Menge an deponiertem InAs, die Substrattemperatur und den As–Druck.

Die Schwierigkeit liegt nun darin, die Wachstumsparameter für unterschiedliche Anwendungen zu optimieren, wobei diese wiederum verschiedene Anforderungen an die Struktur stellen. Die in der Hamburger MBE–Anlage gewachsenen InAs–Quantenpunkte werden derzeit mit Hilfe der folgenden Methoden untersucht:

Röntgenbeugung zur Bestimmung der strukturellen Eigenschaften

Hierbei werden Quantenpunkte auf der Substratoberfläche deponiert, ohne anschließend mit GaAs überwachsen zu werden. Die Untersuchung wird mit Synchrotonstrahlung unter streifendem Einfall durchgeführt. Aus den sich ergebenden Beugungsmustern kann auf die Oberflächenstruktur der InAs–Quantenpunkte geschlossen werden [Schmidbauer et al., 1998], [Zhang et al., 2000].

DLTS-Messungen

Für DLTS¹–Messungen wird das Substrat so lange erhitzt, bis die thermische Aktivierungsenergie ausreicht, um Elektronen aus den InAs– Quantenpunkten zu lösen. Diese freien Ladungsträger können über eine angelegte Spannung als zusätzlicher Strom nachgewiesen werden [Lang, 1974], [Kapteyn et al., 1999].

Kapazitätsspektroskopie zur Untersuchung der elektronischen Struktur

Zur Untersuchung der elektronischen Struktur werden die InAs-Quantenpunkte in eine sogenannte MIS^2 –Struktur (vgl. Abb. 8.3 auf Seite 92) eingewachsen, die ein Laden bzw. Entladen der Quantenpunkte mit Elektronen über ein Backgate ermöglicht. [Drexler et al., 1994].

AFM–Messungen zur Bestimmung der Dichte und Größe der Quantenpunkte

Bei AFM³–Messungen wird eine Spitze, deren Ende im Idealfall aus einem einzelnen Atom besteht, in äußerst geringem Abstand über die Probenoberfläche bewegt. Aufgrund des kleinen Abstandes von der Spitze zur Probe können die atomaren Anziehungskräfte zwischen den beiden Systemen gemessen werden. Scannt man die Substratoberfläche systemtisch ab, so erhält man also ein direktes Abbild der Oberflächenmorphologie [Moison et al., 1994], [Leonard et al., 1994a], [Solomon et al., 1995].

¹Abk. für engl. Deep–Level Transient Spectroscopy.

²Engl. Abk. für Metal Insulator Semiconductor.

³Abk. für engl. Atomic Force Microscopy.

STM–Messungen zur Bestimmung der Dichte und Größe der Quantenpunkte

Die Oberfläche von InAs–Quantenpunkten kann auch mit Hilfe von STM untersucht werden. Das Meßprinzip ist dem der AFM–Untersuchungen ähnlich. Bei STM–Messungen werden Tunnelströme zwischen einer Metallspitze und der Substratoberfläche gemessen, so daß auch hier ein geringer Abstand zwischen Spitze und Probe notwendig ist. Insbesondere ist für STM–Messungen eine kleine Dichte der InAs–Quantenpunkte vonnöten, um Streueffekte von angrenzenden Inseln zu minimieren [Ramachandran et al., 1997], [Joyce et al., 1997].

Photolumineszenzuntersuchungen zur Bestimmung der Energieniveaus innerhalb der Quantenpunkte

Mit Hilfe von Photolumineszenzuntersuchungen kann direkt auf die Größe sowie die Größenverteilung der InAs–Quantenpunkte geschlossen werden. Da die energetische Lage des Photolumineszenzsignals ein Maß für den energetischen Abstand zwischen dem höchsten Lochzustand im Valenzband und dem tiefsten Elektronenzustand im Leitungsband ist⁴, kann mit Hilfe der auf Seite 10 dargestellten Überlegungen unter der Berücksichtigung der Exzitonenbindungsenergie (vgl. Kap. 2.3.2) die Größe der InAs–Quantenpunkte abgeschätzt werden. Die Größenverteilung der selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkte läßt sich aus der Breite des Photolumineszenzsignals ablesen. Im Spot des anregenden Laserlichtes werden sich bei einer Photolumineszenzuntersuchung sehr viele Quantenpunkte⁵ befinden, deren Größe einer Normalverteilung genügen wird. Diese Gaußverteilung spiegelt sich im gemessenen Spektrum wieder, so daß dessen Halbwertsbreite als ein Maß für die Größenverteilung aufgefaßt werden kann⁶.

Im Rahmen dieser Arbeit steht die Integration von InAs–Quantenpunkten in einen Mikroresonator im Mittelpunkt des Interesses. Daher soll im folgenden insbesondere näher auf Photolumineszenzuntersuchungen an diesen Strukturen eingegangen werden. Um eine optimale Abstimmung des Photolumineszenzsignals mit der Resonatormode zu erreichen, sollte das MBE–Wachstum der InAs– Quantenpunkte reproduzierbar sein. Die Quantenpunkte, welche in das Zentrum

⁴Hierbei ist natürlich noch der Einfluß des Exzitons zu beachten.

⁵In der Größenordnung 10⁶.

⁶Neben der Größenverteilung ist auch die endliche Lebensdauer der Exzitonen Ursache für die statistische Verbreiterung des Photolumineszenzsignals. Dieser Effekt ist bei für Photolumineszenzuntersuchungen typischen Temperaturen von 4K jedoch gegenüber den Schwankungen durch Größenfluktuationen zu vernachlässigen.

des Resonators eingewachsen werden, sollten zudem folgende Eigenschaften besitzen:

Homogene Größe

Um ein möglichst monochromatisches Signal zu erhalten, sollten die selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkte eine möglichst homogene Größenverteilung besitzen. Dies ist, wie auf Seite 41 dargestellt, vor allem für große, kohärente Inseln gegeben.

Hohe Dichte an Quantenpunkten pro Flächeneinheit

Eine hohe Dichte der Quantenpunkte pro Flächeneinheit trägt ebenso wie die homogene Größenverteilung zu einem stark ausgeprägten, schmalen Photolumineszenzsignal bei. Der entscheidende Parameter, die Anzahl der Quantenpunkte pro Flächeneinheit zu beeinflussen, ist dabei die Substrattemperatur (vgl. Seite 41).

Wenig Punktdefekte

Sobald Punktdefekte in die InAs–Quantenpunkte eingewachsen werden, stehen den angeregten Elektronen im Leitungsband weitere Rekombinationskanäle in das Valenzband zur Verfügung. Somit könnte die Rekombination von Elektron und Loch über sogenannte dunkle Kanäle, also ohne Aussendung eines Photons, vonstatten gehen. Hierdurch würde die Quantenausbeute drastisch verschlechtert. Punktdefekte, insbesondere Versetzungen, werden, wie auf Seite 41 bereits erwähnt, ab einer bestimmten Menge an deponiertem InAs in die Quantenpunkte eingebaut.

Das Wachstum der InAs–Quantenpunkte muß also so reguliert werden, daß die Strukturen groß genug werden, damit eine möglichst homogene Größenverteilung vorliegt. Andererseits dürfen die Wachstumsinseln nicht zu groß werden, da ansonsten Versetzungen in den Kristall eingebaut würden. Gleichzeitig muß dabei die Substrattemperatur so angepaßt werden, daß keine der beiden eben genannten Eigenschaften verloren geht, zusätzlich aber eine möglichst hohe Dichte an Quantenpunkten pro Flächeneinheit erzielt wird.

Für einige Anwendungen, beispielsweise Quantenpunkt–Laser, wäre es zudem wünschenswert, die energetische Lage des Photolumineszenzsignals zu kleineren Energien zu verschieben. Dies ist vor allem über eine Vergrößerung der Quantenpunktgröße erreichbar. Um den Einbau von Versetzungen in diese Struktur zu vermeiden, verfolgten Tatebayashi et al. den Ansatz, die InAs– Quantenpunkte zwischen zwei verspannungsreduzierende InGaAs–Schichten einzubauen [Tatebayashi et al., 2001]. Hierdurch werden die Verspannungen, welche maßgeblich für den Einbau von Versetzungen in den Kristall verantwortlich sind, innerhalb des Quantenpunktes abgebaut. Dadurch kann die Ausdehnung der In(Ga)As–Quantenpunkte drastisch vergrößert werden und Tatebayashi et al. zeigten, daß es mit Hilfe solcher Strukturen möglich ist, die Wellenlänge des bei Raumtemperatur emittierten Lumineszenz–Lichtes auf $1,5\mu$ m zu verschieben.

8.2 Photolumineszenzuntersuchungen an InAs-Quantenpunkten

Bei der Interpretation von Photolumineszenzdaten sind nicht nur die Eigenschaften des emittierten Lichtes von elementarer Bedeutung, sondern auch die Parameter des anregenden Lichtes. Daher soll an dieser Stelle zuerst auf diese Größen eingegangen werden, bevor dann im Anschluß die Photolumineszenzspektren von verschiedenen Quantenpunktproben präsentiert werden.

8.2.1 Intensitätsdichte und Laserspotdurchmesser des anregenden Lichtes

Der für die folgenden Untersuchungen verwendete und in Kapitel 5.2.2 beschriebene Anregungs–Laser ist mit einem internen Meßgerät ausgestattet, welches die Ausgangsleistung I_A mißt. In einem ersten Schritt wurde die Anzeige des internen Meßgerätes mit der eines zweiten, externen Meßgerätes⁷ verglichen. Dabei stellte sich heraus, daß besonders für den unteren Leistungsbereich deutliche Unterschiede zwischen den beiden Meßgeräten konstatiert werden können (vgl. Abb. 8.1).

Um Fehler bei der Bestimmung von Anregungsdichten zu vermeiden, wurde daher generell mit einer Ausgangsleistung von mehr als 250mW gearbeitet. Diese Handhabung bietet zudem den Vorteil, daß nach Herstellerangaben ein dauerhaft stabiler Betrieb des Lasers erst ab einer Stromstärke von 20A (entspricht 252,5mW) garantiert wird. Geringere Laserleistungen können realisiert werden, indem Abschwächer in den Strahlengang eingebracht werden.

⁷Hersteller: Coherent, Modell: Fieldmaster.



ABBILDUNG 8.1: Vergleich des internen Meßgerätes mit einem externen.

Die Intensität am Probenort wurde ebenfalls mit dem externen Meßgerät vermessen. Diese Messungen ergaben eine Abschwächung der Laserleistung durch den Umlenkspiegel, die Sammellinse, das Prisma sowie die drei Fenster des Kryostaten⁸ um den Faktor⁹ 3,3.

Das Ergebnis zur Bestimmung der Laserspotgröße ist in Abbildung 8.2 dargestellt. Wenn von einem gaußförmigen Strahlprofil ausgegangen wird, kann aus den Meßdaten auf einen Spotdurchmesser von $d_S = 0,12$ mm geschlossen werden.

⁸Diese Messung wurde mit Hilfe eines Ersatz–Fenstersatzes und nicht mit den tatsächlich in den Kryostaten eingebauten Fenstern vorgenommen.

⁹Der Faktor wurde bei der Integration von Abschwächern in den Strahlengang neu vermessen und entsprechend angepaßt.



ABBILDUNG 8.2: Bestimmung der Laserspotgröße mit Hilfe einer Rasierklinge. Die Messung wurde bei einer Wellenlänge von 514,5nm und einer Intensität von 10mW durchgeführt.

Die Intensitätsdichte ϱ_I am Probenort ergibt sich also zu

$$\varrho_I = \frac{4I_A}{\pi d_S^2} \,. \tag{8.1}$$

8.2.2 Aufbau der untersuchten Proben

Für die Interpretation von Photolumineszenzspektren ist auch die Schichtenfolge innerhalb der Probe von Bedeutung. Daher sollen an dieser Stelle der Aufbau der Proben beschrieben werden, an denen Photolumineszenzuntersuchungen durchgeführt wurden.



ABBILDUNG 8.3: Aufbau der untersuchten Proben. Dargestellt sind Quantenpunkte in GaAs (a), und in einer MIS–Struktur (b).

8.2.3 Photolumineszenzspektren von InAs-Quantenpunkten in GaAs

Wie bereits in Kapitel 5.1 beschrieben, kann mit Hilfe der Photolumineszenzspektroskopie die Größe der Bandlücke eines Halbleiters bestimmt werden. Im vorliegenden Fall sind die beiden Materialien GaAs und InAs in der Probe vorhanden. Man würde also erwarten, daß bei einer geeignet gewählten Anregungsenergie¹⁰ zwei Peaks im resultierenden Photolumineszenzspektrum zu erkennen sind. In den hier untersuchten Proben findet sich das mittels MBE deponierte InAs zu dreidimensionalen Wachstumsinseln zusammen, deren Abmessungen so klein sind, daß die auf Seite 10 beschriebenen Quantisierungseffekte nicht mehr ver-

¹⁰Die Anregungsenergie sollte hierbei höher sein als die größte Bandlücke.

nachlässigt werden können. Weiterhin bilden sich in den selbstorganisiert gewachsenen InAs–Quantenpunkten diskrete Energieniveaus, die analog zur Atomphysik mit s–, p– und d–Schale bezeichnet werden. Wählt man die Intensitätsdichte des anregenden Lichts groß genug, so können, wie auf Seite 48 beschrieben, auch Übergänge aus diesen angeregten Niveaus beobachtet werden. Um sicherzustellen, daß bei den durchgeführten Untersuchungen eine Auflösung zweier angeregter Energieniveaus möglich ist, wurden die Messungen bei einer Temperatur von 4,2K durchgeführt. Hier ist die spektrale Auflösung, die sich aus dem Produkt der Boltzmannkonstanten k_B und der Temperatur T ergibt

$$k_B \cdot T = 0,36 \,\mathrm{meV},\tag{8.2}$$

also klein genug, um die Energieabstände zwischen zwei benachbarten Niveaus, welche im vorliegenden bei etwa 40meV bis 70meV liegen, auflösen zu können.



ABBILDUNG 8.4: Gemessenes Photolumineszenzspektrum von selbstorganisiert gewachsenen InAs–Quantenpunkten in GaAs (schwarz). Die drei roten Kurven wurden aus Gaußfits der einzelnen Peaks gewonnen, die Summe der drei ergibt das gemessene Signal. Der Inset zeigt das Photolumineszenzsignal der Wetting Layer.

In Abbildung 8.4 ist ein Photolumineszenzspektrum von selbstorganisiert gewachsenen InAs-Quantenpunkten in GaAs gezeigt. Zu erkennen sind drei Photolumineszenzpeaks der InAs–Quantenpunkte, die Rekombination des Grunzustandes (bei 1082meV) sowie des ersten (bei 1155meV) und zweiten (bei 1224meV) angeregten Zustandes. Der Peak bei 1514meV stammt aus dem GaAs–Volumenmaterial und entspricht, wenn man den Einfluß des Exzitons berücksichtigt, in guter Näherung dem in Tabelle 2.1 auf Seite 8 aufgeführten Wert. Der Inset in Abbildung 8.4 zeigt das Photolumineszenzsignal der auf Seite 39 beschriebenen Wetting Layer, welche als ein Quantentopf der Dicke einer Monolage aufgefaßt werden kann. Das Photolumineszenzsignal dieses Quantentopfes ist schawach ausgeprägt, was daran liegen könnte, daß bei der Bildung der dreidimensionalen InAs–Wachstumsinseln Material aus der Wetting Layer auf die entstehenden Quantenpunkten umgelagert wird (vgl. Seite 40).

Zusätzlich sind in Abbildung 8.4 die Gaußfits der einzelnen Photolumineszenzpeaks eingezeichnet. Die Summe der drei Kurven ergibt das gemessene Signal. Bei der im folgenden als Halbwertsbreite der Photolumineszenzpeaks bezeichneten Größe handelt es sich um die Breite der genäherten Gaußkurve an den jeweiligen Peak.

Im folgenden Kapitel soll nun erläutert werden, welche Informationen aus Photolumineszenzuntersuchungen an selbstorganisiert gewachsenen InAs– Quantenpunkten gewonnen werden können.

8.2.4 Optimierung des Wachstumsprozesses mit Hilfe von Photolumineszenzuntersuchungen

Wie bei der Optimierung des Wachstumsprozesses für die dielektrischen Spiegel wurde auch das MBE–Wachstum der selbstorganisiert gewachsenen InAs– Quantenpunkte optimiert. Hierfür wurden die Wachstumsparameter Substrattemperatur und In–Bedeckung systematisch variiert, um eine optimale Ausbeute an Photolumineszenzlicht bei hoher Reproduzierbarkeit zu erhalten. Eine verläßliche Variation des As–Druckes wurde erst durch die Integration einer Valved–Cracker Zelle in die MBE–Anlage zum Ende dieser Arbeit möglich.

Die Abbildung 8.5 zeigt exemplarisch Stationen auf dem Weg zur Optimierung des MBE–Wachstums von InAs–Quantenpunkten.

An den Photolumineszenzkurven ist deutlich zu erkennen, daß es im Laufe des Optimierungsprozesses gelang, die Quantenausbeute zu erhöhen. Diese Verbesserung ist auf eine homogenere Größenverteilung der InAs–Quantenpunkte zurückzuführen, die sich unmittelbar aus der Halbwertsbreite des Grundzustandpeaks ergibt. Die Werte für die Halbwertsbreiten sind in Tabelle 8.1 verzeichnet. Des weiteren ist zu bemerken, daß die Größe der Quantenpunkte im Laufe des Optimierungsprozesses vergrößert werden konnte. Dies kann unmittelbar aus der kleiner werdenden energetischen Lage des Grundzustandpeaks abgelesen



ABBILDUNG 8.5: Stationen bei der Optimierung des Wachstumsprozesses. Dargestellt sind die Proben #580 (schwarz), #70(rot), #816 (grün) und #939 (blau). Die Wachstumsparameter sind in Tabelle 8.1 aufgeführt. Die Proben wurden jeweils mit einer Intensitätsdichte von $\varrho_I = 4690 \frac{W}{cm^2}$ bei einer Wellenlänge von 514,5nm angeregt.

werden. Anhand der Messungen und der in Tabelle 8.1 aufgeführten Werte kann geschlossen werden, daß die Kombination von kleinen Wachstumsgeschwindigkeiten und hohen Substrattemperaturen große InAs–Quantenpunkte mit homogener Größenverteilung und hoher Quantenausbeute ergibt (vgl. Kap. 4.4.2 auf Seite 41).

Des weiteren ist in Abbildung 8.5 zu erkennen, daß bei den Proben #701, #816 und #915 neben dem Photolumineszenzpeak, der sich aus der Rekombination des Grundzustandes ergibt, noch weitere Peaks beobachtet wurden. Diese Peaks stammen wiederum aus der Rekombination von angeregten Zuständen (vgl. Seite 48 und Seite 92).

Parameter	#580	#701	#816	#939
In–Bedeckung (ML)	2,1	2,3	1,8	2,5
Substrattemperatur (°C)	450	450	450	495
In–Fluß $\left(\frac{ML}{sec}\right)$	0,11	0,10	0,04	0,04
As–Druck (Torr.)	—	_	10^{-5}	10^{-5}
Wachstumszyklen	1	1	15	1
Peakposition (meV)	1331,4	1126,0	1094,9	1082,3
Halbwertsbreite (meV)	60,2	117,7	27,1	38,1
Quantenpunkthöhe (nm)	3,3	5,7	6,4	6,7
Quantenpunktbreite (nm)	9,3	13,9	15,2	15,8

TABELLE 8.1: Wachstumsparameter der Proben #580, #701, #816 und #939. Bei der aufgeführten Peakposition handelt es sich um die energetische Lage der Grundzustandsrekombination. Die Halbwertsbreite dieses Peaks wurde mit Hilfe eines Gaußfits bestimmt.

Bei Wachstum der Proben #816 und #939 war es mit Hilfe der Valved–Cracker Zelle möglich, den As–Druck zuverlässig zu bestimmen und konstant zu halten. Eine systematische Untersuchung der Abhängigkeit des Photolumineszenzsignals von den Wachstumsparametern Substrattemperatur und In–Bedeckung wurde mit Hilfe einer Serie von neun Proben untersucht. Die Photolumineszenzspektren dieser Proben sind in den Abbildungen 8.6 bis 8.8 dargestellt, die Wachstumsparameter können aus der Tabelle 8.2 entnommen werden.

TABELLE 8.2: Wachstumsparameter der Proben #907, #908, #909, #913, #914, #915, #917, #918, #919.

	In-Bedek-	Substrattem-	In–Fluß	As–Druck	Wachstumszyk-
	kung (ML)	peratur (°C)	$\left(\frac{\mathrm{ML}}{\mathrm{sec}}\right)$	(Torr.)	len (Anzahl)
#907	2,1	495	0,04	10^{-5}	1
#908	2,3	495	0,04	10^{-5}	1
#909	2,5	495	0,04	10^{-5}	1
#913	2,7	490	0,04	10^{-5}	1
#914	2,5	495	0,04	10^{-5}	1
#915	2,7	500	0,04	10^{-5}	1
#917	2,52	495	0,04	10^{-5}	10
#918	2,52	500	0,04	10^{-5}	10
#919	2,52	505	0,04	10^{-5}	10
Anhand dieser Probenserie wurde versucht, die in auf Seite 41 vorgestellte Theorie zum Einfluß von Wachstumsparametern beim MBE–Wachstum von InAs– Quantenpunkten auf deren Eigenschaften zu verfizieren. Hierfür wurden jeweils im Zentrum des Wafers Photolumineszenzuntersuchungen durchgeführt.

Die neun Proben wurden in einem Zeitraum von elf Tagen hergestellt. Dabei wurden jeweils drei Proben pro Tag unter denselben Wachstumsbedingungen gewachsen. Auf der Seite 64 wurde bereits erwähnt, daß sich die Wachstumsbedingungen durch Ab– und Aufheizen der Effusionszellen sowie des Manipulators gravierend geändert haben können. Die Wachstumstemperaturen wurden mit Hilfe der Oxiddesorptionsmethode¹¹ bestimmt und können daher nur mit einer Genauigkeit von $\pm 5^{\circ}$ C angegeben werden. Eine exakte Kenntnis der tatsächlichen Substrattemperatur ist zweifellos vonnöten, da diese die Diffusionsprozesse auf der Probenoberfläche entscheidend bestimmt (vgl. Seite 39). Aus diesen Gründen werden im folgenden vornehmlich die jeweils an einem Tag produzierten Proben verglichen.

AUSWERTUNG DER PHOTOLUMINESZENZSPEKTREN

Um Aussagen über die Qualität und die Größe der selbstorganisiert gewachsenen InAs-Quantenpunkte zu gewinnen, wurden folgende Parameter der gemessenen Photolumineszenzspektren ausgewertet:

- 1) Die energetische Position der Rekombination in den Grundzustand,
- 2) die Halbwertsbreite dieses Peaks mit Hilfe eines Gaußfits,
- 3) die Höhe dieses Peaks,
- die energetische Position der Rekombination des ersten angeregten Zustandes.

Mit Hilfe des Parameters 1) wurde unter Zuhilfenahme der Formeln (2.6) bis (2.14) die Größe der Quantenpunkte näherungsweise bestimmt. Dabei wurde auch der Einfluß des Exzitons berücksichtigt. Hierbei wurde davon ausgegangen, daß die Quantenpunkte sehr viel breiter als hoch sind, was aufgrund von AFM–Messungen eine gerechtfertigte Annahme ist (vgl. Abb. 8.10 auf Seite 105). Daher wurde die Exzitonenbindungsenergie in erster Näherung mit

¹¹Um die Oberfläche der GaAs–Wafer vor Transportschäden zu schützen, werden diese mit einer Oxidschicht "versiegelt". Diese Schicht kann bei einer Temperatur von 580°C wieder von der Oberfläche verdampft werden. Beobachtet man die RHEED–Beugungsreflexe in Abhängigkeit der Substrattemperatur, so sind ab einer bestimmten Temperatur, der Oxiddesorptionstemperatur, die für eine glatte GaAs–Oberfläche typischen Oberflächenrekonstruktionen zu erkennen.

Hilfe der Formel (2.19), die für zweidimensionale Systeme Gültigkeit besitzt, berücksichtigt. Da eine geschlossene Lösung der Formeln (2.6) bis (2.14) nicht existiert, wurde vom Autor ein Computerprogramm erstellt, welches die Berechnung der Quantenpunktgröße mittels einer Intervallschachtelung vornimmt. Der Gaußfit zur Bestimmung der Halbwertsbreite des Peaks, welche als Maß für die Größenverteilung angesehen werden kann, wurde mit dem Programm Microcal Origin 6.0 durchgeführt. Die Peakhöhe, welche die erzielte Quantenausbeute widerspiegelt, wurde direkt aus den gemessenen Spektren abgelesen. Die Bestimmung des Parameters 4) diente vornehmlich zum Vergleich mit Ergebnissen aus der Kapazitätsspektroskopie. Wie bereits in Kapitel 8.1 auf Seite 86 erwähnt, können mit Hilfe der Kapazitätsspektroskopie der energetische Abstand zwischen der s– und p–Schale für Elektronen bestimmt werden. Vergleicht man diese Daten mit denen, welche aus Photolumineszenzuntersuchungen gewonnen wurden, so läßt sich auf den energetischen Abstand der s– und p–Schale für Löcher schließen (vgl. Kap. 8.3).

ZYKLUS 1: PROBEN #907, #908 UND #909

Die drei Proben #907, #908 und #909 wurden bei derselben Substrattemperatur $T_S = 495^{\circ}$ C und zunehmender Menge an deponiertem InAs hergestellt (vgl. Tab. 8.3).

Probe	#907	#908	#909
Bedeckung Θ (ML)	2,1	2,3	2,5
Substrattemperatur T_S (°C)	495	495	495
Peakposition (meV)	1133,4	1096,5	1099,4
Halbwertsbreite (meV)	34,3	32,7	35,1
Peakhöhe (bel. Einh.)	44,79	19,24	16,97
Peakdifferenz (meV)	59,9	64,5	60,4
Quantenpunkthöhe (nm)	5,6	6,3	6,3
Quantenpunktbreite (nm)	13,6	15,1	15,0

TABELLE 8.3: Aus den Photolumineszenzuntersuchungen gewonnene Daten für die Proben #907, #908 und #909.

Da mit ansteigender Bedeckung Θ die Inselgröße zunimmt (vgl. Kap. 4.4.2 auf Seite 41), sollte die energetische Lage des Photolumineszenzpeaks kontinuierlich kleiner werden. Das Intermixing sollte für die drei Proben in etwa gleich groß ausfallen, da die Substrattemperatur jeweils dieselbe war. Zudem sollte die Höhe des Intensitätspeaks, welche als Maß für die Dichte an Quantenpunkten pro Flächeneinheit angesehen werden kann, mit zunehmender Bedeckung abnehmen. Mit zunehmender Inselgröße nimmt das Confinement in den Quantenpunkten ab. Daher sollte bei ansteigender Quantenpunktgröße der energetische Abstand zwischen der Rekombination in den Grundzustand und der Rekombination aus dem ersten angeregten Zustand kleiner werden.

Die in Tabelle 8.3 dargestellten Daten wurden nach der auf Seite 97 beschriebenen Methode aus den in Abbildung 8.6 gezeigten Spektren gewonnen. In dieser Abbildung sind die gemessenen Photolumineszenzspektren der Proben #907, #908 und #909 dargestellt.



ABBILDUNG 8.6: Photolumineszenzspektren der Proben #907 (schwarz), #908 (rot) und #909 (blau). Die Proben wurden jeweils mit einer Intensitätsdichte von $\rho_I = 4690 \frac{W}{cm^2}$ bei einer Wellenlänge von 514,5nm angeregt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde für die Darstellung ein Offset gewählt.

Aus der Abbildung 8.6 und den Werten in Tabelle 8.3 ist zu erkennen, daß die Peakposition der Probe #907 energetisch weit über denen von den Proben #908 und #909 liegt. Dahingegen liegen die Peakpositionen der Proben #908 und #909 sehr nahe beieinander. Zudem ist die Peakenergie von Probe #908 kleiner als die von Probe #909, was nicht der Erwartung entspricht. Dieses Verhalten ließe sich eventuell auf lokale Schwankungen der Quantenpunktgröße auf dem Wafer zurückführen, jedoch könnte dieser Erklärungsversuch nicht die energetischen Abstände zwischen den Peakpositionen der drei Proben klären. Ebenfalls nicht zu erklären ist, daß der Abstand der beiden ersten Photolumineszenzpeaks für die Probe #907 kleiner ist als die der Proben #908 und #909. Dieses Verhalten läßt sich nicht durch das Intermixing erklären, da dieses ja für alle drei Proben gleich groß sein sollte. Die Tatsache, daß mit zunehmender Bedeckung die Intensität des Photolumineszenzsignals abnimmt, entspricht dagegen der auf Seite 41 angeführten Vorhersage.

ZYKLUS 2: PROBEN #913, #914 UND #915

Beim Wachstum der Proben #913, #914 und #915 wurde nicht nur die Bedeckung, sondern auch die Substrattemperatur variiert. Dabei wurde bei den Proben #913 und #915 eine relativ große Menge an InAs deponiert. Die Probe #914 in etwa sollte dieselben Eigenschaften wie die Probe #909 aufweisen, da die Wachstumsparameter identisch sind.

Probe	#913	#914	#915
Bedeckung Θ (ML)	2,7	2,5	2,7
Substrattemperatur T_S (°C)	490	495	500
Peakposition (meV)	1140,0	1139,3	1096,6
Halbwertsbreite (meV)	37,9	36,3	37,0
Peakhöhe (bel. Einh.)	18,07	11,70	12,30
Peakdifferenz (meV)	56,0	56,6	62,1
Quantenpunkthöhe (nm)	5,5	5,5	6,3
Quantenpunktbreite (nm)	13,4	13,4	15,1

TABELLE 8.4: Aus den Photolumineszenzuntersuchungen gewonnene Daten für die Proben #913, #914 und #915.

Die in Tabelle 8.4 dargestellten Daten wurden wiederum nach der auf Seite 97 beschriebenen Methode aus den in Abbildung 8.7 gezeigten Spektren gewonnen. In dieser Abbildung sind die gemessenen Photolumineszenzspektren der Proben #913, #914 und #915 dargestellt.



ABBILDUNG 8.7: Photolumineszenzspektren der Proben #913 (schwarz), #914 (rot) und #915 (blau). Die Proben wurden jeweils mit einer Intensitätsdichte von $\rho_I = 4690 \frac{W}{cm^2}$ bei einer Wellenlänge von 514,5nm angeregt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde für die Darstellung ein Offset gewählt.

Die Ergebnisse der Photolumineszenzuntersuchungen an den Proben #913, #914 und #915 legen nahe, daß eine Variation der Substrattemperatur einen wesentlich größeren Einfluß auf die Eigenschaften der Quantenpunkte hat als eine Änderung der Bedeckung. Nimmt man die Probe #913 als Referenz, so wurde bei der Probe #914 zwar weniger Material deponiert, jedoch wurde gleichzeitig die Substrattemperatur erhöht. Diese Temperaturerhöhung könnte Ursache für ein stärkeres Intermixing sein, wodurch die Größe der Quantenpunkte zunimmt. Bei der Probe #915 wurde dieselbe Menge an InAs deponiert, jedoch war hier die Substrattemperatur deutlich höher als beim Wachstum der Probe #913. Hierdurch läßt sich die Abnahme in der Photolumineszenzintensität erklären, da sich aufgrund der hohen Temperaturen weniger Nukleationszentren auf dem Substrat befinden werden. Die deutlich geringere energetische Position des Photolumineszenzpeaks läßt auf größere Quantenpunkte als in Probe #913 schließen und kann somit als Beleg für das Intermixing aufgefaßt werden. Diese Vermutung wird noch weiter durch die Tatsache untermauert, daß der energetische Abstand der beiden ersten Peaks bei der Probe #915 signifikant größer ist als bei den anderen beiden Proben dieses Zyklusses. Dahingegen kann im Rahmen dieses Bildes nicht erklärt werden, daß die Probe #914 die kleinste Halbwertsbreite besitzt. Allerdings liegen die Werte für die drei Proben sehr nahe beieinander, der maximale Abstand beträgt 1,6meV. Ein Vergleich der beiden nominell gleichen Proben #909 und #914 legt nahe, daß die Reproduzierbarkeit noch nicht optimal ist. Obwohl die Größenverteilung in den beiden Proben nahezu identisch ist, zeigen sich in der Quantenpunktgröße deutliche Unterschiede. Diese können zum einen durch die ungenaue Methode der Temperaturbestimmung und zum anderen durch die veränderten Wachstumsbedingungen, die sich durch ein Herunterfahren der MBE–Anlage in den Standby–Modus ergeben, erklärt werden.

ZYKLUS 3: PROBEN #917, #918 UND #919

Im Gegensatz zu den bisherigen untersuchten Proben wurden bei der Herstellung der Proben #917, #918 und #919 Wachstumspausen eingelegt, um die Bedeutung der Oberflächendiffusionsprozesse zu untersuchen (vgl. Seite 42). Für die Proben wurde jeweils dieselbe Bedeckung gewählt und die Substrattemperatur variiert. Sieht man von den Wachstumspausen ab, so stimmen die Wachstumsparameter von Probe #917 mit denen der Proben #909 und #914 überein.

Probe	#917	#918	#919
Bedeckung Θ (ML)	2,52	2,52	2,52
Substrattemperatur T_S (°C)	495	500	505
Peakposition (meV)	1097,2	1133,4	1126,1
Halbwertsbreite (meV)	32,2	43,2	41,2
Peakhöhe (bel. Einh.)	9,20	6,82	17,71
Peakdifferenz (meV)	59,4	41,1	56,0
Quantenpunkthöhe (nm)	6,3	5,6	5,7
Quantenpunktbreite (nm)	15,1	13,6	13,9

TABELLE 8.5: Aus den Photolumineszenzuntersuchungen gewonnene Daten für die Proben #917, #918 und #919.

Die in Tabelle 8.5 dargestellten Daten wurden auch hier nach der auf Seite 97 beschriebenen Methode aus den in Abbildung 8.8 gezeigten Spektren gewonnen. In dieser Abbildung sind die gemessenen Photolumineszenzspektren der Proben #917, #918 und #919 dargestellt.



ABBILDUNG 8.8: Photolumineszenzspektren der Proben #917 (blau), #918 (rot) und #919 (schwarz). Die Proben wurden jeweils mit einer Intensitätsdichte von $\rho_I = 4690 \frac{W}{cm^2}$ bei einer Wellenlänge von 514,5nm angeregt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde für die Darstellung ein Offset gewählt.

Aus den Photolumineszenzdaten ist zu erkennen, daß die Verhältnisse der Inselgrößen in diesen drei Proben nicht mit den auf Seite 41 dargestellten Betrachtungen übereinstimmen. Es könnte vermutet werden, daß bei Substrattemperaturen von 505°C ein Teil des In wieder von der Oberfläche desorbiert, dadurch könnte aber nicht erklärt werden, warum die Quantenpunkte in Probe #918 noch kleiner als die in Probe #919 sind. Die Tatsache, daß aufgrund von Wachstumspausen die Größenverteilung der Quantenpunkte verbessert werden könnte, kann nicht bestätigt werden. Während die Halbwertsbreite des Photolumineszenzpeaks von Probe #917 noch knapp unterhalb der Werte der bisherigen Proben liegt, fallen die Breiten der beiden Proben #918 und #919 doch deutlich größer aus.

Erfreulich ist hingegen, daß die Meßdaten der beiden Proben #909 und #917 auffällig gut übereinstimmen. Dabei liegen die Photolumineszenzpeaks nur um 1,8meV auseinander, was für dieses System eine außerordentlich geringe Abweichung darstellt.

8.2.5 Intensitätsabhängige Photolumineszenzuntersuchungen an InAs–Quantenpunkten

Um das Auftreten der angeregten Zustände in den Photolumineszenzspektren zu verfolgen, wurden intensitätsabhängige Photolumineszenzuntersuchungen durchgeführt. Ein Beispiel hierfür ist in Abbildung 8.9 dargestellt.



ABBILDUNG 8.9: Intensitätsabhängiges Photolumineszenzspektrum der Probe #917.

Für kleine Intensitätsdichten ist nur die Grundzustandsrekombination erkennbar. Wird die Intensität pro Fläche erhöht, werden mehr Elektronen aus dem Valenzband in das Leitungsband angeregt. Wie bereits auf Seite 48 erwähnt, können aufgrund der endlichen Lebensdauer der angeregten Zustände Rekombinationen aus höheren Niveaus beobachtet werden, bevor der Grundzustand gesättigt ist.

8.3 Photolumineszenz– und Kapazitätsspektroskopie an InAs–Quantenpunkten

Die Ergebnisse aus den drei Wachstumszyklen dienten als Grundlage für weitere Proben, in denen selbstorganisiert gewachsene InAs–Quantenpunkte enthalten sind. Es wurden zwei Proben (#931 und #939) hergestellt, die mit Hilfe von AFM und Kapazitätsspektroskopie untersucht wurden (vgl. Seite 86). Bei diesen Proben wurden zum einen Quantenpunkte in einer MIS–Struktur und zum anderen auf der Probenoberfläche deponiert.

Die Abbildung 8.10 zeigt ein an der Probe #931 aufgenommenes AFM-Bild.



ABBILDUNG 8.10: AFM–Bild der Probe #931. Die Aufnahme wurde von Stephan Schulz für diese Arbeit zur Verfügung gestellt.

Auf der Substratoberfläche ist die dreidimensionale Struktur der InAs-Quantenpunkte zu erkennen. Ebenso wird anhand der Aufnahme deutlich, daß die Größenverteilung der InAs-Quantenpunkte außerordentlich homogen ist. An den Proben #931 und #939 wurden auch Kapazitätsmessungen von Christian Weichsel durchgeführt. Aus diesen Messungen wurde der energetische Abstand zwischen den Elektronen in der s-Schale und denen in der p-Schale zu 50meV für die Probe #931 und 45meV für die Probe #939 bestimmt. Diese Daten können nur bedingt mit den aus Photolumineszenzuntersuchungen gewonnenen verglichen werden, da der energetische Abstand der ersten beiden Photolumineszenzpeaks nicht nur den energetischen Abstand der Elektronen, sondern auch den der Löcher beinhaltet. Weiterhin muß bei dieser Betrachtung der Einfluß der Exzitonen berücksichtigt werden. Hierbei beträgt die Exzitonenbindungsenergie für den Grundzustand nach (2.19) $E_{FX}(1) = 3,0$ meV und für den ersten angeregten Zustand $E_{FX}(2) = 11,9$ meV. Berücksichtigt man diese Werte bei den mit Hilfe der Photolumineszenz gemessenen Peakdifferenzen, so kann der verbleibende Differenzwert also dem Einfluß der Löcher zugeschrieben werden. Dabei liegen diese Differenzwerte für die beiden Proben (12,1 meV für die Probe #931 und 19,2 meV für die Probe #939) etwa 10meV unterhalb der Werte, die Bödefeld et al. für gestapelte InAs-Quantenpunkte erhalten haben [Bödefeld et al., 1998]. Hierbei wurden die Quantenpunkte ebenfalls mit Hilfe der Kapazitätsspektroskopie vermessen, wurden dabei aber gleichzeitig beleuchtet.

Probe	#931	#939
Bedeckung Θ (ML)	2,5	2,5
Substrattemperatur T_S (°C)	495	495
Peakposition (meV)	1105,6	1082,3
Halbwertsbreite (meV)	39,3	38,1
Peakhöhe (bel. Einh.)	8,4	17,0
Peakdifferenz (meV)	71,0	72,3
Quantenpunkthöhe (nm)	6,1	6,7
Quantenpunktbreite (nm)	14,7	15,8

 TABELLE 8.6: Aus den Photolumineszenzuntersuchungen gewonnene Daten für die Proben #931 und #939.

In Abbildung 8.11 sind die an den Proben #931 und #939 gemessenen Photolumineszenzspektren dargestellt. Obgleich in den beiden Proben nominell dieselben InAs–Quantenpunkte eingewachsen wurde, ist ein deutlicher Unterschied in der energetischen Lage der Grundzustandsrekombination zu erkennen. Noch drastischer ist der Unterschied in der Quantenausbeute, welche bei der Probe #939 fast doppelt so hoch ausfällt wie bei der Probe #939. Dahingegen besitzen die beiden Proben annähernd dieselben Werte für die Halbwertsbreite und den energetischen Abstand zwischen Grundzustandsrekombination und Rekombination aus dem ersten angeregten Niveau.

Bei der Interpretation der Spektren muß wiederum beachtet werden, daß die MBE–Anlage zwischen der Fertigung der beiden Proben in den Standby–Modus heruntergefahren wurde, so daß ein direkter Vergleich der beiden Proben nur bedingt möglich ist.



ABBILDUNG 8.11: Photolumineszenzspektren der Proben #939 (schwarz) und #931 (rot). Die Proben wurden jeweils mit einer Intensitätsdichte von $\rho_I = 4690 \frac{W}{cm^2}$ bei einer Wellenlänge von 514,5nm angeregt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde bei der Darstellung ein Offset gewählt.

Kapitel 9

Untersuchungen an Mikroresonatoren

9.1 Die Probe #455

In diesem Kapitel sollen die an der Probe #455 durchgeführten Messungen beschrieben werden. Bei dieser Probe handelt es sich um einen Mikroresonator, in dessen Zentrum ein einseitig modulationsdotierter Quantentopf eingewachsen wurde (vgl. Tab. 6.3 auf Seite 60).

Fainstein et al. berichteten 1995 von Untersuchungen an Mikroresonatoren mittels Ramanstreuung mit dem beeindruckenden Ergebnis, daß sich durch die Überhöhung des elektrischen Feldes innerhalb des Resonators die phononische Ramanstreuintensität um vier Größenordnungen verstärken läßt [Fainstein et al., 1995].

Durch Ramanexperimente an der Probe #455 konnte Rolf erstmals nachweisen, daß sich auch elektronische Anregungen des zweidimensionalen Elektronengases optisch verstärken lassen, wenn das einfallende Licht in Resonanz mit der Resonatormode ist [Rolf, 1999].

9.2 Die Probe #688

Bei der Probe #688 handelt es sich ebenfalls um einen Mikroresonator, in dessen Zentrum sich wiederum ein modulationsdotierter Quantentopf befindet (vgl. Anh. A.2), dessen Resonatormode allerdings bei einer höheren Wellenlänge liegt als die der Probe #455.

Mit Hilfe von Ramanexperimenten gelang es Kipp sowohl das einfallende als auch das an elektronischen Intersubbandanregungen inelastisch gestreute Licht in Resonanz mit der Resonatormode zu bringen [Kipp et al., 2001]. Diese Doppelresonanz kann aufgrund der in Abbildung 3.7 auf Seite 25 dargestellten Tatsache, daß die Resonatormodenenergie vom Einfalls– bzw. Detektionswinkel abhängig

ist, erzielt werden. Unter diesen doppelresonanten Bedingungen wurde eine um zwei bis drei Größenordnungen stärkere Streuintensität im Vergleich zum einfach resonanten Fall, bei dem nur das einfallende Licht in Resonanz mit der Resonatormode ist, beobachtet.

9.3 Die Probe #836

In Kapitel 7.3 auf Seite 76 wurde der Herstellungsprozeß der Probe #836 beschrieben. Bei dieser Probe handelt es sich um einen Mikroresonator, in dessen Mitte eine Schicht selbstorganisiert gewachsene InAs–Quantenpunkte eingebettet wurde (vgl. Tab. 7.3 auf Seite 77). In diesem Kapitel sollen nun die Meßergebnisse an dieser Probe vorgestellt werden. Dabei werden zuerst Photolumineszenzuntersuchungen präsentiert und im Anschluß daran Transmissions– und Reflexionsmessungen.

9.3.1 Photolumineszenzuntersuchungen an Probe #836

Mit Hilfe der Photolumineszenzuntersuchungen an Probe #836 können Aussagen über die Verstärkung des Signals gewonnen werden. Darüberhinaus stellt die Photolumineszenz ein ideales Werkzeug dar, um die in Kapitel 3.3 beschriebene winkelabhängige Dispersion zu vermessen. Schließlich wurde an der Probe #836 untersucht, ob sich aufgrund der enormen Feldüberhöhung in der Mitte des Resonators bereits nichtlineare Effekte bemerkbar machen, die als ein Anzeichen für stimulierte Emission gedeutet werden können.

VERSTÄRKUNG DES SIGNALS

Um die Größenordnung der resonanten Verstärkung zu bestimmen, wurde das Photolumineszenzsignal der Probe #836 mit dem einer Referenzprobe verglichen. Bei dieser Probe wurden nominell dieselben InAs–Quantenpunkte in GaAs ohne die Resonatorstruktur eingebettet (vgl. Abb. 8.3 auf Seite 92(a)). Die Photolumineszenzspektren dieser beiden Proben sind in Abbildung 9.1 dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, daß das Photolumineszenzsignal der InAs–Quantenpunkte durch die Resonatorstruktur drastisch verstärkt wird.



111

ABBILDUNG 9.1: Photolumineszenzspektren der Probe #836 (schwarz) und der Referenzprobe (rot). Der Inset verdeutlicht, daß nur das von den Quantenpunkten emittierte Licht, welches exakt bei der Resonatormode liegt, verstärkt wird. Die Proben wurden jeweils mit einer Intensitätsdichte von $\rho_I = 1340 \frac{W}{cm^2}$ bei einer Wellenlänge von 514,5nm angeregt.

Obwohl das Emissionsspektrum der Quantenpunkte, welche in den Resonator eingewachsen sind, ähnlich breit sein wird wie das der Referenzprobe, ist das Photolumineszenzsignal der Probe #836 wesentlich schmaler¹. Die Begründung hierfür liegt in der Tatsache begründet, daß nur der Anteil, welcher dieselbe Energie wie die Resonatormode besitzt, resonant verstärkt wird. Der Teil des von den Quantenpunkten emittierten Lichtes, welcher nicht bei dieser Energie liegt, kann das Stoppband nicht durchdringen und wird von der Probe absorbiert. Ist das Emissionspektrum der InAs–Quantenpunkte breiter als das Stoppband, so sind im Photolumineszenzspektrum sogenannte *Leaky Modes*² (vgl. Abb. 9.9 auf Seite 121) zu erkennen [Björk et al., 1991], [Bayer et al., 2001].

Ein absoluter Vergleich der beiden Proben ist aufgrund der Tatsache, daß die MBE-Anlage zwischen dem Wachstum dieser beiden Proben in den Standby-

¹Die Halbwertsbreite, welche aus einem Lorenzfit gewonnen wurde, beträgt 0,7meV. ²Engl. "undichte" Moden.

Modus heruntergefahren wurde, nur eingeschränkt möglich. Aufgrund der veränderten Wachstumsbedingungen könnte zum einen das Maximum des Photolumineszenzsignals energetisch verschoben sein. Zum anderen können aufgrund von unterschiedlichen Quantenpunktdichten in den beiden Proben die Intensitäten des Photolumineszenzsignals unterschiedlich ausfallen. Darüberhinaus muß das anregende Laserlicht im Falle der Resonatorstruktur einen deutlich längeren Weg durch das Substrat zurücklegen. Während sich bei der Referenzprobe die InAs-Quantenpunkte etwa 50nm unterhalb der Oberfläche befinden, beträgt diese Distanz im anderen Falle 4μ m, ist also in etwa um zwei Größenordnungen länger. Hierdurch kann die anregende Intensitätsdichte nur bedingt miteinander verglichen werden.

Läßt man all diese Einschränkungen unbeachtet, so ergibt sich für das in Abbildung 9.1 dargestellte Spektrum eine Verstärkung des Signals von 63.

Um diesen aus Messungen erhaltenen Wert mit theoretischen Vorhersagen zu vergleichen, wurden mit Hilfe eines Computerprogramms von Tobias Kipp Berechnungen zur Signalverstärkung durch einen Mikroresonator durchgeführt. Dieses Computerprogramm errechnet das Spektrum, welches sich außerhalb eines Mikroresonators ergibt, wenn sich in dessen Zentrum eine infinitesimal dünne, Licht emittierende Schicht befindet. Das aus dieser Schicht emittierte Licht wird durch eine Überlagerung von ebenen Wellen beschrieben, welche sich in Form einer Kugelwelle ausbreiten und über den gesamten Spektralbereich eine Stärke von 1 besitzen. Die Berechnung des Spektrums außerhalb des Resonators erfolgt mit Hilfe der Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12). Nimmt man die Intensität der Strahlung in der Mitte des Resonators mit 1 an, so beträgt die Intensität außerhalb der vorliegenden Resonator–Struktur 106. Somit ergibt sich also eine Abweichung von 40% der gemessenen Signalstärke gegenüber der erwarteten, was auf die bereits beschriebenen Fehlerquellen zurückgeführt werden kann.

WINKELABHÄNGIGE PHOTOLUMINESZENZMESSUNGEN

Da bei winkelabhängigen Messungen die Polarisationsrichtung des Lichtes beachtet werden muß, wurde der in Abbildung 5.1 dargestellte Versuchsaufbau modifiziert. Der Aufbau, mit dem polarisationsabhängige Messungen möglich sind, ist in Abbildung 9.2 dargestellt.



ABBILDUNG 9.2: Modifizierter Versuchsaufbau zur winkelabhängigen Photolumineszenzmessung. Die Trennung des Lichts in s- und p-polarisierten Teil erfolgt mit Hilfe eines Glan Taylor. Die Lochblende LB2 garantiert eine hohe Winkelauflösung. Die anderen Komponenten des Aufbaus wurden bereits in Abbildung 5.3 auf Seite 50 erläutert.

Die Anregung der Probe geschieht auch hier wiederum mit einem Laser. Das von der Probe emittierte Photolumineszenzlicht wird durch die Linse L_2 aufgesammelt. Um die Winkelauflösung zu erhöhen, wird mit Hilfe einer Blende aus dem parallelen Lichtstrahl ein Strahl mit Durchmesser 3mm herausgeschnitten. Die Separation des Lichts in den s- bzw. p-polarisierten Teil wird mit einem Glan Taylor³ bewerkstelligt. Anschließend wird das Licht durch die Linse L_1 auf das Fourierspektrometer fokussiert und von diesem detektiert.

Die Abbildung 9.3 zeigt winkelabhängige Photolumineszenzmessungen an Probe #836. Wie bereits in Kapitel 3.3 erläutert, verschiebt sich die Resonatormodenenergie zu höheren Energien für größer werdende Winkel.

³Hersteller: Melles Griot.



ABBILDUNG 9.3: Winkelabhängige Photolumineszenzspektren der Probe #836 für sund p-Polarisation. Die Probe wurde jeweils mit einer Intensitätsdichte von $\varrho_I = 1340 \frac{W}{cm^2}$ bei einer Wellenlänge von 514,5nm angeregt.

Mit Hilfe des auf Seite 112 erwähnten Computerprogramms lassen sich auch winkelabhängige Photolumineszenzmessungen simulieren. Hierfür wurde wiederum in der Mitte des Resonators eine infinitesimal dünne, Licht emittierende Schicht angenommen. Das Spektrum, welches sich außerhalb des Resonators ergibt, wurde auch hier mit Hilfe der Fresnel-Formeln (3.1) bis (3.12) berechnet. Anschließend wurde das Spektrum für verschiedene Winkel θ gegen die Senkrechte zur Probenoberfläche berechnet, wobei für Winkel $\theta \neq 0^{\circ}$ die Winkelabhängigkeit der Detektorposition berücksichtigt wurde. Da im vorliegenden Fall die Schicht, welche sich in der Mitte des Resonators befindet, nicht über den gesamten Spektralbereich die gleiche Stärke besitzt, wurden die sich jeweils ergebenden Spektren mit einer Gaußkurve gefaltet. Für diese Kurve wurde das Maximum bei der Energie angenommen, die sich aus der Messung an Probe #836 für einen Winkel von $\theta = 0^{\circ}$ gegen die Senkrechte zur Probenoberfläche ergibt. Weiterhin wurde die Halbwertsbreite der Gaußkurve als die Breite des Photolumineszenzspektrums der Referenzprobe angenommen. Die sich aus diesen Überlegungen ergebenden Ergebnisse sind in Abbildung 9.4 am Beispiel der s-Polarisation dargestellt.



ABBILDUNG 9.4: Berechnete und gemessene winkelabhängige Photolumineszenzspektren der Probe #836 für s–Polarisation. In (a) ist zusätzlich die auf der vorherigen Seite beschriebene einhüllende Gaußkurve dargestellt. Für das Zentrum der Gaußkurve wurde in der Mitte des Resonators eine Lichtquelle der Stärke 1 angenommen. Die Signalverstärkung ergibt sich aus der Berechnung der Signalstärke außerhalb der Probe nach den Fresnel–Formeln (3.1) bis (3.12).

Die Abbildung 9.4(a) zeigt deutlich, daß bei einer berechneten winkelabhängigen Photolumineszenzuntersuchung die sich ergebenden Spektren von der auf der vorherigen Seite beschriebenen Gaußkurve eingehüllt werden. Daß dieses Verhalten in Abbildung 9.4(b) nicht zu sehen ist, kann folgende Ursachen haben: Zum einen ist es unwahrscheinlich, daß bei der Probe #836 das Photolumineszenzsignal exakt bei der Resonatormode maximal ist. Des weiteren konnte bei der Messung nicht gewährleistet werden, daß die Drehachse exakt im Strahlengang liegt. Daher können sich einerseits kleine Abweichungen im Probenort ergeben und vor allem wird nicht mehr das Maximum des Signals auf den Detektor abgebildet. Hierdurch könnte insbesondere der starke Abfall der Photolumineszenzintensität für kleine Winkel θ erklärt werden.

Wie bereits angekündigt, läßt sich die in Abbildung 3.7 dargestellte Dispersionsrelation anhand der gewonnenen Photolumineszenzdaten vermessen. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 9.5 dargestellt. In das Schaubild eingetragen sind die gemessenen Peakpositionen aus Abbildung 9.3 sowie die mit Hilfe der Fresnel– Formeln (3.1) bis (3.12) berechneten Resonatormodenenergien.



ABBILDUNG 9.5: Gemessene und berechnete Dispersionsrelation für s– (schwarz) und p–Polarisation (rot) der Probe #836. Die Meßwerte wurden aus den Peakpositionen der in Abbildung 9.3 dargestellten Kurven gewonnen.

Die in Kapitel 3.3 erwähnte Aufspaltung von s- und p-polarisiertem Licht fällt in der Messung verhältnismäßig groß aus. Diese Abweichung kann, ebenso wie die Tatsache, daß die Meßwerte für den p-polarisierten Anteil des Lichts bei zu großen Energien liegen, wiederum mit der ungenauen Winkeleinstellung begründet werden.

INTENSITÄTSABHÄNGIGE PHOTOLUMINESZENZMESSUNGEN

Mit Hilfe von Photolumineszenzuntersuchungen wurde des weiteren untersucht, ob eine stimulierte Emission der InAs–Quantenpunkte beobachtet werden kann. Da die Amplitude des elektrischen Feldes in der Mitte des Resonators deutlich überhöht ist, könnten hier bereits nichtlineare Effekte spürbar werden.



ABBILDUNG 9.6: Intensitätsabhängige Photolumineszenzmessung an Probe #836. Die schwarzen Quadrate markieren die erhaltenen Meßwerte, die rot durchgezogene Linie wurde mittels linearer Regression erhalten. Die blaue Gerade stellt die auf das ungeschwächte Signal normierte Intensität dar. Hierfür wurde die Intensität des Photolumineszenzsignals, welches ohne Graufilter aufgenommen wurde, mit den jeweiligen Absorptionskoeffizienten multipliziert.

Die Abbildung 9.6 zeigt intensitätsabhängige Photolumineszenzmessungen an der Probe #836. Wie in Kapitel 8.2.1 beschrieben, könnten durch Ungenauigkeiten des internen Meßgerätes systematische Fehler bei der Bestimmung der Laserleistung auftreten. Daher wurden bei dieser Messung sämtliche Abschwächungen des Signals mit Hilfe von Graufiltern vorgenommen, deren Absorptionsvermögen für die Resonatorwellenlänge mit Hilfe einer Transmissionsmessung bestimmt wurde. Anhand der Abbildung 9.6 ist zu erkennen, daß die erhaltenen Meßwerte statistisch um die in rot dargestellte Ausgleichsgerade⁴ schwanken. In blau dargestellt ist die Kurve, die sich ergibt, wenn man die Intensität des Photolumineszenzsignals, welches sich aus der Messung ohne Abschwächer ergibt, mit den jeweiligen Absorptionskoeffizienten der Graufilter multipliziert. Diese Gera-

⁴Es wurde ein Ursprungsgerade der Form $y = m \cdot x$ angenommen. Der Korrelationskoeffizient, der sich aus der linearen Regression ergibt, beträgt 93,7%.

de besitzt in etwa dieselbe Steigung wie die durch lineare Regression bestimmte Ausgleichsgerade und liegt bei etwas geringeren Photolumineszenzintensitäten. Dennoch können anhand der Meßergebnisse nichtlineare Effekte für die hier durchgeführte Untersuchung ausgeschlossen werden. Die Streuung der Meßwerte kann darauf zurückgeführt werden, daß der anregende Laserstrahl durch die Integration der Graufilter in den Strahlengang leicht abgelenkt wurde. Hierdurch werden bei den durchgeführten Messungen jeweils andere Probenorte angeregt, die zwar sehr nahe beieinander liegen, wo sich jedoch die mittlere Größe sowie die Dichte an Quantenpunkten geändert haben können.

9.3.2 Transmissions- und Reflexionsuntersuchungen an Probe #836

Wie in Kapitel 5.3 beschrieben, ist es mit Hilfe des in Abbildung 5.6 auf Seite 54 dargestellten Meßaufbaus möglich, Transmissions– und Reflexionsmessungen am selben Probenort durchzuführen. Hierbei gestalteten sich insbesondere die Transmissionsmessungen als kritisch, da die Resonatormode kaum vom Untergrundrauschen unterschieden werden konnte (vgl. Abb. 9.7).

Der Grund hierfür könnte sein, daß bei Transmissionsmessungen das Licht von den InAs–Quantenpunkten absorbiert wird und somit nicht den Detektor erreicht. Bei Reflexionsmessungen ist die Resonatormode hingegen deutlich zu erkennen, da hier eine zusätzlich absorbierende Schicht den Abfall der Reflektivität bei der Resonatormodenenergie verstärken würde.

Um dieses Verhalten weiter zu untersuchen, wurden temperaturabhängige Messungen an der Probe #836 durchgeführt. Mit ansteigender Temperatur wird die energetische Lage des Photolumineszenzsignals zu kleineren Energien hin verschoben, da die Bandlücke eine starke Temperaturabhängigkeit aufweist. Gleichzeitig steigt die Halbwertsbreite stark an und die Intensität des Photolumineszenzsignals nimmt ab, da strahlungslose Rekombinationen wahrscheinlicher werden.

Für ansteigende Temperaturen wird auch die Resonatormode zu kleineren Energien verschoben, jedoch ist hier die Temperaturabhängigkeit bei weitem nicht so groß wie für das Photolumineszenzsignal. Im Falle der Resonatormode sind die thermische Expansion der Probe und die temperaturabhängige Dielektrizitätskonstante für die Verschiebung verantwortlich. Es bleibt also festzuhalten, daß für ansteigende Temperaturen die Emissivität der InAs–Quantenpunkte im Bereich der Resonatormode abnimmt. Die Absorption nimmt an der selben energetischen Position ebenfalls ab, da ja mit zunehmender Temperatur die Bandlücke innerhalb der Quantenpunkte kleiner wird, wodurch mehr Photonen eine Anregung von Elektronen aus dem Valenzband in das Leitungsband bewirken können. Daher sollte also bei größeren Temperaturen der Einbruch in der Reflektivität bei



ABBILDUNG 9.7: An Probe #836 gemessenes Transmissions- und Reflexionsspektrum. Der Inset zeigt den Bereich um die Resonatormode.

der Resonatormode zunehmen und die Transmissivität an dieser Stelle abnehmen. Die Ergebnisse dieser Untersuchung sind in Abbildung 9.8 dargestellt.

Die Abnahme der Peakhöhe mit zunehmender Temperatur bei den Transmissionsmessungen entspricht der oben angeführten Darstellung. Dahingegen ist bei den Reflexionsmessungen eine anfängliche Zunahme der Reflektivität bei ansteigenden Temperaturen zu beobachten, bevor diese dann erwartungsgemäß abnimmt. Die Abnahme der Reflektivität für tiefe Temperaturen kann damit begründet werden, daß wie in Abbildung 9.8(b) gezeigt, auch die Resonatormode temperaturabhängig ist. Da das Probendesign so konzipiert wurde, daß die Bedingungen (3.13) von Seite 17 für die dielektrischen Spiegel und (3.20) von Seite 22 für die Resonatorschicht bei einer Temperatur von 4,2K erfüllt sind, dominiert dieser Effekt bei tiefen Temperaturen. Steigt die Temperatur weiter an, so macht sich die deutlich stärkere Temperaturabhängigkeit der Bandlücke sowie die Abnahme der Emissivität der InAs–Quantenpunkte bemerkbar. Während sich die energetische Lage der Resonatormode in einem Bereich zwischen 4K und 292K um etwa 19meV verschiebt, so wird im selben Temperaturbereich die energetische Lage des Photolumineszenzpeaks von InAs–Quantenpunkten um etwa 75meV verscho-



ABBILDUNG 9.8: Temperaturabhängige Transmissions– und Reflexionsmessungen an Probe #836. In (a) dargestellt ist die gemessene Höhe der Resonatormode für Transmissionsmessungen (rot) und die Tiefe der Mode für Reflexionsmessungen (schwarz). Die Abhängigkeit der Resonatormode von der Temperatur ist in (b) für Transmissionsmessungen (rot) und Reflexionsmessungen (schwarz) dargestellt.

ben [Wagner, 2001]. Somit ist die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke also in etwa viermal so groß wie die der Resonatormode. Noch stärker ist der Einfluß der Temperatur auf die Intensität des Photolumineszenzsignals, hier können Abnahmen der Peakhöhe um den Faktor 30 beobachtetet werden [Wagner, 2001].

LEAKY MODES

Wie auf Seite 111 bereits erwähnt, können für den Fall, daß die Breite des Photolumineszenzpeaks größer als die des Stoppbandes ist, Leaky Modes im Photolumineszenzspektrum zu erkennen sein.

Die Abbildung 9.9 zeigt ein an der Probe #836 gemessenes Reflexions– sowie ein Photolumineszenzspektrum. In der hier gewählten Darstellung wurde das Photolumineszenzsignal verstärkt dargestellt, um die am Ende des Stoppbandes liegenden Leaky Modes deutlich hervortreten zu lassen. Aus diesem Grund wurde das Maximum des Photolumineszenzsignals abgeschnitten. Daß die energetische Position der Leaky Modes nicht exakt mit dem Ende des Stoppbandes zusammenfällt kann darauf zurückgeführt werden, daß die Messungen nicht am selben Probenort durchgeführt wurden.



ABBILDUNG 9.9: An Probe #836 gemessenes Reflexions– (schwarz) und Photolumineszenzspektrum (rot). Um die Leaky Modes deutlich erkennen zu können, wurde das Photolumineszenzsignal mit einem Faktor multipliziert, wodurch das Maximum der Kurve nicht mehr in den Bildausschnitt paßt (der Wert liegt bei 50,85) und daher abgeschnitten wurde.

Kapitel 10

Zusammenfassung

Die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Mikroresonatoren wurden mit Hilfe von spektroskopischen Standardverfahren untersucht.

Die aus den Untersuchungen gewonnenen Ergebnisse dienten sowohl als Grundlage für neue Proben, als auch als Anregung, das MBE–Wachstum der Resonatorstrukturen weiter zu verbessern. Wie aus den Daten der Proben, die vor Beginn dieser Arbeit hergestellt wurden, eindeutig hervorgeht, war eine systematische Untersuchung des Wachstumsprozesses vonnöten. Hierzu wurde eine Liste der systematischen Fehler, welche die beim MBE–Wachstum der Mikroresonatoren auftretenden Ungenauigkeiten erklären könnten, angefertigt.

Durch die Herstellung und Untersuchung weiterer Proben konnte letztendlich eine entscheidende Fehlerquelle ausfindig gemacht werden. Die außerordentlich hohe Präzision, die an die Kalibrierung des Zellenflusses gestellt wird, konnte hierbei von der RHEED–Methode nicht gewährleistet werden. Aus diesem Grund wurde ein Pyrometer in die Hamburger MBE–Anlage integriert, welches eine genauere Bestimmung der Langzeit–Flußraten ermöglicht. Des weiteren bietet die pyrometrische Interferometrie die Möglichkeit, das Probenwachstum über die gesamte Fertigungszeit zu beobachten.

Parallel hierzu wurden Analysen zum Wachstum von InAs–Quantenpunkten auf GaAs–Substraten angestellt. Hierbei waren sowohl die Entstehung der dreidimensionalen Wachstumsinseln als auch deren optische Eigenschaften Gegenstand der Untersuchungen. Auch hier lieferten spektroskopische Meßverfahren, insbesondere Photolumineszenzmessungen, Aufschlüsse darüber, wie die für das Wachstum entscheidenden Parameter optimiert werden können. So konnten im Verlauf dieser Arbeit die optischen Eigenschaften der selbstorganisiert gewachsenen InAs–Quantenpunkte entscheidend verbessert werden.

Schließlich wurden die über das MBE–Wachstum von Mikroresonatoren, die pyrometrische Interferometrie und das selbstorganisierte Inselwachstum von In-As auf Gas gewonnenen Erkenntnisse als Basis für die Herstellung einer weiteren Probe verwendet. Diese Probe enthält InAs–Quantenpunkte in der aktiven, Licht emittierenden Schicht, welche sich genau im Zentrum des Mikroresonators befindet. Die Flußraten der einzelnen Effusionszellen wurden mit Hilfe der pyrometrischen Interferometrie bestimmt. Des weiteren wurde das Wachstum der Probe ebenfalls mit dem Pyrometer aufgezeichnet.

Auch diese Probe wurde wiederum mit spektroskopischen Meßverfahren untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen könnten ihrerseits wiederum als Grundlage für eine weitere Optimierung des Fertigungsprozesses dienen. So wäre beispielsweise eine direkte Kontrolle der aktuellen Schichtdicke während des MBE–Wachstums der Resonatorstruktur durch das Pyrometer von großem Vorteil. Durch diese *in–situ* Kontrolle der Schichtdicken könnte die Qualität der Mikroresonatoren erheblich gesteigert werden. Dennoch sind auch hier noch einige Schwierigkeiten zu überwinden. Hier seien die unzureichend genau bekannten Parameter, die für Simulationsrechnungen notwendig sind, sowie insbesondere das Rauschen und die Diskontinuitäten des Pyrometersignals genannt.

Anhang A

Aufbau der beschriebenen Proben

A.1 Probe #580

2,1 ML	InAs	
30 nm	GaAs (580°C)	
20 nm	GaAs (450°C)	
2,1 ML InAs		
GaAs Wafer		

A.2 Probe #688

Cap-Layer	2nm	GaAs	
	67,5nm	Al _{0,4} Ga _{0,6} As	w24
	73,9nm	AlAs	X24
	51,4nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As	
	45.00nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As : Si	
	20.00nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As	
	30.00nm	GaAs	
	65.00nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As	
	51,4nm	Al _{0,2} Ga _{0,8} As	
	73,9nm	AlAs	v22
	67,5nm	Al _{0,4} Ga _{0,6} As	X33
	300,0nm	GaAs	
Supergitter	2,8nm	AlAs	v10
Supergitter	2,8nm	GaAs	X10
	GaAs Wafer		

A.3 Probe #701

	2,3 ML	InAs	
	7,0 nm	GaAs	
Supergitter	2,5 nm	GaAs	w16
Supergitter	2,5 nm	AlAs	X10
	30,0 nm	GaAs	
	0,9 nm	AlAs	
	2,3 ML	InAs	
	20,0 nm	GaAs	
	25,0 nm	GaAs : Si	
	200,0 nm	GaAs	
Supergitter	2,5 nm	GaAs	w100
Supergitter	2,5 nm	Al _{0,3} Ga _{0,7} As	X100
	300,0 nm	GaAs	
	GaAs Wafer		

A.4 Probe #816

0,015 nm	InAs	x5	
0,045 nm	InAs	x10	
50,000 nm	GaAs		
0,015 nm	InAs	x5	
0,045 nm	InAs	x10	
50,000 nm	GaAs		
GaAs-Wafer			

A.5 Probe #939

	2,5 ML	InAs	
	7,0 nm	GaAs	
Supergitter	2,5 nm	GaAs	1 <i>6</i>
Supergitter	2,5 nm	AlAs	X10
	33,0 nm	GaAs	
	2,5 ML	InAs	
	40,0 nm	GaAs	
	15,0 nm	Al _{0,3} Ga _{0,7} As	
	30,0 nm	GaAs : Si	
	200,0 nm	GaAs	
Supergitter	3,0 nm	GaAs	w100
Supergitter	10,0 nm	Al _{0,3} Ga _{0,7} As	X100
	400,0 nm	GaAs	
	GaAs Wafer		

Literaturverzeichnis

- [Adachi, 1985] S. Adachi, GaAs, AlAs and $Al_xGa_{1-x}As$: Material Parameters for Use in Research and Device Applications, *J. Appl. Phys.* Seiten R1–R29 (1985).
- [Arthur, 1968] J. R. Arthur, Interaction of Ga and As₂ Molecular Beams with GaAs Surfaces, *J. Appl. Phys.* **39**:4032–4034 (1968).
- [Arzberger et al., 1999] M. Arzberger, U. Käsberger, G. Böhm und G. Abstreiter, Influence of a Thin AlAs Cap Layer on Optical Properties of Self– Assembled InAs/GaAs Quantum Dots, *Appl. Phys. Lett.* **75**:3968–3970 (1999).
- [Bardinal et al., 1995] V. Bardinal, R. Legros und C. Fontaine, *In–situ* Measurements of AlAs and GaAs Refractive Index Dispersion at Epitaxial Growth Temperature, *Appl. Phys. Lett.* **67**:244–246 (1995).
- [Bastard, 1981] G. Bastard, Superlattice Band Structure in the Envelope– Function Approximation, *Phys. Rev. B* 24:5693–5697 (1981).
- [Bayer et al., 2001] M. Bayer, T. L. Reinecke, F. Weidner, A. Larionov, A. Mc-Donald und A. Forchel, Inhibition and Enhancement of the Spontaneous Emission of Quantum Dots in Structured Microresonators, *Phys. Rev. Lett.* 86:3168–3171 (2001).
- [Bödefeld et al., 1998] M. C. Bödefeld, R. J. Warburton, K. Karrai und J. P. Kotthaus, Storage of Electrons and Holes in Self–Assembled InAs Quantum Dots, *Appl. Phys. Lett.* 74:1839–1841 (1998).
- [Bhatti et al., 1999] A. S. Bhatti, M. Grassi Alessi, M. Capizzi, P. Frigeri und S. Franchi, Optical Spectroscopy of Quasimonolayer InAs at the Onset of Quantum–Dot Nucleation, *Phys. Rev. B* 60:2592–2598 (1999).
- [Björk et al., 1995] G. Björk, Y. Yamamoto und H. Heitmann, Spontaneous Emission Control in Semiconductor Microcavities, in E. Burstein und

C. Weisbuch, Herausgeber, *Confined Electrons and Photons — New Physics and Applications*, Band 340 aus NATO ASI Series B, Seiten 467–501, Plenum Press, New York (1995).

- [Björk et al., 1991] G. Björk, S. Machida, Y. Yamamoto und K. Igeta, Modification of Spontaneous Emission Rate in Planar Dielectric Microcavity Structures, *Phys. Rev. B* 44:669–681 (1991).
- [Born und Wolf, 1993] M. Born und E. Wolf, *Principles of Optics*, Plenum Press, Oxford, 6. Auflage (1993).
- [Cho, 1971] A. Y. Cho, GaAs Epitaxie by a Molecular Beam Method: Observations of Surface Structure on the (001) Face, J. Appl. Phys. 42:2074–2081 (1971).
- [Chu et al., 1999] L. Chu, M. Arzberger, G. Böhm und G. Abstreiter, Influence of Growth Conditions on the Photoluminescence of Self–Assembled In-As/GaAs Quantum Dots, J. Appl. Phys. 85:2355–2362 (1999).
- [Clark, 1970] C. A. Clark, Deutsches Patent P 1939667.9 (1970).
- [Copel et al., 1989] M. Copel, M. C. Reuter, E. Kaxiras und R. M. Tromp, Surfactants in Epitaxial Growth, *Phys. Rev. Lett.* Seiten 632–635 (1989).
- [Davey und Pankey, 1968] J. E. Davey und T. Pankey, Epitaxial GaAs Films Deposited by Vacuum Evaporation, J. Appl. Phys. 39:1941–1948 (1968).
- [Däweritz et al., 1991] L. Däweritz, J. Griesche, R. Hey und J. Herzog, Dynamics and Roughness Spectrum of the GaAs(001) Surface During MBE Process, *J. Cryst. Growth* **111**:65–69 (1991).
- [Dobbs et al., 1997] H. T. Dobbs, D. D. Vvedensky, A. Zangwill, J. Johansson, N. Carlson und W. Seifert, Mean–File Theory of Quantum Dot Formation, *Phys. Rev. Lett.* **79**:897–900 (1997).
- [Dodson und Tsao, 1987] B. W. Dodson und J. Y. Tsao, Relaxation of Strained– Layer Semiconductor Structures Via Plastic Flow, Appl. Phys. Lett. 51:1325–1327 (1987).
- [Drexler et al., 1994] H. Drexler, D. Leonard, W. Hansen, J. P. Kotthaus und P. M. Petroff, Spectroscopy of Quantum Levels in Charge–Tunable InGaAs Quantum Dots, *Phys. Rev. Lett.* **73**:2252–2255 (1994).
- [Drucker, 1993] J. Drucker, Coherent Islands and Microstructural Evolution, *Phys. Rev. B* **48**:18203–18206 (1993).
- [Dumin, 1967] D. J. Dumin, Measurement of Film Thickness Using Infrared Interference, *Rev. Sci. Instr.* **38**:1107–1109 (1967).
- [Eaglesham und Cerullo, 1990] D. J. Eaglesham und M. Cerullo, Dislocation– Free Stranski–Krastanow Growth of Ge on Si(100), *Phys. Rev. Lett.* 64:1943–1946 (1990).
- [Ekenberg und Altarelli, 1987] U. Ekenberg und M. Altarelli, Exciton Binding Energy in a Quantum Well With Inclusion of Valence–Band Coupling and Nonparabolicity, *Phys. Rev. B* **35**:7585–7595 (1987).
- [Fafard et al., 1999] S. Fafard, Z. R. Wasilewski und M. Spanner, Evolution of the Energy Levels in Quantum Dot Ensembles with Different Densities, *Appl. Phys. Lett.* **75**:1866–1868 (1999).
- [Fainstein et al., 1995] A. Fainstein, B. Jusserand und V. Thierry-Mieg, Raman Scattering Enhancement by Optical Confinement in a Semiconductor Planar Microcavity, *Phys. Rev. Lett.* **75**:3764–3767 (1995).
- [Foxon et al., 1973] C. T. Foxon, J. A. Harvey und B. A. Joyce, The Evaporation of GaAs Under Equilibrum and Non–Equilibrum Conditions Using a Modulated Beam Technique, J. Phys. Chem. Solids 34:1693–1701 (1973).
- [Frank und van der Merwe, 1949] F. C. Frank und J. H. van der Merwe, *Proc. Roy. Soc. London A* **198**:205 (1949).
- [García et al., 1997] J. M. García, G. Medeiros-Ribeiro, K. Schmidt, T. Ngo, J. L. Feng, A. Lorke, J. Kotthaus und P. M. Petroff, Intermixing and Shape Changes During the Formation of InAs Self–Assembled Quantum Dots, *Appl. Phys. Lett.* **71**:2014–2016 (1997).
- [Guha et al., 1990] S. Guha, A. Madhukar und K. C. Rajkumar, Onset of Incoherency and Defect Introduction in the Initial Stages of Molecular Beam Epitaxical Growth of Highly Strained $In_xGa_{1-x}As$ on GaAs(100), *Appl. Phys. Lett.* Seiten 2110–2112 (1990).
- [Günther, 1958] K. G. Günther, Z. Naturforsch. 13A:1081 (1958).
- [Hecht, 1994] E. Hecht, Optik, Addison-Wesley, Bonn, zweite Auflage (1994).
- [Henzler und Göpel, 1994] M. Henzler und W. Göpel, *Oberflächenphysik des Festkörpers*, Teubner, Stuttgart, zweite Auflage (1994).

- [Heyn, 1994] Ch. Heyn, Untersuchungen zur Kinetik der Abscheidung von GaAs und AlGaAs mit dem Verfahren der Molekularstrahlepitaxie, Dissertation, Universität Hamburg, Hamburg (1994).
- [Heyn, 2001] Ch. Heyn, Critical Coverage for Strain–Induced Formation of InAs Quantum Dots, *Phys. Rev. B* **64**:165306 (2001).
- [Heyn, 2002] Ch. Heyn, eingereicht bei Phys. Rev. B.
- [Heyn und Dumat, 2001] Ch. Heyn und C. Dumat, Formation and Size Evolution of Self–Assembled Quantum Dots, *J. Cryst. Growth* **227–228**:990–994 (2001).
- [Heyn et al., 2000] Ch. Heyn, D. Endler, K. Zhang und W. Hansen, Formation and Dissolution of InAs Quantum Dots, J. Cryst. Growth 210:421–428 (2000).
- [Heyn et al., 1997] Ch. Heyn, T. Franke, R. Anton und M. Harsdorff, Correlation Between Island–Formation Kinetics, Surface Roughening, and RHEED Oszillation Damping During GaAs Homoepitaxy, *Phys. Rev. B* 56:13483– 13489 (1997).
- [Heyn und Harsdorff, 1997] Ch. Heyn und M. Harsdorff, Simulation of GaAs Growth and Surface Recovery with Respect to Gallium and Arsenic Surface Kinetics, *Phys. Rev. B* **55**:7034–7038 (1997).
- [Houng et al., 1994] Y. M. Houng, B. W. Liang, M. R. T. Tan, S. Y. Wang und D. E. Mars, InGaAs(0,98µm)/GaAs Vertical Surface Emitting Laser Grown by Gas–Source Molecular Beam Epitaxy, J. Cryst. Growth 136:216–220 (1994).
- [van Hove et al., 1983] J. M. van Hove, C. S. Lent, R. P. Pukite und P. I. Cohen, Damped Oszillations in Reflection High Energy Diffraction During GaAs MBE, J. Vac. Sci. Technol. B 1:741–746 (1983).
- [Hrivnák, 1989] L. Hrivnák, Phys. Stat. Sol. (a) 116:K73 (1989).
- [Iga et al., 1988] K. Iga, F. Koyama und S. Kinoshita, Surface Emitting Semiconductor Lasers, *IEEE J. Quantum Electron.* 24:1845–1855 (1988).
- [Joyce et al., 1986] B. A. Joyce, P. J. Dobson, J. H. Neave, K. Woodbridge und J. Zhang, Surf. Sci. Seiten 423–438 (1986).

- [Joyce et al., 1997] B. A. Joyce, J. L. Sudijono, J. G. Belk, H. Yamaguchi, X. M. Zhang, H. T. Dobbs, A. Zangwill, D. D. Vvedensky und T. S. Jones, A Scanning Tunneling Microscopy–Reflection High Energy Electron Diffraction–Rate Equation Study of the Molecular Beam Epitaxial Growth of InAs on GaAs(001), (110) and (111)A – Quantum Dots and Two– Dimensional Modes, Jpn. J. Appl. Phys. 36:4111–4117 (1997).
- [Joyce et al., 1998] P. B. Joyce, T. J. Krzyzewski, G. R. Bell, B. A. Joyce und T. S. Jones, Composition of InAs Quantum Dots on GaAs(001) : Direct Evidence for (In,Ga)As Alloying, *Phys. Rev. B* 58:R15981–15984 (1998).
- [Kapteyn et al., 1999] C. M. A. Kapteyn, F. Heinrichsdorff, O. Stier, R. Heitz, M. Grundmann, N. D. Zakharov, D. Bimberg und P. Werner, Electron Escape from InAs Quantum Dots, *Phys. Rev. B* 60:14265–14268 (1999).
- [Kipp et al., 2001] T. Kipp, L. Rolf, C. Schüller, D. Endler, Ch. Heyn und D. Heitmann, Selectively Enhanced Inelastic Light Scattering of Electronic Excitations in a Semiconductor Microcavity, *Phys. Rev. B* 63:195304–1– 195304–4 (2001).
- [Kirstaedter et al., 1994] N. Kirstaedter et al., Low Threshold, Large T_0 Injection Laser Emission from (InGa)As Quantum Dots, *Electron. Lett.* **30**:1416 (1994).
- [Koduvulev und Zangwill, 1999] H. M. Koduvulev und A. Zangwill, Epitaxial growth kinetics with interacting coherent islands, *Phys. Rev. B* **60**:R2204–R2207 (1999).
- [Landau und Lifschitz, 1979] L. D. Landau und E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der theoretischen Physik*, Band III Quantenmechanik, Akademie–Verlag, Berlin, 6. Auflage (1979).
- [Landolt-Bernstein, 1982] Landolt-Bernstein, Subvol. a: Physics of Group–IV Elements and III–V Compounds, in *Semiconductors III*, Band 17, Springer, Berlin (1982).
- [Lang, 1974] D. V. Lang, Deep–Level Transient Spectroscopy: A New Method to Characterize Traps in Semiconductors, J. Appl. Phys. 45:3023–3032 (1974).
- [Lange, 2000] Chr. Lange, persönl. Mitteilung (2000).
- [Lee et al., 1998] H. Lee, R. Lowe-Webb, W. Yang und P. C. Sercel, Determination of the Shape of Self–Organized InAs/GaAs Quantum Dots by Reflection High Energy Electron Diffraction, *Appl. Phys. Lett.* **72**:812–814 (1998).

- [Leonard et al., 1994a] D. Leonard, S. Fafard, Y. H. Zhang, J. L. Merz und P. M. Petroff, Structural and Optical Properties of Self–Assembled InGaAs Quantum Dots, J. Vac. Sci. Technol. B 12:2516 (1994a).
- [Leonard et al., 1993] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars und P. M. Petroff, Direct Formation of Quantum–Sized Dots from Uniform Coherent Islands of InGaAs on GaAs Surfaces, *Appl. Phys. Lett.* 63:3203–3205 (1993).
- [Leonard et al., 1994b] D. Leonard, K. Pond und P. M. Petroff, Critical Layer Thickness for Self-Assembled InAs Islands on GaAs, *Phys. Rev. B* 50:11687-11692 (1994b).
- [Lewis et al., 1985] B. F. Lewis, F. J. Grunthaner, A. Madhukar und T. C. Lee R. Fernandez, Reflection High Energy Diffraction Intensity Behaviour During Homoepitaxial Molecular Beam Epitaxy Growth of GaAs and Implications for Growth Kinetics and Mechanisms, J. Vacuum Sci. Technol. B 3:1317– 1322 (1985).
- [Luttinger, 1956] J. M. Luttinger, Quantum Theory of Cyclotron Resonance in Semiconductors: General Theory, *Phys. Rev.* **102**:1030 (1956).
- [Luttinger und Kohn, 1955] J. M. Luttinger und W. Kohn, Motion of Electrons and Holes in Perturbed Periodic Fields, *Phys. Rev.* **97**:869–883 (1955).
- [Márquez et al., 2001] J. Márquez, L. Geelhaar und K. Jacobi, Atomically Resolved Structure of InAs Quantum Dots, *Appl. Phys. Lett.* 78:2309–2311 (2001).
- [Matthews und Blakeslee, 1974] J. W. Matthews und A. E. Blakeslee, J. Cryst. Growth 27:118 (1974).
- [Matthews und Blakeslee, 1975] J. W. Matthews und A. E. Blakeslee, J. Cryst. Growth 29:273 (1975).
- [Maxwell, 1891] J. C. Maxwell, *Treatise on Electricity and Magnetism*, Band 2, New York (1891).
- [Miller, 1992] J. N. Miller, Flux Noise in Effusion Cells: A Key to Understanding Oval Defects?, J. Vac. Sci. & Tech. B 10:803–806 (1992).
- [Mirin et al., 1995] R. P. Mirin, J. P. Ibbetson, K. Nishi, A. C. Gossard und J. E Browers, 1.3 μ m Photoluminescence from InGaAs Quantum Dots on GaAs, *Appl. Phys. Lett.* **67**:3795–3797 (1995).

- [Moison et al., 1994] J. M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Lepronce, E. Andre und O. Vatel, Self–Organized Growth of Redular Nanometer–Scale InAs Dots on GaAs, *Appl. Phys. Lett.* 64:196 (1994).
- [Moll et al., 1998] N. Moll, M. Sheffler und E. Pehlke, Influence of Surface Stress on the Equilibrum Shape of Strained Quantum Dots, *Phys. Rev. B* 58:4566–4571 (1998).
- [Nabetani et al., 1994] Y. Nabetani, T. Ishikawa, S. Noda und A. Sasaki, Initial Growth Stage and Optical Properties of a Three–Dimensional InAs Structure on GaAs, *J. Appl. Phys.* **76**:347–351 (1994).
- [Neave und Joyce, 1978] J. H. Neave und B. A. Joyce, Structure and Stoichiometry of {100} GaAs Surfaces During Molecular Beam Epitaxy, J. Cryst. Growth 44:387–397 (1978).
- [Neave et al., 1983] J. H. Neave, B. A. Joyce, M. D. Johnson und N. Norton, Dynamics of Film Growth of GaAs by MBE from RHEED Observations, *Appl. Phys. A* Seiten 1–8 (1983).
- [Ngo et al., 1996] T. Ngo, P. M. Petroff, H. Sakaki und J. L. Merz, Simulation Model for Self–Ordering of Strained Islands in Molecular–Beam Epitaxy, *Phys. Rev. B* 53:9618–9621 (1996).
- [Parker, 1985] E. H. C. Parker, Herausgeber, The Technology and Physics of Molecular Beam Epitaxie, Plenum Press, New York (1985).
- [Ploog, 1985] K. Ploog, Retrospect and Prospects in MBE, in [Parker, 1985], Seite 647.
- [Price, 1991] G. L. Price, Critical–Thickness and Growth–Mode Transitions in Highly Strained In_xGa_{1-x}As Films, *Phys. Rev. Lett.* **66**:469–472 (1991).
- [Priester und Lannoo, 1995] C. Priester und M. Lannoo, Origin of Self-Assembled Quantum Dots in Highly Mismatched Heteroepitaxie, *Phys. Rev. Lett.* **75**:93–96 (1995).
- [Ramachandran et al., 1997] T. R. Ramachandran, R. Heitz, P. Chen und A. Madhukar, Mass Transfer in Stranski–Krastanov Growth of InAs on GaAs, *Appl. Phys. Lett.* **70**:640–642 (1997).
- [Ridley, 1988] B. K. Ridley, Quantum Processes in Semiconductors, Clarendon, Oxford (1988).

- [Rolf, 1999] L. Rolf, *Ramanspektroskopie an Quantentöpfen in Microcavities*, Dissertation, Universität Hamburg (1999).
- [Savona et al., 1995] V. Savona, L.C. Andreani, P. Schwendimann und A. Quattropani, Quantum Well Excitations in Semiconductor Microcavities: Unified Treatment of Weak and Strong Coupling Regimes, *Solid State Communications* 93:733–739 (1995).
- [Schmidbauer et al., 1998] M. Schmidbauer, Th. Wiebach, H. Raidt, M. Hanke, R. Köhler und H. Wawra, Ordering of Self–Assembled Si_{1-x}Ge_x Islands Studied by Grazing Incidence Small–Angle X–Ray Scattering and Atomic Force Microscopy, *Phys. Rev. B* 58:10523–10531 (1998).
- [Slater, 1949] J. C. Slater, Electrons in Perturbed Periodic Lattices, *Phys. Rev.* **76**:1592–1601 (1949).
- [Solomon et al., 1995] G. S. Solomon, J. A. Trezza und J. S. Harris Jr., Substrate Temperature and Monolayer Coverage Effects on Epitaxial Ordering of InAs and InGaAs Islands on GaAs, *Appl. Phys. Lett.* **66**:991 (1995).
- [SpringThorpe et al., 1989] A. J. SpringThorpe, T. P. Humphreys, A. Majeed und W. T. Moore, In Situ Growth Rate Measurements During Molecular Beam Epitaxy Using an Optical Pyrometer, *Appl. Phys. Lett.* 55:2138–2140 (1989).
- [Stranski und von Krastanov, 1939] I. N. Stranski und L. von Krastanov, Akad. Wiss. Lit. Mainz Abh. Math. Naturwiss. Kl. IIb **146**:797 (1939).
- [Sudijono et al., 1993] J. Sudijono, M. D. Johnson, M. B. Elowitz, C. W. Snyder und B. G. Orr, *Surf. Sci.* 280:247–257 (1993).
- [Sugawara, 1999] M. Sugawara, *Self–Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots*, Band 60, Academic Press, San Diego (1999).
- [Svelto, 1989] O. Svelto, *Principles of Lasers*, Plenum Press, New York and London, dritte Auflage (1989).
- [Sze, 1981] S. M. Sze, Physics of Semiconductor Devices, John Wiley & Sons, New York (1981).
- [Tatebayashi et al., 2001] J. Tatebayashi, M. Nishioka und Y. Arakawa, Over 1.5 μm Light Emission from InAs Quantum Dots Embedded in InGaAs Strain– Reducing Layer Grown by Metalorganic Chemical Vapor Deposition, *Appl. Phys. Lett.* **78**:3469–3471 (2001).

- [Thurmond, 1975] C. D. Thurmond, The Standard Thermodynamic Functions for the Formation of Electrons and Holes in Ge, Si, GaAs and GaP, *J. Electrochem. Soc.* Seiten 1133–1141 (1975).
- [Volmer und Weber, 1926] M. Volmer und A. Weber, Z. Phys. Chem. **119**:277 (1926).
- [Vrehen, 1968] Q. H. F. Vrehen, Interband Magneto–Optical Absorption in Gallium Arsenide, J. Phys. Chem. Solids Seiten 129–141 (1968).
- [Wagner, 2001] D. Wagner, *Photolumineszenz an selbstorganisierten CdTe- und InAs-Quantenpunkten*, Diplomarbeit, Univesität Hamburg (2001).
- [Wasilewski et al., 1991] Z. R. Wasilewski, G. C. Aers, A. J. SpringThorpe und C. J. Miner, Growth Uniformity Studies in Molecular Beam Epitaxie, J. Cryst. Growth 111:70–74 (1991).
- [Wu et al., 1997] W. Wu, J. R. Tucker, G. S. Solomon und J. S. Harris Jr., Atom–Resolved Scanning Tunneling Microscopy of Vertically Ordered In-As Quantum Dots, *Appl. Phys. Lett.* **71**:1083–1085 (1997).
- [Yariv, 1989] A. Yariv, *Quantum Electronics*, John Wiley & Sons, New York, dritte Auflage (1989).
- [Yokoyama et al., 1990] H. Yokoyama, K. Nishi, T. Anan, H. Yamada, S. D. Brorson und E. P. Ippen, Enhanced Spontaneous Emission From GaAs Quantum Wells in Monolithic Microcavities, *Appl. Phys. Lett.* 57:2814– 2816 (1990).
- [Yu und Cardona, 1999] P. Y. Yu und M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors*, Springer–Verlag, Berlin Heidelberg New York, zweite Auflage (1999).
- [Zhang et al., 2000] K. Zhang, Ch. Heyn, W. Hansen, Th. Schmidt und J. Falta, Ordering and Shape of Self–Assembled InAs Quantum Dots on GaAs(001), *Appl. Phys. Lett.* **76**:2229–2231 (2000).

Index

AlAs, 5ff, 33ff, 37, 40f, 75, 79, 81 Aluminiumarsenid, siehe AlAs Bandlücke, 8f, 47f, 92, 119ff Bandstruktur, 6f Bedeckung, 31 InAs-, 40f, 85, 88, 94, 96, 98ff, 107 kritische, 38ff, 45 Benetzungsschicht, siehe Wetting Layer Beugungsmuster, 43ff, 97 InAs auf GaAs, 44ff Bohrradius, 13 Brechungsindex, 17*f*, 20*f*, 24 Brillouinzone, 7 Chevrons, 45 Confinement, siehe Einschlußpotential Coulombwechselwirkung, 11, 48 DBRs, siehe Spiegel, dielektrische Desorption, 29 As-, 33, 76 In-, 42, 44 Dielektrizitätskonstante, 12, 16f, 69, 71f, 74, 119 Diffusion, 28, 32f, 39ff, 85, 97, 103 -senergie, 39 Diskontinuitätsparameter, 10 Durchflußkryostat, 50f Effekte nichtlineare, 77, 110, 116, 118

Effektive Masse, 8 Effektivmassennäherung, 7 Effusionszelle, 2, 27ff, 33, 36, 59, 61f, 64f, 72f, 80f, 83, 97, 124 Effusionszellentemperatur, siehe Zellentemperatur Einschlußpotential, 8ff, 13, 38, 98 Einteilchennäherung, 6 Elektron, 6f, 9ff, 47f, 86ff, 98, 105, 107, 120 Exziton, **11***ff*, 48, 87, 94, 107 -enbindungsenergie, 13, 87, 97, 107 Flußkalibrierung, 2, 29, 57, 66 Pyrometer, 70ff, 78, 123

RHEED, 33ff, 62, 74ff, 123 Flußrate, 2, **28***ff*, 33*ff*, 41, 43, 58*f*, 61ff, 71ff, 78, 85, 95f, 123 Fourier-Analyse, 76 Fourier-Spektrometer, 49, 52ff Frank-van der Merwe-Wachstum, 36f Fresnel-Formeln, 15ff, 20ff, 24, 57, 69, 72, 82, 112, 114f GaAs, 1ff, 5ff, 11, 27, 33ff, 37ff, 42, 44, 69, 74*f*, 79, 81, 85*f*, 92*f*, 110, 123 Galliumarsenid, siehe GaAs Gitterkonstante, 6, 8, 39, 43, 45 Größenverteilung, 3, 40ff, 76 Grenzflächenrauhigkeit, 30ff, 43, 45, 62, 69

In situ Messung der Flußrate, 61f, 67 In-situ Überwachung, 76, **78***ff*, 124 InAs, 2, 5ff, 37, 39ff, 44, 88, 92, 98, 101*f*, 123 Indiumarsenid, siehe InAs Inselwachstum. siehe Volmer-Weber-Wachstum Interdiffusionsenergie, 39 Interferometrie pyrometrische, 2, 29, 67ff, 82f, 123 Intermixing, 40ff, 98, 100, 102 Lagen-plus-Inselwachstum, sie-Stranski-Krastanovhe Wachstum Lagenwachstum, siehe Frank-van der Merwe-Wachstum Leaky Modes, **111**, 121*f* Loch, 9, 12f, 47f, 88, 98, 107 Mainshutter, 33, 74 Materialkonstanten, 7 MBE, 1f, 27ff, 36ff, 41, 57, 64, 67f, 78, 82f, 86f, 92, 94, 103, 108, 111, 123*f* Mikroresonator, 2f, 15, 21f, 24, 54, 57ff, 76, 81, 87, 109f, 112, 123f Molekularstrahlepitaxie, siehe MBE Monolage, 28f, 32, 37, 39, 45f, 94 Netzebene, siehe Monolage Nukleationszentrum, 40, 42, 102 Oberflächenenergie, 39 Oberflächenrauhigkeit, siehe Grenzflächenrauhigkeit Oberflächenrekonstruktion, 30, 44, 97

Oberflächentemperatur, siehe Substrattemperatur Oxiddesorption, 97 Photolumineszenz, 2, 38, 40f, 47ff, 76f, 85, 87ff, 91ff, 110ff, 123 -Meßaufbau, 49ff Polarisation, 15*ff*, 25, 69, 112*ff* Punktdefekt, 29, 48, 76, 88 Pyrometer, 2, 29, **67***ff*, 123*f* Detektionswellenlänge, 70ff, 74, 82 Quantenausbeute, 3, 85, 88, 94, 98, 107 Quantenpunkt, 1, 10f, 22, 38, 48 InAs-, 2f, 37ff, 76, 85ff, 91ff, 123f -größe, 41ff, 96, 99, 101, 103, 107 Quantentopf, 2, 8ff, 22, 38, 59, 94, 109 Ratengleichung, 39 Reflection High Energy Diffraction, siehe RHEED Reflektivität, 15ff, 31f, 55, 119f Reflexion, 15, 55, 68 -smessung, 54f, 58, 60, 63, 65, 77, 110, 118ff Rekombination, 48, 88, 94*f*, 97*f*, 105, 107, 119 Relaxation, 48 Resonatormode, 23f, 54f, 57ff, 63, 65, 76f, 109, 111, 113, 115, 118ff RHEED, 1f, 29ff, 43ff, 61ff, 67, 74ff, 78, 97, 123 -Oszillationen, 29ff, 61f, 75 -Reflex, 30, 34, 43, 46 Schichtdicke, 2, 17, 21, 38, 46, 59,

65, 67, 69, 72*f*, 76*f*, 80, 82, 94, 124 kritische, siehe Bedeckung, kritische Schrödingergleichung, 6, **10**ff Segregation, 40 Shutter, 28, 32, 33, 35, 73, 81ff Shuttertransiente, 32f, 35, 36, 67, 75*f*, 80, 83 Spiegel dielektrische, 2f, 17ff, 23, 58, 62, 77, 85, 94, 120 Spiegelreflex, **30***ff*, 43*f* Stoppband, 19f, 22, 57, 111, 121 Stranski-Krastanov-Wachstum, 37ff Substrattemperatur, 28f, 33, 39ff, 67, 85, 88, 94*ff*, 101*ff* Tiegel, siehe Effusionszelle Transmission, 15, 43, 55, 72, 82 -smessung, 54*f*, 77, 110, 117*ff* Transmissivität, 15ff, 55, 120 Vermischung, siehe Intermixing Verspannung, 39f, 42, 45, 88 -senergie, 39 Volmer-Weber-Wachstum, 37 Wachstumsgeschwindigkeit, siehe Flußrate Wachstumsmodell, 36ff Wachstumsparameter, 40, 85, 94ff, 101, 103 Wachstumspause, 32, 41*f*, 62, 103*f* Wachstumstemperatur, siehe Substrattemperatur Wetting Layer, **39***f*, 45, 94 Zellenfluß, siehe Flußrate Zellentemperatur, 28, 32f, 36, 59, 64, 82

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all denjenigen meinen persönlichen Dank aussprechen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

- Herrn Prof. Dr. D. Heitmann für die Möglichkeit, diese Arbeit in seiner Forschungsgruppe anfertigen zu können, für die sehr gute Betreuung und die hilfreichen Diskussionen,
- Herrn Prof. Dr. G. Huber f
 ür die Übernahme des Zweitgutachtens der Dissertation sowie f
 ür seinen Einsatz als Sprecher des Graduiertenkollegs "Felder und lokalisierte Atome — Atome und lokalisierte Felder; Spektroskopie an lokalisierten atomaren Systemen",
- Herrn Prof. Dr. W. Hansen für die Übernahme des Zweitgutachtens der Disputation und für die enge Zusammenarbeit mit seiner Gruppe,
- Dr. C. Heyn für die geduldigen Erläuterungen zum MBE–Wachstum sowie für anregende Diskussionen,
- Dr. C. Schüller für seine Fähigkeit, komplizierte Sachverhalte einfach formulieren zu können sowie für aufschlußreiche Diskussionen,
- S. Schnüll für ihren unermüdlichen Einsatz bei der Probenherstellung,
- Herrn Ahrens und Herrn Hatje für die reibungslose Versorgung mit Chemikalien und Helium,
- Herrn Benecke und der gesamten feinmechanischen Werkstatt für die zuverlässige Ausführung von Aufträgen,
- allen Mitgliedern der Gruppen H und W für die vielen Gespräche und das tolle Arbeitsklima,
- meinen Freunden und allen, denen Dank gebührt,
- Martina dafür, daß sie so viel wunderschöne Zeit mit mir verbringt,
- und meiner gesamten Familie, derer Unterstützung ich jederzeit sicher sein konnte.