

# Ortsaufgelöste Spektroskopie an Halbleiterstrukturen



DISSERTATION

zur

Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)

dem

Fachbereich Physik  
der Philipps-Universität Marburg

vorgelegt von

**Mirko Leuschner**  
aus Lohra

Marburg/Lahn 2003

Vom Fachbereich Physik der Philipps-Universität Marburg  
als Dissertation angenommen am: ..... 30.01.2004

Erstgutachter: ..... Prof. Dr. W. W. Rühle  
Zweitgutachter: ..... Prof. Dr. H. Giessen

Tag der mündliche Prüfung: ..... 17.02.2004

I haven't failed, I've found 10,000 ways that don't work.  
Thomas Edison

Mag sein, die Strudel reißen uns hinab:  
mag sein, wir landen an den Glücklichen Inseln  
und seh'n den großen Achill, den wir einst kannten.  
Wird uns auch viel genommen, bleibt doch viel;  
und haben wir auch nicht mehr die Kraft,  
die einst den Himmel und die Erde hat bewegt;  
Wir sind doch, was Wir sind,  
die immer gleiche Glut heroischer Herzen,  
geschwächt von Zeit und Schicksal,  
stark jedoch im Willen,  
unverzagt zu kämpfen,  
zu suchen,  
und zu finden  
irgendwann.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	Eigenschaften von Halbleitern . . . . .	3
2.1.1	Bandstruktur und die Eigenschaften von <i>GaAs/AlAs</i> . . . . .	3
2.1.2	Quantenfilme . . . . .	6
2.1.3	Exzitonen und Biexzitonen . . . . .	8
2.2	Unordnung in Quantenfilmen . . . . .	11
2.2.1	Niveauabstoßung und Autokorrelationsspektroskopie . . . . .	13
2.3	Optische Anregungen in Halbleitern . . . . .	14
2.3.1	Zeitliche Dynamik einer optischen Anregung . . . . .	15
2.3.2	Räumliche Dynamik in Halbleiterquantenfilmen . . . . .	17
2.4	Verdünnte magnetische Halbleiter . . . . .	20
2.5	Optisches Auflösungsvermögen . . . . .	21
2.5.1	Beugungsbegrenztes Fokussieren von Licht . . . . .	21
2.5.2	Auflösungsvermögen des Mikroskopes . . . . .	23
2.5.3	Festkörper-Immersionslinse . . . . .	24
2.5.4	Optische Nahfeldmikroskopie . . . . .	25
<b>3</b>	<b>Experimentelle Methoden</b>	<b>29</b>
3.1	Photolumineszenz . . . . .	29
3.1.1	Mikro-Photolumineszenz . . . . .	30
3.1.2	Zeitaufgelöste Photolumineszenz . . . . .	32
3.2	Anrege-Abfrage-Spektroskopie . . . . .	35
3.2.1	Ortsaufgelöste Anrege-Abfrage-Spektroskopie . . . . .	37
3.3	Depolarisations-SNOM . . . . .	39
<b>4</b>	<b>Spektroskopie an <i>GaAs</i>-Quantenfilmen</b>	<b>43</b>
4.1	Probencharakterisierung . . . . .	43
4.2	Ortsaufgelöste Photolumineszenz an homogenen Quantenfilmen . . . . .	46
4.2.1	Einfluss des Auflösungsvermögens . . . . .	46
4.2.2	Intensitätsabhängigkeit . . . . .	48
4.2.3	Temperaturabhängigkeit . . . . .	54

4.3	Ortsaufgelöste Photolumineszenz an inhomogenen Quantenfilmen . . .	59
4.3.1	Einfluss des Auflösungsvermögens . . . . .	59
4.3.2	Intensitätsabhängigkeit . . . . .	60
4.3.3	Temperaturabhängigkeit . . . . .	63
4.3.4	Autokorrelationsspektroskopie . . . . .	64
4.4	Zeitaufgelöste Photolumineszenz . . . . .	69
4.5	Zusammenfassung . . . . .	78
<b>5</b>	<b>Ortsaufgelöste Anrege-Abfrage-Spektroskopie</b>	<b>79</b>
5.1	Probencharakterisierung . . . . .	79
5.2	Räumliche Ausbreitung resonant erzeugter Exzitonen . . . . .	80
5.3	Zusammenfassung . . . . .	88
<b>6</b>	<b>Optische Nahfeld-Mikroskopie an <math>MnAs</math>-Clustern</b>	<b>89</b>
6.1	Probencharakterisierung und Messungen . . . . .	89
6.2	Zusammenfassung . . . . .	93
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>95</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>99</b>

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Bandstruktur von <i>GaAs</i> . . . . .	4
2.2	Niveauschema für optische Übergänge im Quantenfilm . . . . .	5
2.3	Bandlücke wichtiger Halbleiter . . . . .	6
2.4	Quantenfilm . . . . .	7
2.5	Absorption von <i>GaAs</i> . . . . .	8
2.6	Niveauschema für Biexzitonen . . . . .	10
2.7	Quantenfilmiseln . . . . .	13
2.8	Niveauverteilung und Autokorrelation . . . . .	14
2.9	Absorptionsspektrum und Anregungsschema freier Ladungsträger . . . . .	15
2.10	Optischer Anregungsverlauf in einem Volumenhalbleiter . . . . .	16
2.11	Linsen-Abbildung . . . . .	21
2.12	Airyfunktion . . . . .	22
2.13	Bildentstehung im Mikroskop nach Abbé. . . . .	23
2.14	Probe mit SIL . . . . .	24
2.15	Anordnung der Apertur im Nahfeld des Objekts . . . . .	25
3.1	Photolumineszenz . . . . .	29
3.2	Mikro-Photolumineszenz . . . . .	30
3.3	Streak-Kamera Aufbau . . . . .	32
3.4	Schmierbildkamera Aufnahme . . . . .	33
3.5	Schema des Ratengleichungsmodells . . . . .	34
3.6	Anrege-Abfrage-Spektroskopie . . . . .	35
3.7	Spektrales Lochbrennen und Ausbleichen der Exzitonresonanz . . . . .	36
3.8	Mikro-Pump-Probe Aufbau . . . . .	37
3.9	Aufbau Depolarisations-SNOM . . . . .	39
3.10	Signalentstehung im Depolarisations-SNOM . . . . .	40
3.11	Geätzte Faser . . . . .	40
3.12	Modi der Abstandsregelung . . . . .	41
4.1	Photolumineszenz der Probe <i>Bo#1294</i> . . . . .	44
4.2	Anregungsdichte in den einzelnen Quantenfilmen . . . . .	45
4.3	Spektren der drei dicksten Quantenfilme . . . . .	46
4.4	Normierte Spektren des 19,8 nm Quantenfilm . . . . .	47

4.5	Abhängigkeit von der Anregungsdichte . . . . .	48
4.6	Der 19,8nm Quantenfilm für verschiedene Anregungsdichten . . . . .	49
4.7	Anpassung der Linienform für niedrige Anregungsdichte . . . . .	50
4.8	Anpassung der Linienform für hohe Anregungsdichten . . . . .	51
4.9	Energetische Lage der Maxima . . . . .	52
4.10	Dispersion für Exzitonen und Biexzitonen . . . . .	53
4.11	Anpassung der Linienform für heiße Biexzitonen . . . . .	54
4.12	Temperaturabhängigkeit der Lumineszenz . . . . .	55
4.13	Lage der Maxima . . . . .	56
4.14	Vergleich mit verschiedenen Modellen . . . . .	58
4.15	Einfluss des Auflösungsvermögens bei inhomogenen Quantenfilmen . . . . .	59
4.16	Intensitätsabhängigkeit bei inhomogenen Quantenfilmen . . . . .	60
4.17	Spektren an verschiedenen Proben-Positionen . . . . .	61
4.18	Intensitätsabhängigkeit einzelner Linien . . . . .	62
4.19	Temperaturabhängigkeit inhomogener Quantenfilme . . . . .	63
4.20	Gemittelte Autokorrelation . . . . .	65
4.21	Gefilterte Autokorrelation . . . . .	66
4.22	Autokorrelation eines einzelnen Spektrums . . . . .	67
4.23	Zeitintegrierte Spektren . . . . .	69
4.24	Temperatur der Quantenfilme . . . . .	71
4.25	Anstiegs- und Abfallzeiten, 19,8 nm Film . . . . .	72
4.26	Anstiegs- und Abfallzeiten, 15,2 nm Film . . . . .	73
4.27	Anstiegs- und Abfallzeiten, 12,2 nm und 9,9 nm Film . . . . .	74
4.28	Anstiegs- und Abfallzeiten heißer Ladungsträger . . . . .	75
4.29	Transienten der Exziton- und Biexziton-Linie des 19,8 nm Films . . . . .	77
5.1	Probenstruktur und Bandkantenverlauf . . . . .	80
5.2	Lineare Absorption der Probe . . . . .	81
5.3	Dynamik des Schwerlohexzitons (1. Messung) . . . . .	82
5.4	Dynamik des Schwerlohexzitons (2. Messung) . . . . .	83
5.5	Bestimmung der Transportart der Ladungsträger (2. Messung) . . . . .	84
5.6	Dynamik des Schwerlohexzitons (2. Messung) . . . . .	85
5.7	Lineare und logarithmische Darstellung der Exzitodynamik . . . . .	87
6.1	Topographie und Depolarisations-Signal, MnAs-Cluster . . . . .	90
6.2	Depolarisations-Signal für verschiedene Analysator-Stellungen . . . . .	91
6.3	Depolarisations-Signal eines einzelnen Clusters . . . . .	92



# Tabellenverzeichnis

2.1	Eigenschaften idealer zwei- und dreidimensionaler Exzitonen . . . . .	9
4.1	Varshni-Parameter . . . . .	57
4.2	Proben-Temperatur . . . . .	57
4.3	Verhältnis der Ladungsträgerdichten . . . . .	70
5.1	Ladungsträgerdichten . . . . .	81



# 1 Einleitung

Viele technische Entwicklungen der letzten Jahre basieren auf Halbleitern. Dabei geht der Trend zu immer kleineren Strukturen und immer schnelleren Bauelementen. Neben elektronischen Bauelementen haben optoelektronische Komponenten zunehmend an Bedeutung gewonnen. Die Anwendungen reichen von Leuchtdioden als effiziente Lichtquellen bis zu Laserdioden zur Datenübertragung in der Telekommunikation oder als Schreib- und Leseköpfe für optische Datenträger in der Unterhaltungselektronik.

Die optischen Eigenschaften der Bauelemente lassen sich sowohl durch die Zusammensetzung des Halbleitermaterials als auch durch Strukturierung gezielt beeinflussen. Die heutigen Epitaxieverfahren erlauben das monokristalline Abscheiden von verschiedenen Halbleitermaterialien in Schichten, die nur wenige Monolagen dick sind. Allerdings gewinnt die Unordnung immer mehr an Bedeutung, je dünner die Schichten werden.

Bei der Beschreibung von Festkörpern wird üblicherweise von einem perfekt geordneten Kristall ausgegangen, bei dem sich eine klar definierte Einheitszelle beliebig oft wiederholt. Unordnung bedeutet Inhomogenitäten in der räumlichen Kristallstruktur der Halbleiter, die in räumlicher Fluktuation der elektronischen Struktur resultieren. Dadurch hat die Unordnung aber einen entscheidenden Einfluss auf die optischen Eigenschaften der Halbleiter. Dies zeigt sich durch eine inhomogene Verbreiterung der optischen Spektren, die durch die Überlagerung vieler, gegeneinander verschobener Spektrallinien entsteht. Diese Verbreiterung bietet bereits eine erste Möglichkeit zur Charakterisierung der Unordnung.

Die Kombination der Spektroskopie mit der Ortsauflösung der Mikroskopie erlaubt eine wesentlich weitreichendere Untersuchung der Unordnungseffekte, da hier einzelne homogen verbreiterte Linien in der inhomogenen Verbreiterung beobachtet werden können. Dies wird vor allem bei der ortaufgelösten Photolumineszenz angewandt.

Ein Effekt, der für ungeordnete Systeme vorhergesagt wurde, ist die quantenmechanische Niveau-Abstoßung. Dabei kommt es zu einer Aufspaltung zweier energetisch entarteter Niveaus, wenn deren Wellenfunktionen überlappen.

Kombiniert man die Mikroskopie mit zeitaufgelösten Verfahren, wie zum Beispiel der Anrege-Abfrage-Spektroskopie, so erhält man neben der räumlichen Information zusätzlich eine Aussage über die zeitliche Entwicklung. Dies ermöglicht die Unter-

suchung der räumlichen und zeitlichen Dynamik. Obwohl sich bei beiden Verfahren die Auflösung durch den Einsatz einer Festkörper-Immersionlinse deutlich steigern lässt, bildet dennoch das Beugungslimit eine fundamentale Grenze für die Ortsauflösung.

Eine häufig angewandte Möglichkeit, das Beugungslimit zu umgehen, stellt die optische Nahfeld-Mikroskopie dar. Dabei wird eine Sonde mit einer Öffnung kleiner als die Wellenlänge im Nahfeld der Probe, d.h. in einem Abstand wesentlich kleiner als die Wellenlänge, positioniert. Die Ortsauflösung ist dann nicht mehr durch die Beugung begrenzt, sondern nur noch durch die Größe der Öffnung. Zusätzlich zur Optik ermöglicht es die Nahfeld-Mikroskopie auch die Topographie der Probe an der gleichen Stelle mit hoher Auflösung zu messen. Allerdings kann die gleichzeitige Messung von Optik und Topographie zu Artefakten führen. Daher sollten beide Signale nur nacheinander aufgenommen werden. Ein weiterer Nachteil der Nahfeld-Mikroskopie ist der geringe Transmissionsgrad der Sonden.

Ziel dieser Arbeit ist die Anwendung spektroskopischer Methoden mit hoher Ortsauflösung auf Halbleiterstrukturen.

Nachdem im Kapitel 2 die theoretischen Grundlagen besprochen wurden, werden im Kapitel 3 die experimentellen Methoden vorgestellt.

Der Hauptteil der Arbeit bildet die ortsaufgelöste Photolumineszenz an Quantenfilmen mit unterschiedlich stark ausgeprägter Unordnung in Kapitel 4.

Im Kapitel 5 wird dann die raumzeitliche Dynamik optischer Anregung untersucht. Abschließend wird in Kapitel 6 die optische Nahfeld-Mikroskopie auf ferromagnetische Strukturen angewandt.

# 2 Grundlagen

In diesem Kapitel sollen die wichtigsten Grundlagen zum Verständnis des Ergebnisteils erläutert werden. Zunächst sind grundlegende Eigenschaften des verwendeten Halbleitermaterials *GaAs/AlAs* und der Quantenfilme dargestellt, um auf die spezifischen Fragestellungen und Diskussionen im Hauptteil der Arbeit vorzubereiten. Danach werden die Exzitonen und Biexzitonen sowie der Einfluss der Unordnung in Quantenfilmen diskutiert. Zuletzt wird das optische Auflösungsvermögen behandelt.

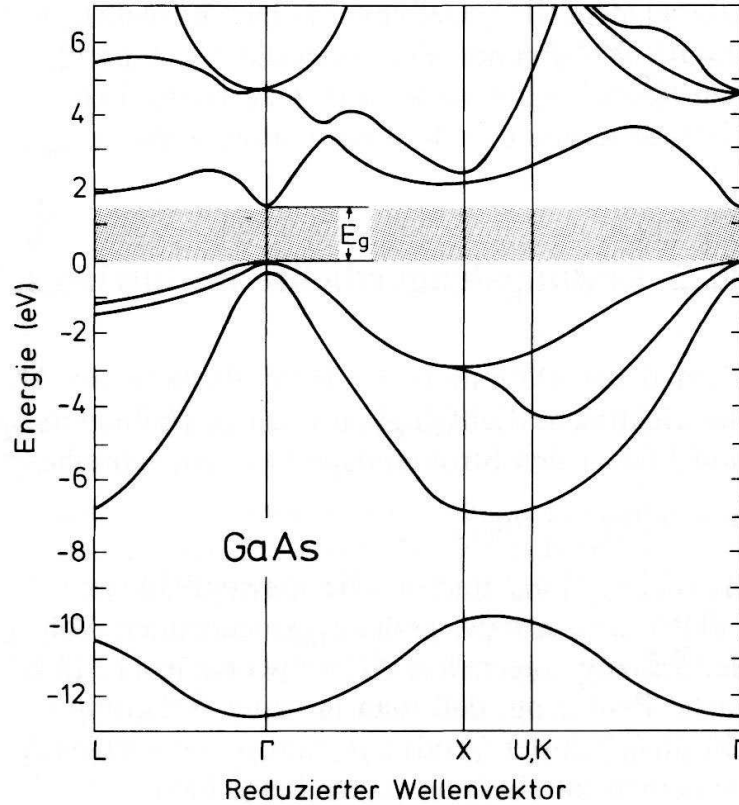
## 2.1 Eigenschaften von Halbleitern

### 2.1.1 Bandstruktur und die Eigenschaften von *GaAs/AlAs*

In einem Kristall sind die Atome periodisch angeordnet. Aufgrund dieser Periodizität bilden sich die Energiebänder des Materials aus. Die Beschreibung eines Elektrons in einem periodischen Potential liefert einen Zusammenhang zwischen der Energie  $E$  des Elektrons und seinem Kristallimpuls  $\hbar\vec{k}$ , wobei  $\vec{k}$  der Wellenvektor ist [Ash01].

In Abbildung 2.1 ist die Elektronenenergie als Funktion des Wellenvektors für verschiedene Kristallachsen für das Halbleitermaterial *GaAs* dargestellt. Dieses Schema wird als Bandstruktur bezeichnet. Im Grundzustand eines Halbleiters (bei  $T = 0\text{ K}$ ) sind die energetisch tiefer liegenden Bänder vollständig besetzt. Diese Bänder werden Valenzbänder genannt. Die darüber liegenden Bänder sind unbesetzt und werden als Leitungsbander bezeichnet. In den meisten Fällen es ausreichend, nur das oberste Valenzband und das unterste Leitungsband zu betrachten. Wenn das Maximum des Valenzbandes und das Minimum des Leitungsbandes beim gleichem Wellenvektor (meistens am  $\Gamma$ -Punkt in der Brillouin-Zone bei  $k = 0$ ) liegen, spricht man von einem direkten Halbleiter. Der minimale Abstand zwischen Leitungs- und Valenzband bezeichnet man als Bandlücke  $E_g$  (z.B. im *GaAs*:  $E_g = 1,52\text{ eV}$  bei  $T = 0\text{ K}$  [Vur01]).

Das Leitungsband von *GaAs* hat *s*-Charakter und ist daher nur zweifach spinentartet. Die Elektronen haben hier den Gesamtdrehimpuls  $J = \frac{1}{2}$  und nehmen so Magnetquantenzahlen von  $m_J = \pm\frac{1}{2}$  an. Das Valenzband dagegen hat *p*-Charakter, bei ihm kommt es am  $\Gamma$ -Punkt zu einer Entartung zwischen dem schwach gekrümmten Schwerlochband (engl.: *heavy hole*, *hh*) mit Magnetquantenzahl  $m_J = \pm\frac{3}{2}$  und

Abbildung 2.1: Bandstruktur von *GaAs*

dem stark gekrümmten Leichtlochband (engl.: *light hole*, *lh*) mit  $m_J = \pm\frac{1}{2}$ . Beide Valenzbänder haben einen Gesamtdrehimpuls von  $J = \frac{3}{2}$ . Das Split-Off-Band mit Gesamtdrehimpuls  $J = \frac{1}{2}$  ist durch Spin-Bahn-Kopplung energetisch weiter abgesenkt (bei *GaAs*:  $\Delta_{so} = 0,34 \text{ eV}$ ) und kann daher häufig vernachlässigt werden.

Den unterschiedlichen Krümmungen der Valenzbänder entsprechen die unterschiedlichen effektiven Massen. Die dazugehörigen effektiven Massen werden mit  $m_{lh}^*$  und  $m_{hh}^*$  und die der Elektronen mit  $m_e^*$  bezeichnet. Diese unterschiedlichen Massen der leichten und schweren Löcher führen zu einer Aufhebung der Entartung am  $\Gamma$ -Punkt sowohl in verspannten Strukturen als auch in Quantenfilmen. Außerdem sind diese Massen anisotrop, also unterschiedlich in verschiedene Gitterrichtungen [Ada94]. Die drei Valenzbänder sind zusätzlich zweifach spinentartet.

Die Forderung nach Drehimpulserhaltung zusammen mit dem Spin der Photonen von  $\pm 1$  führt zu wichtigen optischen Auswahlregeln. In Abbildung 2.2 sind diese optischen Auswahlregeln schematisch dargestellt. Rechtszirkular ( $\sigma^+$ ) polarisierte Photonen mit Spin  $+1$  können nur Elektronen entweder aus dem  $m_J = -\frac{3}{2}$  Schwerlochband in das  $m_J = -\frac{1}{2}$  Leitungsband anregen, oder aus dem  $m_J = -\frac{1}{2}$  Leichtlochband in das  $m_J = +\frac{1}{2}$  Leitungsband. Die anderen beiden Übergänge können

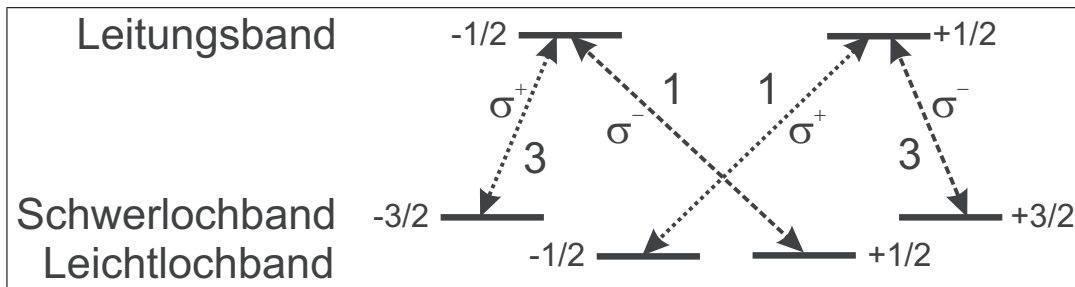


Abbildung 2.2: Niveauschema für die optischen Übergänge in Quantenfilmen zwischen hh-, lh-Band und Leitungsband.  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  bezeichnen die Richtung der zirkularen Polarisation des Lichtfeldes, die Zahlen die relativen Intensitäten.

durch linkszirkular ( $\sigma^-$ ) polarisierte Photonen mit Spin  $-1$  angeregt werden. Neben elementaren Halbleitern wie Silizium oder Germanium gibt es eine Vielzahl von Verbindungshalbleitern. Der technisch wichtigste Verbindungshalbleiter ist *GaAs*, da er sich aufgrund seiner direkten Bandlücke für eine Vielzahl von optoelektronischen Bauelementen (z.B. Leuchtdioden, Laserdioden) eignet.

Für Quantenfilm-Strukturen wird ein zweites Halbleitermaterial mit einer größeren Bandlücke benötigt. Bevorzugt wird dafür *AlAs* oder *(AlGa)As* eingesetzt. Im Gegensatz zu *GaAs* liegt in *AlAs* das Minimum des Leitungsbandes nicht am  $\Gamma$ -Punkt, sondern nahe dem X-Punkt. Daher benötigt der energetisch günstigste Übergang hier die Einbindung eines Phonons, das den Unterschied im k-Vektor übernimmt. *AlAs* ist also ein Halbleiter mit einer indirekten Bandlücke. Weiterhin hat man bei dünnen Schichten in einem Übergitter den Einfluss der Streuung von Elektronen im X-Punkt in den  $\Gamma$ -Punkt zu berücksichtigen, da durch das Übergitter-Potential entlang der Wachstumsrichtung und Grenzflächenrauigkeit eine Symmetrierniedrigung hervorgerufen wird. Dadurch wird der verbotene Energieübergang vom X-Punkt zum  $\Gamma$ -Punkt teilweise erlaubt.

Für die wichtigsten binären Halbleiter und Elementhalbleiter sind in Abbildung 2.3 die Bandlückenenergien bei  $300\text{ K}$  gegen die Gitterkonstante aufgetragen. Diese Auftragung ist deshalb von besonderem Interesse, weil erwartungsgemäß solche Halbleiter besonders gut und störungsfrei epitaktisch aufeinander aufwachsen, bei denen die Gitterkonstanten übereinstimmen. Die Linien zwischen diesen Materialien beschreiben das Verhalten der Bandlücke bei der Bildung von ternären Mischkristallen, wie beispielsweise  $(\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x)\text{As}$ . Man erkennt leicht, dass die Epitaxie von Ge auf *GaAs*, und umgekehrt, zu besonders guter Gitteranpassung führt, und dass das Legierungssystem *(AlGa)As* eine Variation der Bandlücke zwischen etwas  $1,4\text{ eV}$  und  $2,2\text{ eV}$  gestattet, wobei wegen der extrem guten Gitteranpassung der beiden Komponenten *GaAs* und *AlAs* hervorragende kristalline Qualität beim Aufwachsen eines Halbleiters auf dem anderen zu erwarten ist [Iba99].

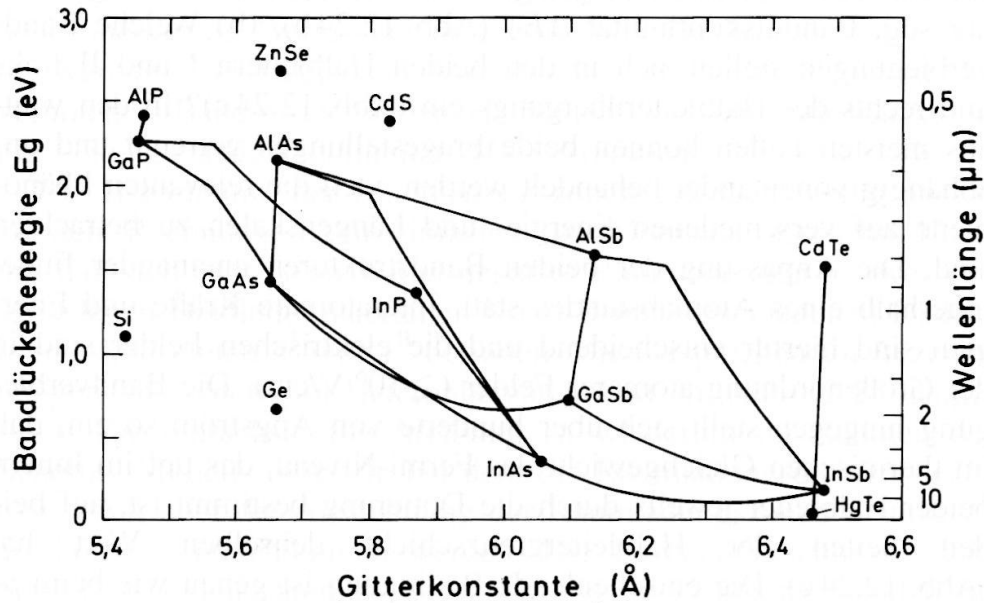


Abbildung 2.3: Bandlücke  $E_g$  wichtiger Element- und binärer Verbindungshalbleiter, aufgetragen gegen die Gitterkonstante bei 300 K

Besitzen die abgeschiedenen Materialien jedoch unterschiedliche Gitterkonstanten, so kommt es zu einer Verzerrung der Einheitszelle durch Spannungskräfte. Diese Verzerrung verändert die Bandstruktur. Dabei verschieben Leicht- und Schwerloch unterschiedlich stark, sodass die Entartung am  $\Gamma$ -Punkt aufgehoben wird. Ab einer kritischen Schichtdicke relaxiert die Verspannung und führt zu Gitterfehlern. Eine Möglichkeit, dies zu verhindern, ist das Abscheiden symmetrisch verspannter Schichten. Abwechseln zug- und druckverspannte Schichten stabilisieren den Kristall, sodass sich keine Verspannung über den ganzen Kristall aufbaut.

### 2.1.2 Quantenfilme

Mit den heutigen Epitaxieverfahren wie z.B. der Molekularstrahlepitaxie (engl.: *molecular beam epitaxy*, *MBE*) und der metallorganischen Gasphasenepitaxie (engl.: *metalorganic vapor phase epitaxy*, *MOVPE*) können verschiedene Halbleitermaterialien aufeinanderfolgend und monokristallin auf einem Substrat abgeschieden werden. Es ist möglich, Schichten bis zu Dicken von nur wenigen Nanometern durch die geeignete Wahl der verschiedenen Materialien herzustellen. Da die verschiedenen Halbleitern unterschiedliche Bandlücken besitzen, kann man durch geeignete Wahl der Schichten in der Wachstumsrichtung  $z$  eine Potentialtopfstruktur für die Ladungsträger erzeugen. Somit wird die freie Bewegung der Elektronen und Löcher in die  $xy$ -Ebene der dünnen Schicht einschränkt. Senkrecht zur Schicht bildet sich



ein diskretes Spektrum von Eigenzuständen mit ihren Eigenenergien sowohl für die Elektronen als auch für die Löcher aus. Solch eine Schichtstruktur bezeichnet man als Quantenfilm (engl.: *Quantum Well*).

Für unendlich hohe Potentialbarrieren können die Eigenwerte analytisch berechnet werden:

$$E_n = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left( \frac{n^2\pi^2}{d^2} + k_x^2 + k_y^2 \right), \quad n \in \mathbb{N}, \quad (2.1)$$

wobei  $d$  die Filmdicke ist und  $m^*$  die effektive Masse der Teilchen in z-Richtung. Für eine endliche Potentialbarriere erhält man transzendente Gleichungen für die Energie-Eigenwerte, die numerisch gelöst werden müssen.

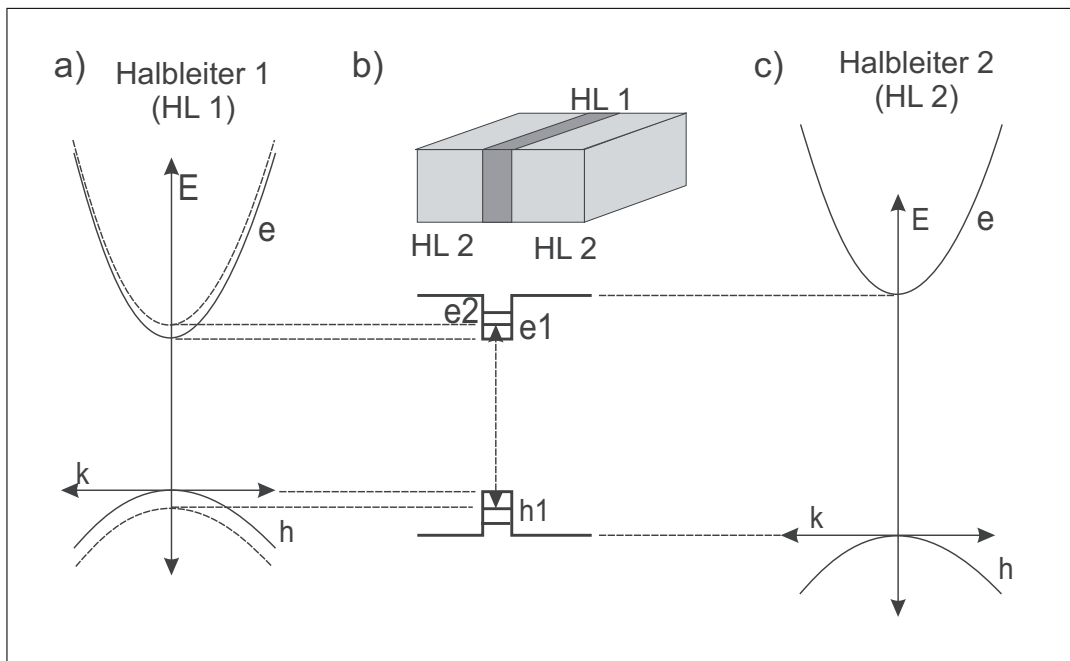


Abbildung 2.4: a) Schematische Bandstruktur eines direkten Volumenhalbleiters *HL1* im Bereich der Bandlücke mit einem Lochband. b) Darstellung eines Quantenfilms *HL1* und den beiden Barrieren *HL2* mit größerer Bandlücke als Funktion der Wachstumsrichtung. c) Schematische Bandstruktur des Barrierenmaterials *HL2* im Bereich der Bandlücke.

Die Dicke des Quantenfilms beeinflusst direkt den Wert der Quantisierungsenergie. Die Energielücke zwischen Valenz- und Leitungsband wird somit größer als die Bandlücke des Quantenfilmmaterials, da der Grundzustand der Elektronen energetisch höher als das Minimum des Leitungsbandes und der Grundzustand der Löcher niedriger als das Maximum des Valenzbandes liegt (siehe Abbildung 2.4).

### 2.1.3 Exzitonen und Biexzitonen

Bei tiefen Temperaturen findet man an Halbleitern bereits unterhalb der Bandkantenenergie  $E_g$  einen Einsatz der optischen Absorption. Häufig beobachtet man ein scharf strukturiertes Spektrum, wie in Abbildung 2.5 für *GaAs* gezeigt. Diese Strukturen werden auf die Anregung von Exzitonen zurück geführt.

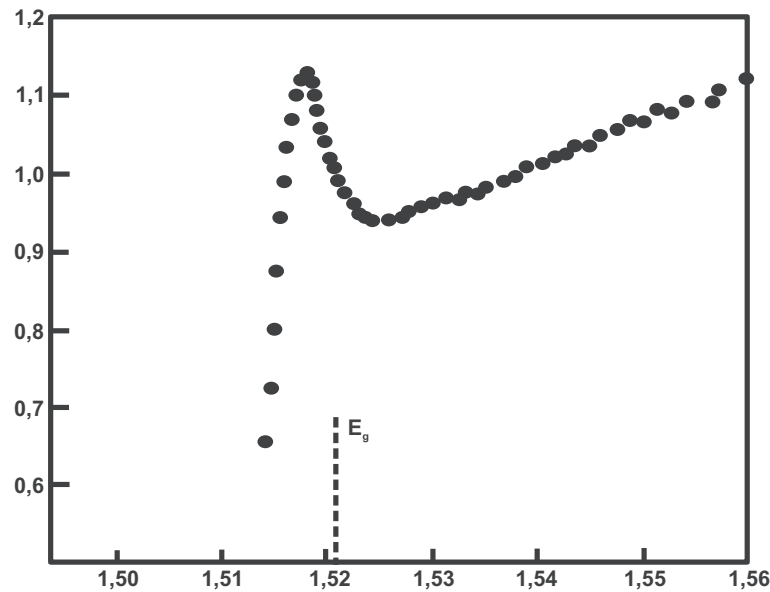


Abbildung 2.5: Absorption von *GaAs* im Bereich der Bandkante bei 21 K (aus [Kit89]).

Exzitonen sind gebundene Elektron-Loch-Paare, die sich durch die anziehende Coulomb-Wechselwirkung zwischen einem Elektron, das aus einem Valenzbandzustand angeregt wurde, und dem im Valenzband zurückbleibenden Loch bilden können. Zur korrekten Beschreibung der Exzitonen ist es notwendig, die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern zu berücksichtigen. Die einfachste mathematische Beschreibung eines solchen exzitonischen Zustandes wird durch das Wasserstoffmodell geliefert, in dem sich die möglichen Energiezustände  $E_{n,k}$  des aneinandergebundenen Elektron-Loch-Paares im Wesentlichen durch die Bohr'schen Eigenzustände ergeben :

$$E_{n,k} = E_g - \frac{m_r^* e^4}{32\pi^2 \hbar^2 \epsilon^2 \epsilon_0^2} \frac{1}{n^2} + \frac{\hbar^2 k^2}{2(m_e^* + m_h^*)}. \quad (2.2)$$

$E_g$  tritt als Summand auf, weil der Energienullpunkt üblicherweise auf die Valenzbandoberkante bezogen wird. Im Gegensatz zu den Eigenwerten des Wasserstoffatoms muss in Gleichung 2.2 anstelle der Elektronenmassen und der Protonenmasse die effektive Masse der Elektronen  $m_e^*$  und der Löcher  $m_h^*$  auftreten. Diese effektiven

Massen enthalten die Korrekturen für die Bewegung eines Elektrons oder Loches im Halbleiterkristall. Ferner muss die Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_0$  des Vakuums durch die Dielektrizitätskonstante  $\epsilon$  des Halbleitermaterials modifiziert werden, um der Abschirmung durch die Umgebung Rechnung zu tragen.

Da ein solches Elektronen-Loch-Paar sich quasi-frei im Kristall bewegen kann, muss in der Gesamtenergie dieses Zweiteilchensystems auch die kinetische Energie des Schwerpunktes berücksichtigt werden, wobei  $\vec{k}$  der der Schwerpunktsbewegung des Exzitons entsprechende Wellenvektor ist. Es gibt gebundene Lösungen der Exzitonen für  $E < 0$ . Diese werden mit den Quantenzahlen  $n, l, m$  klassifiziert. Die Energien sind gegeben durch  $E_n = -E_0 \frac{1}{n^2}$  mit der Rydbergenergie  $E_0$  und dem Bohrradius  $a_0$  :

$$E_0 = \frac{\hbar^2}{2m_r a_0^2} \quad \text{und} \quad a_0 = \frac{\hbar^2 \epsilon}{e^2 m_r} . \quad (2.3)$$

Für Wasserstoff ist  $a_0 = 0,5 \text{ \AA}$  und  $E_0 = 13,6 \text{ eV}$ . Für Exzitonen erhält man  $a_{0x} = 10 - 10^3 \text{ \AA}$  und  $E_{0x} = 1 - 100 \text{ meV}$ . Für  $E > 0$  hat man ein Kontinuum von Streulösungen bzw. ein Ionisationskontinuum. Die experimentellen Werte für *GaAs* sind  $E_{0x} = 4,9 \text{ meV}$  und  $a_{0x} = 11,2 \text{ nm}$  [Yu01].

Betrachtet man den Übergang vom Volumenhalbleiter zum idealen Quantenfilm, so wird die mögliche Bewegung der Elektronen und der Löcher von drei Dimensionen auf zwei Dimensionen reduziert. Dies wirkt sich auch auf die Exzitonen aus. Für ideal drei- oder zweidimensionale Halbleiter existieren analytische Lösungen der Wanniergleichung. Einige der wichtigsten Größen dieser beiden Grenzfälle sind in Tabelle 2.1 zusammengefasst. Man erkennt, dass die Bindungsenergie im Zweidimensionalen viermal so hoch ist wie im Dreidimensionalen.

	3-D	2-D
Energieniveaus	$-E_B^{3d} \cdot 1/n^2$	$-E_B^{3d} \cdot 1/(n - 1/2)^2$
$E_B^{1S}$	$E_B^{3d}$	$4E_B^{3d}$
$E_B^{1S} : E_B^{2S}$	4:1	9:1
1S Exzitonradius	$a_0$	$a_0/2$
2S Exzitonradius	$2a_0$	$3a_0/2$

Tabelle 2.1: Vergleich idealer zwei- und dreidimensionaler Exzitonen (aus [Eut99])

Bei endlicher Barrierenhöhe steigt nun das Confinement nicht mehr monoton mit abnehmender Quantenfilmdicke  $L_Z$  an. Für sehr kleine Werte von  $L_Z$  dringt die Wellenfunktion so weit in die Barrieren ein, dass die Quantenfilm-Exzitonen mehr den Volumenexzitonen des Barrierenmaterials als zweidimensionalen Exzitonen des Quantenfilm-Materials ähneln. In experimentell bestimmten Abhängigkeiten der Exzitonbindungsenergie von der Quantenfilmdicke  $L_Z$  kann dies direkt beobachtet werden [Göb90b, Kim93]. Für große  $L_Z$  steigt die Bindungsenergie mit abnehmender Dicke an. Sie erreicht dann aber einen maximalen Wert und fällt für noch kleinere  $L_Z$

sogar wieder ab. Dies zeigt den nichtmonotonen Zusammenhang von Confinement und Quantenfilmdicke in realen Strukturen.

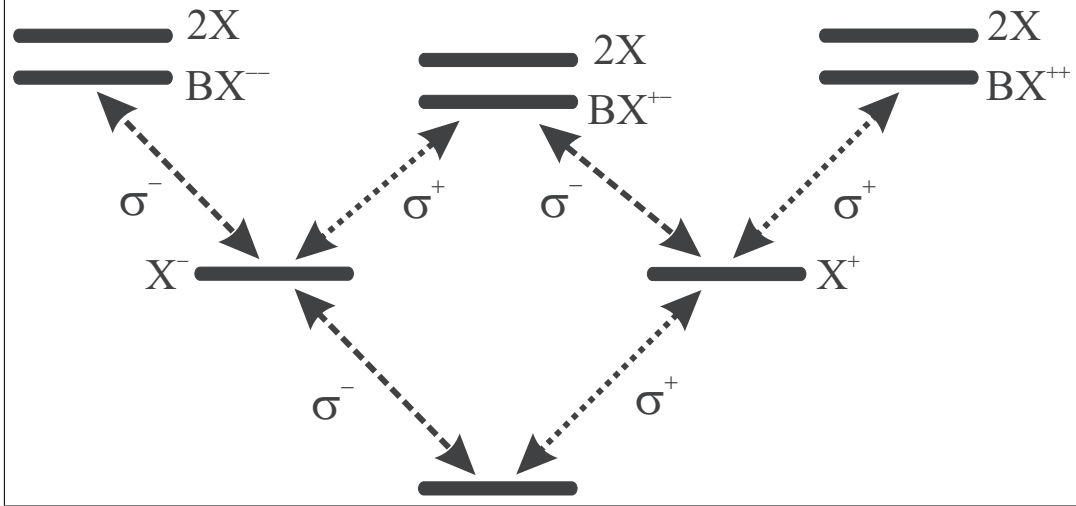


Abbildung 2.6: Niveauschema für die Spinauswahlregeln bei Biexzitonen.  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  bezeichnen die Richtung der zirkularen Polarisation des Lichts.  $X$  bezeichnet das Exziton,  $BX$  das Biexziton und  $2X$  das ungebundene Exzitonpaar. Mit den Hochindizes  $+/-$  wird der Exzitonspin symbolisiert.  $BX^{++}$  und  $BX^{--}$  sind nur möglich, wenn die Exzitonen aus *unterschiedlichen* Valenzbändern stammen (aus [Fin03]).

Analog zum Wasserstoffmolekül beobachtet man in Halbleitern exzitonische Moleküle aus zwei Elektron-Loch-Paaren, die als Biexzitonen bezeichnet werden. Hierfür muss das Vierteilchenproblem des Wasserstoffmoleküls gelöst werden. Als Vierteilchenproblem ist die entsprechende Schrödingergleichung nicht analytisch lösbar. Im Unterschied zum Wasserstoffproblem sind hier die Massen von Elektronen und Löchern von gleicher Größenordnung, sodass die Born-Oppenheimer-Näherung nicht anwendbar ist. Beispielsweise hängt die Biexzitonbindungsenergie  $E_{BX}$  sehr stark vom Massenverhältnis  $\sigma = \frac{m_e}{m_h}$  ab. Für  $\sigma = 0$  erhält man den Grenzfall des Wasserstoffmoleküls, während  $\sigma = 1$  dem Positronium-Molekül entspricht.

Bei Biexzitonen gibt es sowohl gebundene als auch ungebundene Zustände. Die gebundene Zustände zeichnen sich dadurch aus, dass die beiden Elektronen und die beiden Löcher jeweils unterschiedliche Spins haben, während diese im ungebundenen Fall gleich sind. Ein Biexziton aus zwei  $hh$ -Exzitonen besteht aus zwei Löchern mit  $m_J = -\frac{3}{2}$  und  $m_J = +\frac{3}{2}$  sowie aus zwei Elektronen mit  $m_J = -\frac{1}{2}$  und  $m_J = +\frac{1}{2}$ . Der Gesamtspin ist Null. Aus dieser Tatsache ergeben sich auch die optische Auswahlregeln für Biexzitonen, die in Abbildung 2.6 dargestellt sind. Um das  $hh-hh$ -Biexziton zu erzeugen, werden zwei Photonen mit entgegengesetzter zirkularer Polarisation benötigt ( $\sigma^+\sigma^-$ -Anregung).

Auch die Bildung gemischter Biexzitonen, bestehend aus einem  $hh$ - und einem  $lh$ -Exziton, ist möglich. Die beide Elektronen müssen unterschiedlichen Spin ( $m_J = -\frac{1}{2}$  und  $m_J = +\frac{1}{2}$ ) haben. Die beiden Löcher entstehen aus unterschiedlichen Bändern, und müssen auch unterschiedliche Spins haben. Ein solches gemischtes Biexziton kann also entweder mit  $\sigma^+\sigma^-$ - oder durch  $\sigma^-\sigma^-$ -Anregung entstehen. Ein gemischtes Biexziton mit  $\sigma^+\sigma^-$ -Anregung enthält ein Schwerloch mit  $m_J = -\frac{3}{2}$  und ein Leichtloch mit  $m_J = -\frac{1}{2}$  und durch  $\sigma^-\sigma^-$ -Anregung ein Schwerloch mit  $m_J = +\frac{3}{2}$  und ein Leichtloch mit  $m_J = +\frac{1}{2}$ . Dadurch ist der Gesamtspin dieser Biexzitonen  $\pm 2$  je nach Polarisation der beiden Photonen.

Die biexzitonischen Resonanzen können zwar in Photolumineszenz (PL)-Messungen vorkommen [Phi92, Bru94a, Kim94], doch ist der einzige Hinweis für deren biexzitonische Herkunft die quadratische Abhängigkeit der PL-Intensität von der Anregungsintensität [Bru94b, Bru94a]. In solchen Experimenten besteht die Gefahr, Trionen fälschlicherweise als Biexzitonen zu interpretieren [Phi96]. Eine inhomogene Verbreiterung der Spektren verhindert eine exakte Bestimmung der Biexzitonbindungsenergie.

Die Energie eines Biexzitonenzustandes  $E_{BX} = 2E_X - E_{BBX}$  entspricht der doppelten Exzitonenergie  $2E_X$ , reduziert um die Biexziton-Bindungsenergie  $E_{BBX}$ . Trotzdem sind biexzitonische Übergänge in optischen Spektren von beispielsweise GaAs nicht im blauen Spektralbereich zu finden, sondern energetisch dicht unterhalb der exzitonischen Resonanz bei einer Energie  $E_{BX}^{opt} = E_X - E_{BBX}$ . Das Biexziton der Energie  $E_{BX}$  zerfällt in ein Exziton der Energie  $E_X$  und ein Photon der Energie  $E_{BX}^{opt}$  in Photolumineszenzspektren.

## 2.2 Unordnung in Quantenfilmen

Ein Kristall besteht aus in einem Gitter angeordneten Atomen. Mit modernen Techniken ist es möglich, praktisch ideale Kristalle herzustellen. Auch in diesen idealen Kristallen kann es zu mikroskopischen Unregelmäßigkeiten kommen. Diese intrinsischen Effekte des Materialsystems sind sogenannte Unordnungseffekte. Mit Hilfe des Vier-Wellen-Mischens (engl.: *four-wave-mixing*, *FWM*) und der kohärenten Anregungsspektroskopie (engl.: *Coherent Excitation Spectroscopy*, *CES*) werden die Ursachen und Auswirkungen auf die optischen Eigenschaften des Kristalls untersucht.

In Photolumineszenz-Spektren äußert sich die Unordnung durch eine Änderung der Form und der Breite der Spektrallinien. Systeme, die frei von Unordnung sind, zeigen eine homogen verbreiterte Linie, die durch eine Lorentz-Kurve beschrieben wird. Die Linienbreite ist über die Energie-Zeit-Unschärfe durch die Lebensdauer des angeregten Zustandes bestimmt. Ungeordnete Systeme stellen eine Überlagerung vieler Systeme mit leicht unterschiedlichen Übergangsenergien dar. Die Linien sind inhomogen verbreitert und werden durch eine Gauß-Kurve beschrieben.

In idealen Halbleitern, oder besser Halbleiterstrukturen, kommt es zu zwei unterschiedlichen Unordnungstypen. Es handelt sich hier einerseits um Legierungsunordnung und andererseits um Grenzflächenrauigkeit.

Unter Legierungsunordnung versteht man die statistische Schwankung in der Zusammensetzung der Mischkristalle. Diese Legierungsunordnung ist eine intrinsische Eigenschaft aller Mischkristalle wie  $(Ga_{1-x}In_x)As$  und lässt sich prinzipiell nicht vermeiden. Die *Ga*- und *In*-Atome sind rein statistisch über das Gruppe-III-Untergitter im Halbleiter verteilt. Da aufgrund der statistischen Verteilung der Substituenten (hier des Indiums) die lokale Konzentration  $x$  mehr oder weniger starken Schwankungen unterworfen ist, verändert sich auch die Bandlückenenergie und die Gitterkonstante über den Kristall.

Die in den Photolumineszenz-Messungen untersuchte Probe (Bochum #1294) besteht aus zwei binären Materialien (*GaAs* und *AlAs*). Deswegen kann die Legierungsunordnung hier vernachlässigt werden, und es muss nur die Grenzflächenrauigkeit berücksichtigt werden.

An der Grenzfläche zwischen zwei Halbleiterschichten bilden sich während der Kristallbildung atomare Stufen. Daraus kann eine Dickenfluktuation des Quantenfilms herrühren. Bei dicken Quantenfilmen ist die relative Dickenänderung klein und spielt daher keine größere Rolle, da die zusätzliche inhomogene Verbreiterung klein ist gegenüber der homogenen Linienbreite. Dagegen ist bei dünnen Filmen die relative Dickenänderung groß, die inhomogene Verbreiterung ist deutlich größer als die homogene Linienbreite.

Weiterhin ergibt sich in Mischkristall-Heterostrukturen ein zusätzlicher Effekt. An einer *GaAs/AlAs* Grenzfläche ist zusätzlich zu berücksichtigen, ob ein *Ga*-Grenzflächenatom in der *AlAs*-Schicht oder ein *Al*-Atom in der *GaAs*-Schicht eingebaut wird. In diesem Fall ist die Grenzfläche einfach nicht genau definiert. Diese Art der Grenzflächenrauigkeit ist ebenfalls ein intrinsischer Effekt ähnlich der Legierungsunordnung.

Sehr glatte Grenzflächen entstehen durch Wachstumsunterbrechungen an allen Heterogrenzflächen, die nur monoatomare Stufen zeigen, welche Ausdehnungen größer als der doppelte Exzitonbohrradius besitzen.

Für die Exzitonen entstehen sogenannte Quantenfilmiseln (siehe Abbildung 2.7 unten) mit Filmdicken, die sich um eine Monolage unterscheiden. Die optischen Übergänge der verschiedenen Klassen von Quantenfilmiseln sind aufgrund der unterschiedlichen Confinementenergien spektral gegeneinander verschoben. Daher sind mehrere diskrete Linien in den Photolumineszenzspektren zu beobachten. Der Abstand der Linien hängt stark von der mittleren Dicke des Quantenfilms ab und steigt mit sinkender Quantenfilmdicke an.

Für den Fall, dass die Ausdehnung der Stufen kleiner ist als der Exzitonbohradius (siehe Abbildung 2.7 oben), mittelt das Exziton über mehrere Stufen. Dadurch entstehen viele Niveaus, die energetisch sehr dicht beieinander liegen. In der Lumineszenz ist eine inhomogen verbreiterte Linie zu beobachten.

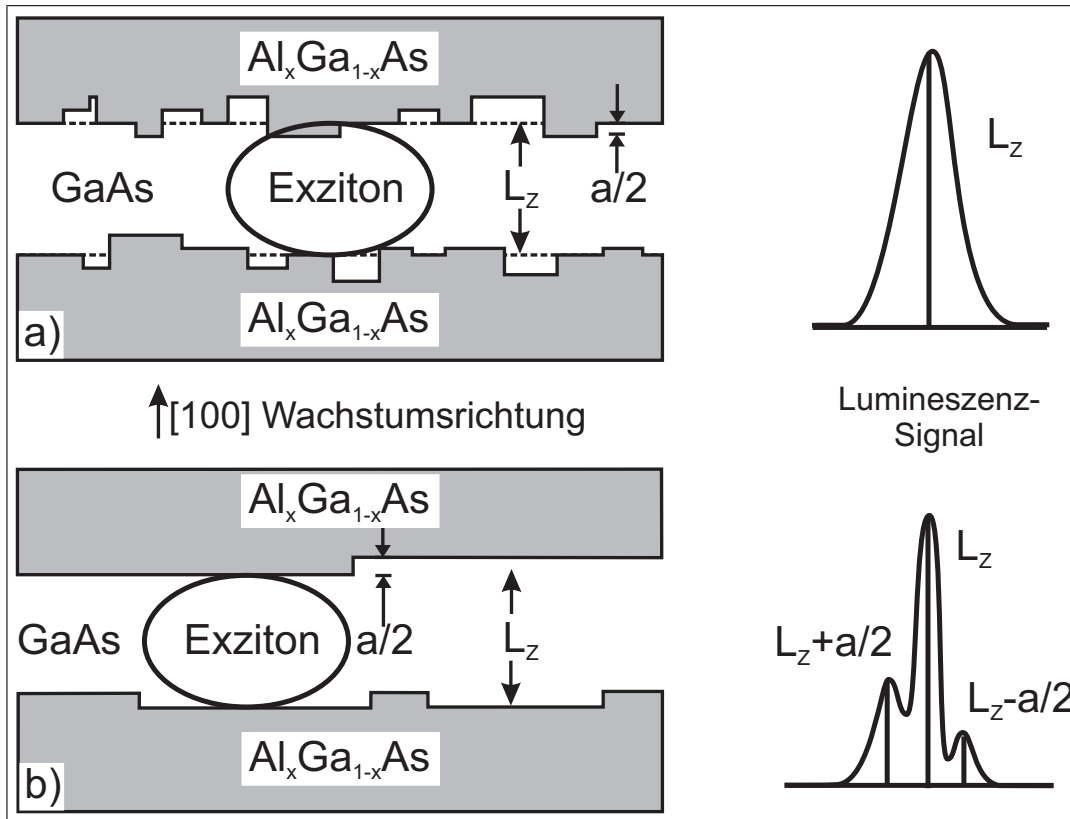


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung von Quantenfilmiseln. Monoatomare Stufen in den Grenzflächen von Quantenfilm und Barriere führen zu Bereichen mit unterschiedlichen Quantenfilmdicken (links). In den Lumineszenzspektren sind aufgrund der unterschiedlichen Confinement-Energien entweder eine inhomogen verbreiterte Linie (rechts oben) oder mehrere diskrete Linien zu sehen (rechts unten) (aus [Göb90b]).

### 2.2.1 Niveauabstoßung und Autokorrelationspektroskopie

Das Unordnungspotential in einem Quantenfilm führt zu lokalisierten Zuständen. Wenn die Zustände die gleiche Energie haben und die Wellenfunktionen dieser Zustände sich überlappen, dann entsteht eine Niveauabstoßung.

Die Random-Matrix-Theorie [Run98] führt unter der Annahme eines *Gaussian Orthogonal Ensemble* zu einer Häufung des Energieabstandes bei kleinen Energien. Diese Häufung verursacht einen Einbruch in der spektralen Autokorrelation. Die Unebenheit der atomaren Skala von Halbleiterquantenfilmen führt zum Unordnungspotential für Exzitonen in der Quantenfilm-Ebene und repräsentiert ein gutes Modellsystem zum Studieren dieser Effekte.

Abbildung 2.8 zeigt in der oberen Reihe zwei Niveauverteilungen. Auf der linken Seite eine Gauß-Verteilung (a)) und auf der rechten Seite eine Verteilung für ein

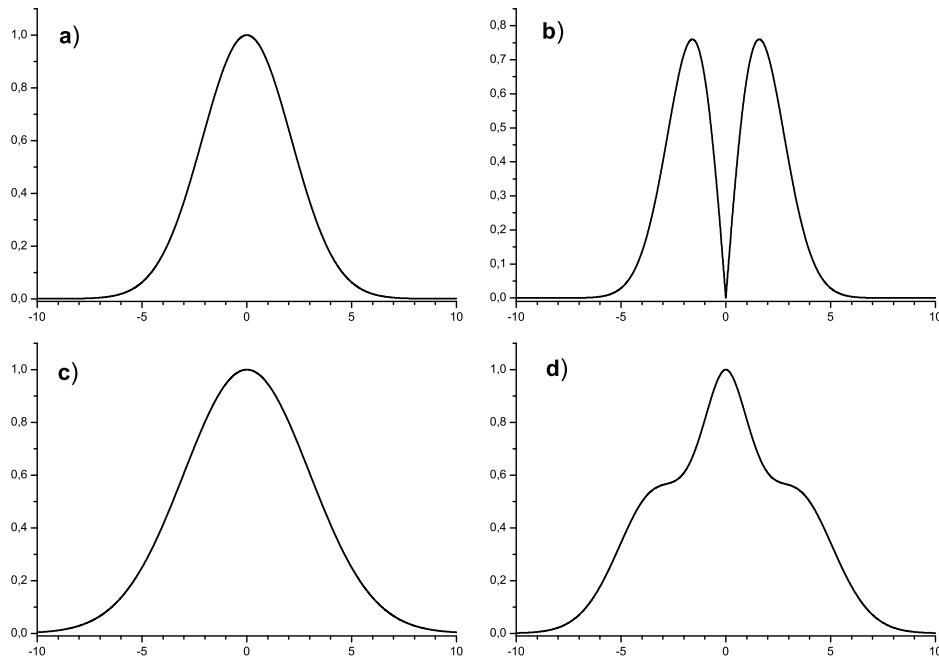


Abbildung 2.8: Niveaueverteilung (a, b) und Autokorrelation (c, d) für eine Gauß-Verteilung (a, c) und ein *Gaussian Orthogonal Ensemble* (GOE) (b, d)

*Gaussian Orthogonal Ensemble* (b)) :

$$P(s) = s \frac{\pi}{2} \exp\left(-\frac{s^2 \pi}{4}\right) . \quad (2.4)$$

In der unteren Reihe sind die dazugehörigen Autokorrelationen dargestellt. Die Autokorrelation der Gauß-Verteilung (c)) ist auch eine Gauß-Verteilung, lediglich die Halbwertsbreite ändert sich. Im Gegensatz dazu zeigt die Autokorrelation des *Gaussian Orthogonal Ensemble* (d)) eine deutliche Struktur.

## 2.3 Optische Anregungen in Halbleitern

Um ein Elektron aus dem Valenzband in das Leitungsband anzuregen, muss man mindestens die der Bandlücke  $E_g$  entsprechenden Energie  $\hbar\omega$  aufwenden. Sie kann in Halbleitern mittels Licht im ultravioletten bis infraroten Spektralbereich vermittelt werden. Da Photonen einen verschwindend geringen Impuls haben, sind nur senkrechte Übergänge zwischen Valenz- und Leitungsband möglich. Diese Bänder



können, wie in Abbildung 2.9 a) dargestellt, am  $\Gamma$ -Punkt durch Parabeln angenähert werden, sodass die Energieerhaltung

$$\hbar\omega = E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_r} \quad (2.5)$$

liefert, wobei  $m_r$  die reduzierte Elektron-Loch-Masse darstellt:

$$\frac{1}{m_r} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \quad . \quad (2.6)$$

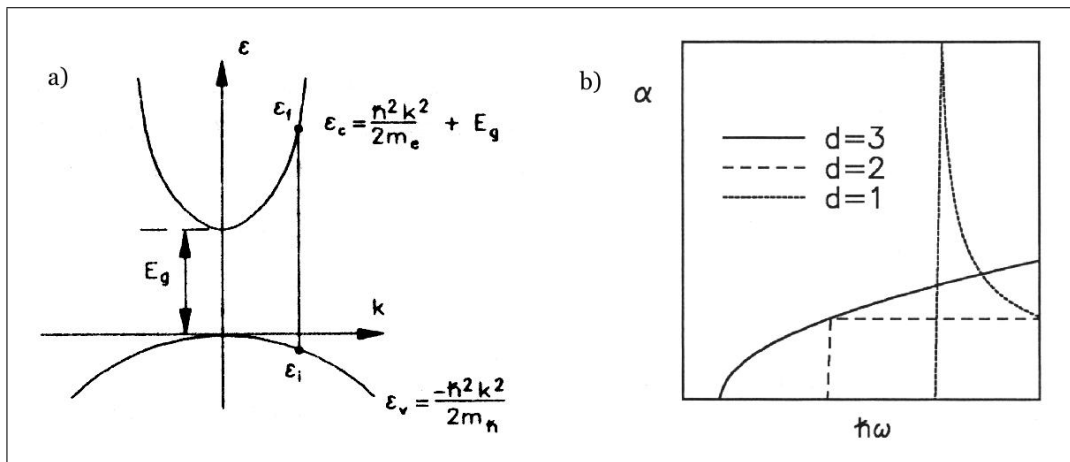


Abbildung 2.9: a) Schematische Darstellung einer optischen Anregung freier Ladungsträger in einem direkten Halbleiter in der Nähe des  $\Gamma$ -Punktes. Die Elektronenenergie wurde am Valenzbandmaximum als 0 definiert und über  $\vec{k}$  aufgetragen (aus [Pey93]). b) Absorptionsspektren freier Elektronen für ein, zwei und drei dimensionelle Strukturen (aus [Hau90]).

### 2.3.1 Zeitliche Dynamik einer optischen Anregung

Sind Elektronen erst einmal in das Leitungsband angeregt worden, durchlaufen sie unterschiedlich schnell verschiedene Phasen. Diese sind in Abbildung 2.10 durchnummeriert und erläutert.

Die erste ist die kohärente Phase, in der das einfallende Lichtfeld eine kohärente makroskopische Polarisation erzeugt, mit der sie danach wechselwirkt und Elektronen sowie Löcher erzeugt [Ros02]. In diesem Zeitbereich kann man unter anderem kohärente Oszillationen [Pey93] beobachten.

Nach Abschaltung des Lichtfeldes zerfällt die Polarisation durch phasenzerstörende Streuvorgänge der Ladungsträger untereinander und mit Phononen (Gitterschwingungen) mit einer Zeitkonstanten  $T_2$  (Dephasierungszeit). Dadurch thermalisieren die Ladungsträger in eine Fermi-Dirac-Verteilung, sodass man ihnen eine

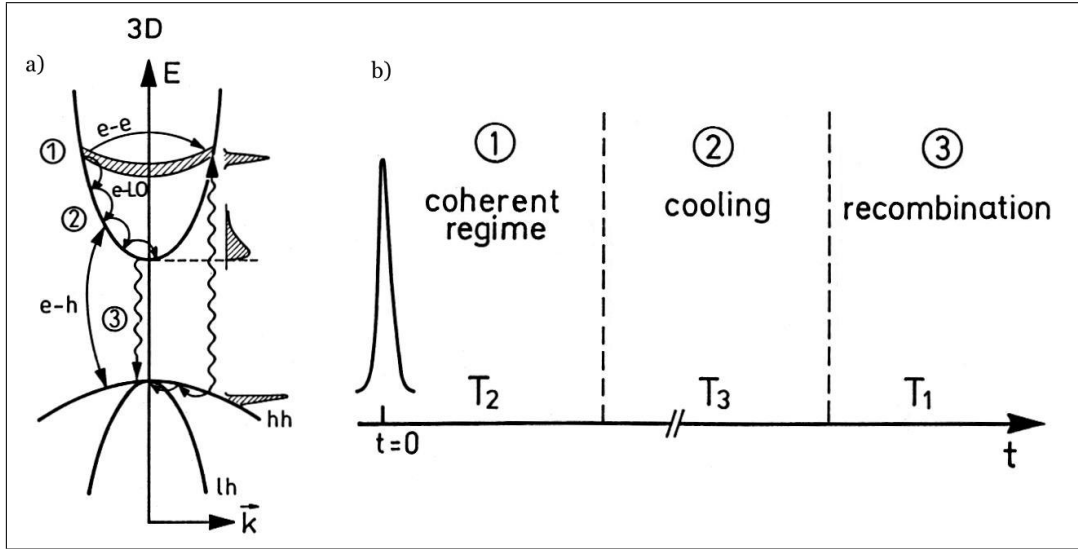


Abbildung 2.10: a) Schematische Darstellung des optischen Anregungsverlaufs in einem Volumenhalbleiter. Die einzelnen Abschnitte der zeitlichen Entwicklung (eingekreiste Nummern) sind in b) erläutert. (aus [Göb90a]).

Temperatur  $T_e$  bzw.  $T_h$  zuordnen kann. In dieser Phase müssen Elektronen und Löcher getrennt betrachtet werden, weil die Elektronen aufgrund ihrer geringeren effektiven Masse die größere Überschussenergie besitzen. In Volumenhalbleitern kann die Dephasierungszeit einige 100 fs betragen [Göb90a].

In der zweiten Phase kühlen die thermalisierten aber noch heißen Ladungsträger durch Emission von Phononen ab. Dadurch nimmt ihre mittlere Energie ab, bis sie dieselbe Temperatur  $T$  wie das Gitter haben [Oth98]. Unter der Annahme, dass Ladungsträgerstreuung untereinander viel häufiger auftritt als Streuung mit Phononen, was nach [Ulb73] selbst für sehr geringe Ladungsträgerdichten der Fall ist, kann man die Ladungsträger als instantan thermalisiert betrachten ( $T_2 \ll T_3$ ) und mit einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung beschreiben. Für ein Elektron der Temperatur  $T_e$  errechnet [Ulb73] sich somit die Energierelaxation aus der Summe der durchschnittlichen Energieverlusten durch Fröhlich-Wechselwirkung (optische Phononen):

$$\left\langle \frac{dE}{dt} \right\rangle_{op} = -\sqrt{2m_e(\hbar\omega_{LO})^3} \left( \frac{e}{\hbar} \right)^2 (\kappa_\infty^{-1} - \kappa_0^{-1}) \frac{1}{\varepsilon_0} \left( e^{-\frac{\hbar\omega_{LO}}{kT_e}} - e^{-\frac{\hbar\omega_{LO}}{kT}} \right), \quad (2.7)$$

piezoelektrische Streuung (akustische Phononen):

$$\left\langle \frac{dE}{dt} \right\rangle_{pe} = - \left( \frac{26\sqrt{\pi m_e^3 k T_e e_{14}^2 e^2}}{\sqrt{2}\hbar^2 \rho \kappa_0^2 \varepsilon_0^2} \right) \left( \frac{T_e - T}{T_e} \right) \quad (2.8)$$

und Deformationspotential-Streuung (akustische Phononen):

$$\left\langle \frac{dE}{dt} \right\rangle_{ac} = - \left( \frac{8\sqrt{2}m_e^5(kT_e)^3 E_1^2}{\sqrt{\pi^3} \hbar^4 \rho} \right) \left( \frac{T_e - T}{T_e} \right). \quad (2.9)$$

Hier ist  $e_{14} = 4.8 \cdot 10^4 \sqrt{gcm^{-1}s^{-2}}$  die piezoelektrische Wechselwirkungskonstante,  $E_1 = 7 \text{ eV}$  die Deformationspotentialkonstante,  $\varepsilon_0$  die Vakuumdieletrizitätskonstante,  $e$  die Elementarladung und  $\hbar$  die Planck'sche Konstante. Die übrigen Variablen sind abhängig von der zu untersuchenden Probe und werden in Abschnitt 5.1 bei der Probencharakterisierung aufgeführt. Für hohe Ladungsträgerdichten werden die Energieverluste deutlich reduziert [Leo88].

Die dritte Phase umfasst die Rekombination der Ladungsträger. Liegen diese als Exzitonen vor, so können sie unter Emission eines Photons erst dann rekombinieren, wenn sie soweit abgekühlt sind, dass ihr Impuls verschwindend gering ist. Im Gegensatz dazu können freie Ladungsträgerpaare auch rekombinieren, wenn der Impuls der einzelnen Ladungsträger deutlich größer als Null ist, sofern nur der Gesamtimpuls des Paares nahezu Null ist. Dam spricht man von der Rekombination heißer Ladungsträger. Die Zeitkonstante  $T_1$  wird als Lebensdauer bezeichnet und kann einige ns betragen [Gur98].

### 2.3.2 Räumliche Dynamik in Halbleiterquantenfilmen

Neben der oben diskutierten zeitlichen Dynamik spielt auch die räumliche Dynamik eine wichtige Rolle. Dies wird besonders deutlich, wenn man die Entwicklung einer lokal erzeugten Ladungsträgerverteilung betrachtet. Dazu wird durch einen gaußförmigen Laserpuls zur Zeit  $t = 0$  am Ort  $\vec{r} = 0$  in einem Quantenfilm eine zweidimensionale gaußförmige Ladungsträgerkonzentration

$$c(x, y, t) = \frac{1}{2\pi\sigma^2(t)} e^{-\frac{x^2+y^2}{\sigma^2(t)}} \quad (2.10)$$

mit der Standardabweichung  $\sigma(t)$  erzeugt. Die Ausbreitung der Ladungsträger wird dann durch die zeitliche Entwicklung von  $\sigma(t)$  bestimmt. Diese wird aus den zu bestimmten Zeiten experimentell gemessenen Halbwertsbreiten (engl.: *full width at half maximum*, *FWHM*) der Ladungsträgerverteilungen abgeleitet:

$$2\sigma = \frac{\text{FWHM}}{\sqrt{2 \ln 2}} \approx 0.849 \text{FWHM} \quad (2.11)$$

Die theoretische Beschreibung des Ladungsträgertransportes geschieht über das Mean-Square-Displacement:

$$\Delta^2(t) = \frac{\int r^2 c(x, y, t) dr^2}{\int c(x, y, t) dr^2}, \quad (2.12)$$

weil dieser numerisch relativ leicht berechenbar ist [Ste97]. Nach [Nol00] ist das nichts anderes als das Schwankungsquadrat einer Verteilung, wobei für obige Gaußverteilung

$$\Delta^2(t) = \frac{\sigma^2(t)}{2} \quad (2.13)$$

gilt.

Die zeitlichen Entwicklungen von gaußförmigen Ladungsträgerverteilungen umfassen zwei Grenzfälle: Als erstes den Zustand vor dem ersten Streuvorgang mit einer ballistischen Ausbreitung, und als zweites den Zustand nach vielen Streuvorgängen mit einer diffusiven Ausbreitung der Ladungsträger.

### Ballistischer Transport

Ist die Energie des anregenden Laserpulses größer als die Bandlücke, so wird die Differenz an die erzeugten Ladungsträger als kinetische Energie übertragen. Diese ist durch das gaußförmige Spektrum des Laserpulses ebenfalls gaußverteilt um eine mittlere Energie, die einer mittleren Geschwindigkeit  $\bar{v}$  entspricht. Die Ladungsträger breiten sich bis zum ersten Streuvorgang ballistisch mit  $\bar{v}$  aus, wobei nach [Ste97] die räumliche Ausbreitung der Ladungsträgerverteilung in diesem kohärenten Regime durch

$$\sigma^2(t) - \sigma^2(0) = 2\sqrt{\frac{2}{\pi}}\bar{v}^2 t^2 \quad (2.14)$$

beschrieben werden kann. Wichtig für die spätere Auswertung ist die Erkenntnis, dass die quadrierte Breite der Verteilung proportional zum Quadrat der Zeit ist.

### Diffusiver Transport

Auf einer  $ps$ -Zeitskala spielen Streuvorgänge eine bedeutende Rolle. Die Ausbreitung der Ladungsträger wird dann anhand einer makroskopischen Theorie beschrieben durch die allgemeine Diffusionsgleichung (hier zweidimensional)

$$\frac{\partial}{\partial t} c(x, y, t) = D \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) c(x, y, t), \quad (2.15)$$

auch 2. Fick'sches Gesetz genannt [Ger77]. Die Lösung dieser Gleichung ergibt

$$\sigma^2(t) - \sigma^2(0) = 4Dt, \quad (2.16)$$

wobei  $D$  die zeitunabhängige Diffusionskonstante ist [Ste97]. Hier ist zu bemerken, dass die quadrierte Breite der Ladungsträgerverteilung proportional zur Zeit ist und somit von der ballistischen Ausbreitung unterschieden werden kann. Für untereinander thermalisierte Elektronen der Temperatur  $T_e$  und Masse  $m_e$  kann man eine

temperaturabhängige Diffusionskonstante

$$D_e(T) = \frac{\tau_e(T)k_B T_e}{m_e} = \frac{\mu_e(T)k_B T_e}{e} \quad (2.17)$$

definieren [Bha97], wobei  $\tau_e(T)$  die Streuzeit und  $\mu_e(T)$  die Beweglichkeit der Elektronen und  $e$  die Elektronenladung ist. Gleiches gilt für die Löcher.

## 2.4 Verdünnte magnetische Halbleiter

Spin-Elektronik und Spin-Optoelektronik (*Spintronik*) sind Schlüsseltechnologien für die Zukunft. Die Kombination von bestehender Halbleitertechnologie mit magnetischen Materialien ermöglicht neue Anwendungen, sowohl in der klassischen als auch in der Quanten-Informationsverarbeitung. Dazu werden magnetische Halbleiter oder verdünnte magnetische Halbleiter (engl.: *diluted magnetic semiconductor, DMS*) benötigt, die kompatibel mit der bestehenden Halbleiter-Technologie sind, und die ihre magnetischen Eigenschaften auch bei Raumtemperatur beibehalten.

Als Materialsysteme wird dazu  $(GaMn)As$  verwendet. Allerdings ist  $(GaMn)As$  p-leitend, was wegen der schnellen Spin-Dephasierung der Löcher unerwünscht ist. Außerdem ist die bisher höchste beobachtete Curie-Temperatur mit  $T_C = 175\text{ K}$  [Naz03] noch zu gering für Raumtemperatur-Anwendungen.

Eine Alternative stellen ferromagnetische  $MnAs$ -Nanopartikel (engl.: *Cluster*) in einer paramagnetischen  $(GaMn)As$ -Matrix dar. Hier erlaubt die Matrix eine n-Dotierung und die Cluster zeigen Ferromagnetismus auch oberhalb der Raumtemperatur ( $T_C \approx 320\text{ K}$ )[Har02].

## 2.5 Optisches Auflösungsvermögen

Das optische Auflösungsvermögen wird durch zwei Effekte begrenzt: Abbildungsfehler (Aberrationen) und Beugung. Bei hochwertigen Optiken, wie den in dieser Arbeit benutzten Mikroskop-Objektiven sind die Aberrationen soweit korrigiert, dass die dadurch hervorgerufenen Abbildungsfehler kleiner sind als die Beugungseffekte, so dass hier nur die Beugung als limitierender Faktor betrachtet werden muss.

Jede Linse, begrenzt durch ihren Rand oder ihre Fassung, wirkt als beugende Öffnung und entwirft auch von einem unendlich entfernten Punkt (z.B. einem Stern) keinen scharfen Bildpunkt, sondern ein Beugungsbild. Ebenso wird eine einfallende, ebene Welle nicht in einem Punkt fokussiert.

### 2.5.1 Beugungsbegrenztes Fokussieren von Licht

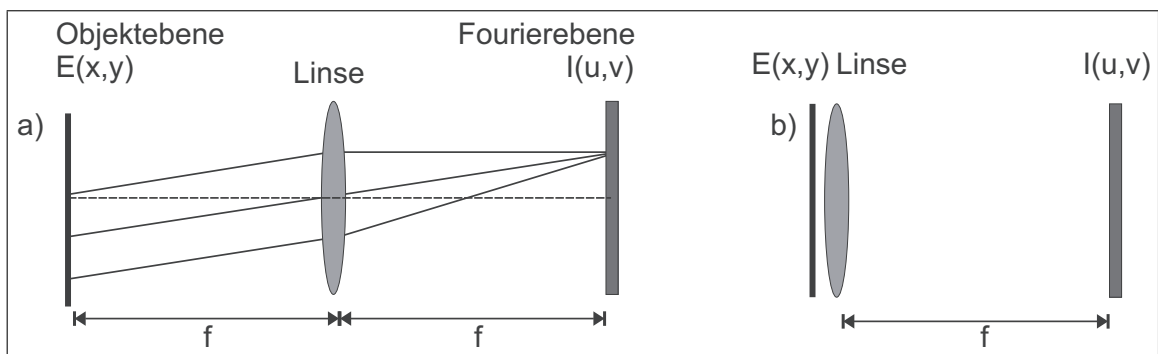


Abbildung 2.11: a)  $2f$ -Aufbau zur Erläuterung der Transformationseigenschaften einer Linse. b) Günstige Anordnung der Blende zur Berechnung des Beugungsbildes.

Bei dem Einfall einer ebenen Welle der Wellenlänge  $\lambda$  auf eine Linse der Brennweite  $f$  gelangt man in der Fraunhofer'schen Näherung zu dem folgenden Transformationsintegral :

$$\tilde{E}(x', y', f) = A(x', y', f) \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E(x, y) e^{-2i\pi(\frac{x'}{f\lambda}x + \frac{y'}{f\lambda}y)} dx dy . \quad (2.18)$$

Wenn die einfallende Feldverteilung  $E(x, y)$  in der vorderen Brennebene  $F$  liegt (Abbildung 2.11a), ist der Phasenfaktor  $A(x', y', f)$  unabhängig von  $x'$  und  $y'$  [Lau93]. Die Linse bewirkt in diesen Fall eine exakte zweidimensionale Fouriertransformation  $\tilde{E}(x', y') \approx F[E(x, y)](x', y')$  von der vorderen in die hintere Brennebene.

Die Intensitätsverteilung ergibt sich aus dem Transformationsintegral als:

$$I(r') = |E(r')|^2 = I_0 \left( \frac{2J_1 \left( \frac{2\pi ar}{\lambda f} \right)}{\frac{2\pi ar}{\lambda f}} \right)^2 \quad (2.19)$$

wobei  $J_1$  die Bessel'sche Funktion erster Ordnung,  $r$  die Entfernung von der optischen Achse zur Brennebene und  $a$  der Radius der Linsenapertur sind.

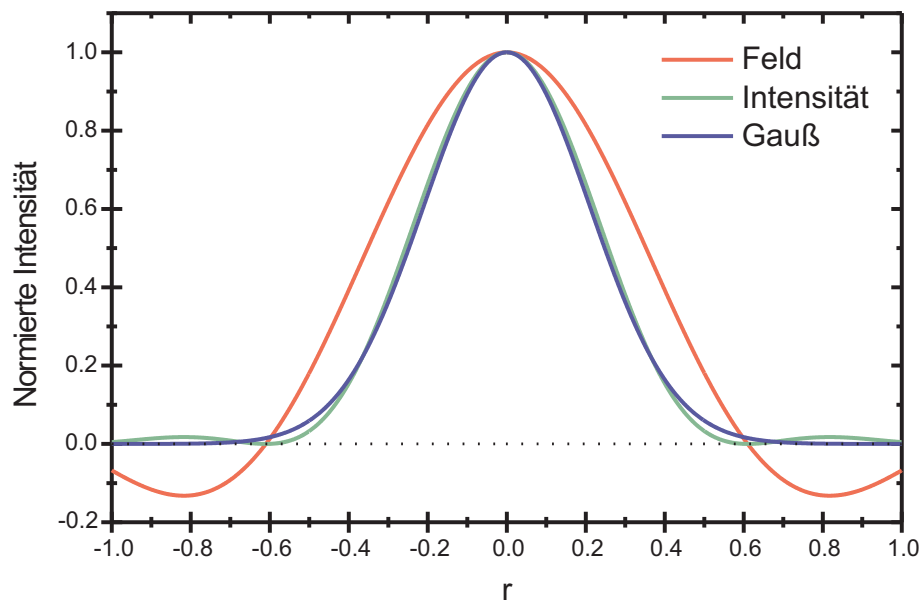


Abbildung 2.12: Feld- und Intensitätsverteilung im Fokus einer Linse, zusammen mit einer Gauß-Kurve gleicher Halbwertsbreite, aufgetragen über dem normierten Radius.

Abbildung 2.12 zeigt die Feld- und Intensitätsverteilung im Fokus einer Linse. Ebenfalls ist dort eine Gauß-Kurve dargestellt, die die gleiche Halbwertsbreite hat wie die Intensitätsverteilung. Wie man deutlich erkennt, kann die Intensitätsverteilung im Bereich des Hauptmaximums sehr gut durch eine Gauß-Kurve approximiert werden. Die Fokussierbarkeit von Licht wird durch den Abstand vom Intensitätsmaximum bis zur ersten Nullstelle der Verteilung definiert:

$$r_{min} = \frac{0,61\lambda_0}{NA}, \quad NA = n \sin(\theta). \quad (2.20)$$

Wobei  $n$  die Brechzahl des Mediums zwischen der Frontlinse des Objektivs und der Probe und  $\theta$  der halbe Öffnungswinkel des Lichtkegels nach der Linse ist.

Die volle Halbwertsbreite wird auch als Maß für die Auflösung verwendet, da sie experimentell leichter zu bestimmen ist als die Lage des ersten Minimums. Der



theoretische Wert beträgt :

$$FWHM = \frac{0,51\lambda_0}{NA}. \quad (2.21)$$

Gleichung 2.20 wird allgemein als Beugungslimit bezeichnet. Strenggenommen stellt diese Gleichung aber nur das Beugungslimit für ebene Wellen an einer kreisrunden Öffnung dar.

### 2.5.2 Auflösungsvermögen des Mikroskopes

Das Auflösungsvermögen des Mikroskopes ist definiert als der minimale Abstand, den zwei Objektpunkte haben müssen, damit sie im Bildraum noch getrennt wahrgenommen werden können. Rein formal muss man beim Mikroskop zwischen selbstleuchtenden und nicht selbstleuchtenden Objekten unterscheiden. Alternativ kann auch nach inkohärenten selbstleuchtenden Objekten und kohärenten nicht selbstleuchtenden Objekten unterschieden werden.

Die Bestimmung des Auflösungsvermögens für nicht selbstleuchtende Objekte geht auf E. Abbé [Abb73] zurück. Dabei betrachtet man das Objekt als Gitter, an dem das Licht gebeugt wird.

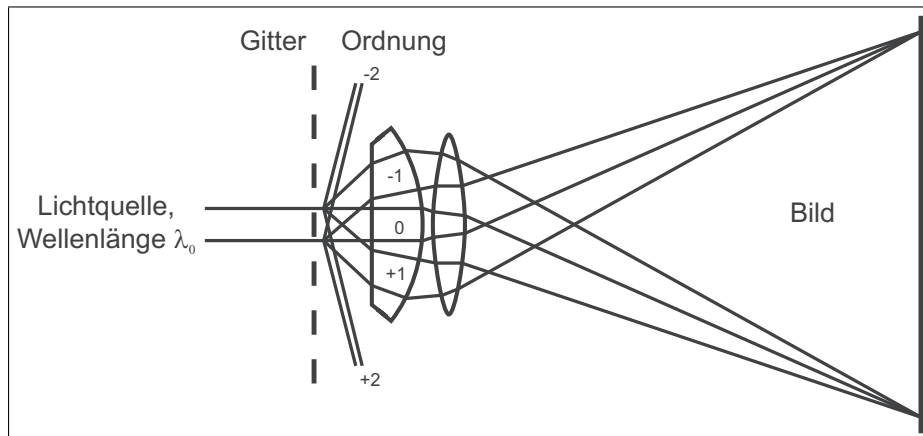


Abbildung 2.13: Bildentstehung im Mikroskop nach Abbé.

Zur Bildentstehung muss, wie in Abbildung 2.13 dargestellt, neben dem Maximum nullter Ordnung noch mindestens das Maximum erster Ordnung vom Objektiv erfasst werden. Daraus folgt, dass der halbe Öffnungswinkel des Objektivs mindestens so groß sein muss wie der Beugungswinkel der ersten Ordnung. Betrachtet man eine kreisförmige Öffnung anstelle des Gitters, so erhält man wieder Gleichung 2.20.

Für selbstleuchtende Objekte wurde das Auflösungsvermögen von H. v. Helmholtz 1874 berechnet. Das Mikroskop bildet einen Punkt nicht als Punkt sondern als Beugungsscheibchen ab. Nach dem Rayleigh'schen Kriterium können zwei Punkte getrennt wahrgenommen werden, wenn ihr Abstand mindestens gleich dem Radius

des ersten Minimums des Beugungsbildes ist. Der Radius ist durch Gleichung 2.20 gegeben.

### 2.5.3 Festkörper-Immersionlinse

Da der Öffnungswinkel des Objektivs auf Werte  $\leq 90^\circ$  begrenzt ist, kann eine Verbesserung der örtlichen Auflösung nach Gleichung 2.20 nur durch Reduzierung der Wellenlänge des verwendeten Lichtes oder eine Erhöhung des Brechungsindex des Materials zwischen der Frontlinse des Objektivs und dem Objekt erreicht werden. Letzteres wird bei der Immersions-Mikroskopie verwendet. Dazu verwendet man ein Immersions-Öl mit einem Brechungsindex von  $n = 1,515$ , sowie speziell für die Öl-Immersion konstruierte Objektive.

Die Festkörper-Immersionlinse (engl.: *Solid Immersion Lense* , *SIL*) stellt eine Erweiterung der Immersions-Mikroskopie dar. Die SIL wurde 1990 von Mansfield und Kino für die Verwendung in der Mikroskopie vorgeschlagen [Man90]. Abbildung 2.14 zeigt die Anwendung der SIL.

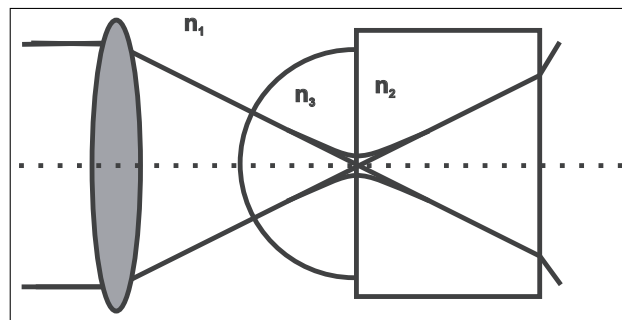


Abbildung 2.14: Probe mit Festkörper-Immersionlinse

Eine rund geschliffene Halbkugel mit dem Brechungsindex  $n > 1$  wird in den Strahlengang und direkt auf dem zu untersuchenden Material positioniert. Wenn bei Verwendung der SIL weiterhin auf die Probe fokussiert wird, bleibt der Strahlengang gegenüber dem Fall ohne SIL unverändert. Im Inneren der Linse ist jedoch die Wellenlänge des Lichts um den Faktor  $n$  kleiner, was zu einer Verkleinerung des Fokus und somit der angeregten Probenfläche führt. So kann auf einfache Weise die Ortsauflösung um das  $n$ -Fache gesteigert werden.

Allerdings kann das Auflösungsvermögen nicht beliebig gesteigert werden, selbst wenn es geeignete Materialien mit hinreichend großem Brechungsindex gibt. Die maximal nutzbare numerische Apertur ist auf den Wert des Brechungsindex des Probenmaterials begrenzt. Dieser Wert kann nur erreicht werden, wenn der halbe Öffnungswinkel  $90^\circ$  beträgt.

### 2.5.4 Optische Nahfeldmikroskopie

Eine grundsätzlich andere Methode zur Steigerung des Auflösungsvermögens stellt die optische Nahfeldmikroskopie (engl.: *scanning near-field optical microscopy, SNOM*) dar. In diesem Abschnitt soll nun gezeigt werden, wie mittels der Nahfeldmikroskopie das Beugungslimit umgangen werden kann. Diese Herleitung folgt Ref. [Goo68] und [Vig92].

Unter dem Nahfeld eines Objekts versteht man das elektromagnetische Feld in einem Abstand vom Objekt, der klein gegen die Wellenlänge ist. In der konventionellen Optik hingegen wird das Feld erst in einer Entfernung beschrieben, die wesentlich größer als die Wellenlänge des Lichts ist (Fernfeld). Wie im Folgenden gezeigt wird, weisen das Fern- und Nahfeld in diesem Zusammenhang bedeutende Unterschiede auf. Unter Nahfeldmikroskopie versteht man also die mikroskopischen Verfahren, die sich die Nahfeldeigenschaften des Lichts zunutze machen.

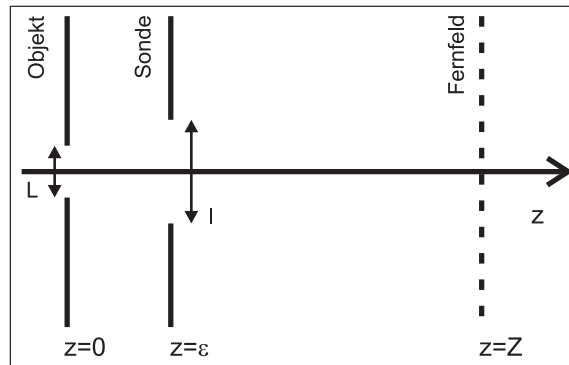


Abbildung 2.15: Anordnung der Apertur im Nahfeld des Objekts. Das Objekt, ein Spalt der Breite  $L$ , befindet sich bei  $z = 0$ , die Apertur der Breite  $l$  bei  $z = \epsilon \ll \lambda$ . Das Feld wird im Fernfeld bei  $z = Z \gg \lambda$  betrachtet.

Eine monochromatische Welle der Vakuum-Wellenlänge  $\lambda$  läuft in positiver  $z$ -Richtung und fällt auf ein Objekt in der Ebene  $z = 0$ . Das komplexe Feld an dieser Stelle wird durch  $U(x, y, 0)$  beschrieben. Das Ziel ist es, das sich daraus entwickelnde Feld in einer Ebene  $z = Z \gg \lambda$  im Fernfeld zu errechnen. Dazu lässt sich  $U$  an jeder Stelle  $z$  durch sein Spektrum  $A$  im  $\mathbf{k}$ -Raum beschreiben:

$$U(x, y, z) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} A(k_x, k_y, z) e^{ik_x x} e^{ik_y y} dk_x dk_y . \quad (2.22)$$

Dieses Feld  $U$  muss an jeder Stelle der skalaren Helmholtzgleichung

$$\nabla^2 U + k^2 U = 0 \quad (2.23)$$

genügen. Damit ergibt sich eine Differentialgleichung für  $A$ :

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} A(k_x, k_y, z) + (k^2 - k_x^2 - k_y^2) A(k_x, k_y, z) = 0 . \quad (2.24)$$

Diese wird durch

$$A(k_x, k_y, z) = A_0(k_x, k_y) e^{i\sqrt{k^2 - k_{\parallel}^2} z} \quad (2.25)$$

gelöst, wobei  $k_{\parallel} = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$  den Betrag des Wellenvektors in der Objektebene und  $A_0(k_x, k_y)$  die Fouriertransformierte des Objekts bezeichnet. Aus dieser Gleichung lässt sich entnehmen, dass die ebenen Wellen, die einen Wellenvektor mit  $k_{\parallel} > k$  besitzen, exponentiell in  $z$ -Richtung abfallen, da für sie die Wurzel imaginär wird. Sie werden als evaneszente Wellen bezeichnet. Zur Berechnung des Feldes  $U(z = Z)$  muss daher in Gleichung 2.22 nicht über den ganzen  $\mathbf{k}$ -Raum integriert werden, sondern es genügt das Intervall  $|k_{x,y}| < k = n\omega/c$ :

$$U(x, y, Z) = \int_{-k}^k \int_{-k}^k A_0(k_x, k_y) e^{i\sqrt{k^2 - k_{\parallel}^2} Z} e^{ik_x x} e^{ik_y y} dk_x dk_y . \quad (2.26)$$

Dieses exponentielle Abfallen der Wellen mit größerer Komponente  $k_{\parallel}$  begrenzt das Auflösungsvermögen auf den in Formel 2.20 angegebenen Wert, da Objektdetails mit einer Raumfrequenz größer als  $k_{\parallel}/(2\pi)$  nicht bis ins Fernfeld propagieren. Wenn die Auflösung erhöht werden soll, indem die Unschärfe von  $k_{\parallel}$  erhöht wird, dann muss dies im Nahfeld des Objekts geschehen, da im Fernfeld die evaneszenten Wellen nicht mehr vorhanden sind und so auch nicht zum möglichen  $k_{\parallel}$ -Intervall beitragen können. Im Nahfeld der Probe muss dann das Lichtfeld so transformiert werden, dass die Informationen der Komponenten mit  $|k_{\parallel}| > k$  in solche mit  $|k_{\parallel}| < k$  umgesetzt werden, damit sie im Fernfeld registriert werden können. Eine Apertur mit einem Durchmesser kleiner als die Wellenlänge  $\lambda$  kann diese Transformation bewirken, wie im Folgenden gezeigt wird.

Um die Gleichungen etwas übersichtlicher zu gestalten, soll von nun an nicht mehr das ganze Spektrum  $A$  im  $\mathbf{k}$ -Raum betrachtet werden, sondern nur eine Raumfrequenz mit  $k_{\parallel} = K > k$ . Außerdem wird die  $y$ -Richtung nicht weiter berücksichtigt. Aus Gleichung 2.26 wird damit

$$\begin{aligned} U_K(x, Z) &= \int_{-k}^k A_0(k_x) e^{i\sqrt{k^2 - k_x^2} Z} e^{ik_x x} \delta(k_x - K) dk_x \\ &= A_0(K) e^{i\sqrt{k^2 - K^2} Z} e^{iKx} \\ &= 0, \quad \text{da } K > k \text{ und } Z \gg \lambda . \end{aligned}$$

Diese Frequenzkomponente kann im Fernfeld nicht mehr registriert werden.

Nun wird eine Apertur mit einem Durchmesser  $l \ll \lambda$  im Abstand  $\epsilon \ll \lambda$  vor das Objekt gebracht. Abbildung 2.15 zeigt diese Anordnung. Nach Gleichung 2.25 beträgt der Fourier-Koeffizient in der Ebene  $z = \epsilon$ :

$$A(K, z = \epsilon) = A_0(K) e^{i\sqrt{k^2 - K^2} \epsilon} . \quad (2.27)$$

Dieses Feld, das eine ebene Welle mit  $k_{\parallel} = K$  beschreibt, trifft nun auf die Apertur und wird gebeugt. Im Fernfeld wird daraus

$$U_K(x, z = Z) = A(K, \epsilon) \int_{-k}^k l \operatorname{sinc}((k_x - K)l) e^{i\sqrt{k^2 - k_x^2} (Z - \epsilon)} e^{ik_x x} dk_x . \quad (2.28)$$

Dabei beschreibt  $l \operatorname{sinc}((k_x - K)l)$  die Fouriertransformierte des Spalts der Breite  $l$ , der von einer ebenen Welle mit  $k_{\parallel} = K$  beleuchtet wird. Die Amplitude  $A(K, \epsilon)$  dieser Welle ist nicht von  $k_x$  abhängig und kann vor das Integral gezogen werden.  $e^{i\sqrt{k^2 - k_x^2} (Z - \epsilon)}$  propagiert das Spektrum von der Ebene  $z = \epsilon$  ins Fernfeld zur Ebene  $z = Z$ , wie es Gleichung 2.25 fordert. Das Integral über  $k_x$  mit den Grenzen  $\pm k$  und dem Faktor  $e^{ik_x x}$  führt schließlich die Fouriertransformation zurück in den Realraum durch, wobei schon berücksichtigt ist, dass nur Frequenzkomponenten mit  $|k_{\parallel}| < k$  bis ins Fernfeld gelangen.

Dieses Modell zeigt, dass eine genügend kleine Apertur die Informationen hoher Raumfrequenzen in propagierende Wellen transformieren kann. Dazu muss zum einen der Durchmesser der Apertur in der Größenordnung der abzubildenden Objekt-Details liegen, zum anderen muss sie sich im Abstand  $\epsilon \ll \lambda$  vom Objekt befinden. Das Bild entsteht dann durch ein Abrastern des Objekts. Für solche genauere Betrachtungen ist dieses Modell im Rahmen der skalaren Helmholtz-Gleichung nicht geeignet, da die Blende nur einen gewissen Teil des Lichtfeldes ausschneidet, ohne es selbst zu beeinflussen. Dies ist bei einer metallbedampften Glasfaser Spitze aber mit Bestimmtheit nicht der Fall.



# 3 Experimentelle Methoden

In diesem Kapitel werden die experimentellen Methoden dieser Arbeit erläutert.

## 3.1 Photolumineszenz

Häufig setzt man die Photolumineszenz ein, um Halbleiter zu charakterisieren. Als Photolumineszenz bezeichnet man die Aussendung von Photonen durch Rekombination von Elektron-Loch-Paaren, die vorher durch eingestrahktes Licht erzeugt wurden. Der Grundschemata der Photolumineszenz ist in Abbildung 3.1 dargestellt.

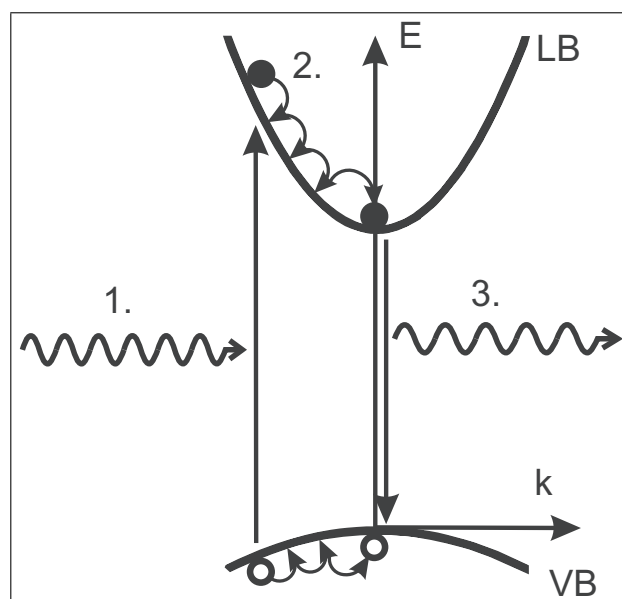


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Photolumineszenz: 1) Die Anregung der Probe, 2) Relaxation der Ladungsträger und 3) die strahlende Rekombination

Durch die Einstrahlung von Licht werden in der Probe Elektronen aus dem Valenzband ins Leitungsband angeregt, sodass Elektron-Loch-Paare entstehen. Die Elektron-Loch-Paare relaxieren über Wechselwirkung mit dem Kristallgitter zur Bandkante. Dort rekombinieren die Paare über einen strahlenden Übergang. Die dabei freiwerdende Energie wird als Photon emittiert.

Zur Anregung verwendet man ein Licht einer Photonen-Energie  $E_i = \hbar\omega_i$ , die größer ist als der Bandlücke  $E_g$  der Probe. Nach der Anregung befinden sich die Ladungsträger im Allgemeinen nicht an der Bandkante. Erst durch die Streuprozesse (Energierelaxation) fallen sie wieder in ihr jeweiliges energetisches Minimum im  $k$ -Raum zurück. Dort finden direkte ( $\Delta k = 0$ ) oder indirekte ( $\Delta k \neq 0$ ) Übergänge statt, bei denen die Energiedifferenz zwischen den Niveaus von Elektronen und Loch  $\Delta E$  emittiert wird. Bei den Band-Band-Übergängen hängt die Stärke eines optischen Übergangs nicht nur von der Ladungsträgerverteilung in den Bändern sondern auch von der Übergangswahrscheinlichkeit ab.

#### 3.1.1 Mikro-Photolumineszenz

Die Mikro-Photolumineszenz kombiniert die Photolumineszenz mit der Ortsauflösung der Mikroskopie. Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 3.2 schematisch dargestellt.

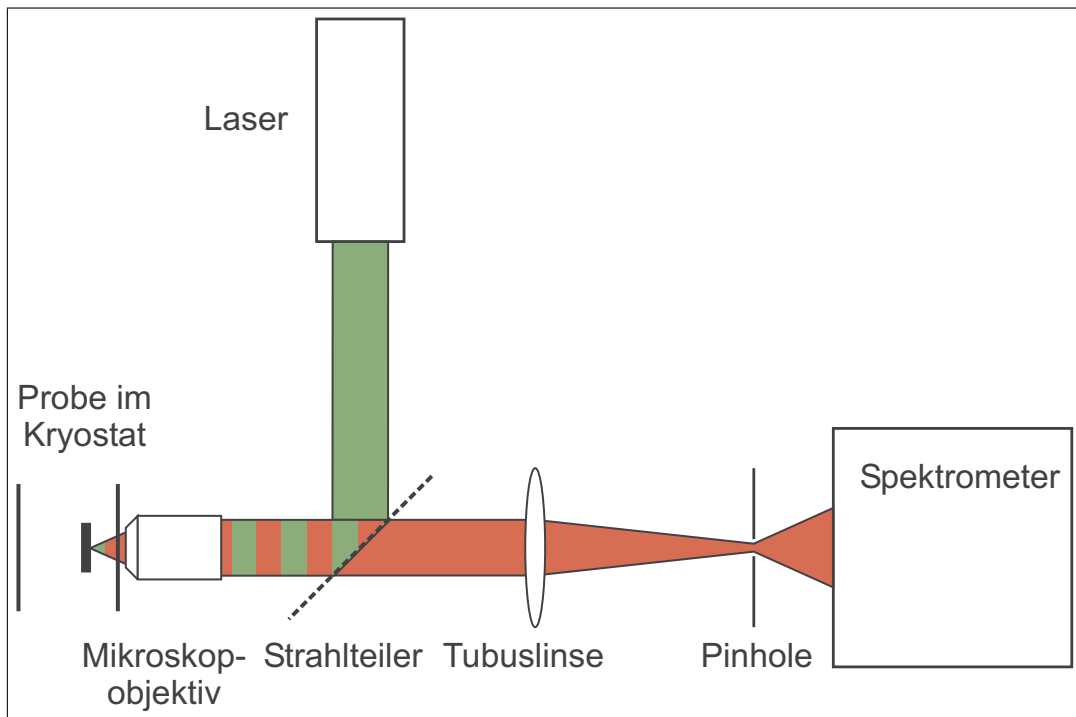


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des Mikro-Photolumineszenz-Aufbaus.

In dem verwendeten Mikro-Photolumineszenz-Aufbau ( $\mu PL$ ) ist die Ortsauflösung durch das Mikroskopobjektiv bestimmt und beträgt bereits ohne Verwendung einer SIL weniger als  $1\mu m$ .

Der Anregungslaser wird mit einem Strahlteiler in den afokalen Strahlengang eines Mikroskops eingekoppelt und von dem Mikroskopobjektiv auf die Probe fokussiert.



Die Probe wird durch den Laser zur Photolumineszenz (*PL*) angeregt. Die *PL* wird von dem gleichen Objektiv eingesammelt und von der Tubuslinse in der hinteren Bildebene fokussiert. Dadurch entsteht in der Bildebene ein vergrößertes Abbild des lumineszierenden Bereiches der Probe. Durch eine Lochblende (engl.: *Pinhole*) wird der Teil des Bildes, der zur Detektion beiträgt, räumlich begrenzt. Das *Pinhole* wird von einer Linse unter Anpassung des Öffnungswinkels auf den Eintrittspalt eines Spektrometers abgebildet.

Die Probe befindet sich in einem Durchflusskryostaten, mit dem die Kühlfinger-Temperatur im Bereich zwischen  $5\text{ K}$  und  $300\text{ K}$  eingestellt werden kann. Um die Lumineszenz an verschiedenen Positionen auf der Probe messen zu können, ist das Objektiv durch zwei schrittmotorgetriebene Mikrometerspindeln entlang der beiden Achsen, die senkrecht zur optischen Achse stehen, in Schritten von etwa  $90\text{ nm}$  verschiebbar.

Als Anregungslaser wird ein Dauerstrich (engl.: *continuous wave, cw*)-HeNe-Laser ( $1,96\text{ eV}$  Photonenergie,  $4,5\text{ mW}$  nutzbare Leistung) verwendet. Die Anregungsleistung kann mittels Neutral-Dichte-Filter (*ND-Filter*) um bis zu drei Größenordnungen abgeschwächt werden. Bei der Anregung kann zwischen zwei Modi unterschieden werden. Wird der Laserstrahl durch einen Strahlaufweiter deutlich aufgeweitet, so wird die Eintrittsapertur des Objektivs nahezu homogen ausgeleuchtet und der Anregungslaser auf die durch Gleichung 2.21 gegebene Halbwertsbreite fokussiert. Bei den Messungen in Kapitel 4.2 hingegen wird der Strahlaufweiter nicht verwendet. Dadurch wird der Laserstrahl nur auf etwa  $1,3\text{ }\mu\text{m}$  Halbwertsbreite fokussiert. Somit ist die Anregungsfläche etwa doppelt so groß wie die Detektionsfläche, was zu einer homogenen Anregung der Probe innerhalb der Detektionsfläche führt.

Um eine hohe Ortsauflösung zu erreichen, wird ein Objektiv der Firma Nikon (Plan Fluor ELWD  $40\times/0,60$ ) mit einer numerischen Apertur von  $0,60$  benutzt. Da die in dieser Arbeit verwendete Probe in einem Wellenlängenbereich von  $700\text{ nm}$  bis  $820\text{ nm}$  luminesziert, erhält man nach der Gleichung 2.21 eine Ortsauflösung von etwa  $600\text{ nm}$  bis  $700\text{ nm}$ . Der optimale Radius des *Pinholes* ergibt sich nach [Cor96] zu:

$$r_{opt} = \frac{0,25 \lambda_0 M}{NA} \quad . \quad (3.1)$$

Mit dem Nikon-Objektiv und bei dem oben angegebenen Wellenlängenbereich erhält man so einen optimalen Durchmesser des *Pinholes* von  $23\text{ }\mu\text{m}$  bis  $27\text{ }\mu\text{m}$ . Im Experiment wird ein *Pinhole* mit  $25\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser verwendet. Eine weitere Erhöhung des Auflösungsvermögens kann durch die Verwendung einer GaP-SIL mit  $n = 3,2$  erreicht werden.

Wird das *Pinhole* aus dem Strahlengang entfernt so wird die Ortsauflösung durch die kleinste, im Strahlengang verbleibende, Apertur begrenzt. Im obigen Aufbau ist dies der Eintrittspalt des Monochromators. Für die im Experiment verwendete Spaltbreite von  $50\text{ }\mu\text{m}$  erhält man eine Ortsauflösung von  $7,3\text{ }\mu\text{m}$ . Dabei ist dann aber die Anregungsfläche deutlich kleiner als die Detektionsfläche.

Die PL wird durch einen 64 cm Monochromator mit einem Gitter mit 1200 *Linien/mm* spektral zerlegt und mit einer stickstoffgekühlten CCD (engl. für *charge-coupled device*) detektiert.

#### 3.1.2 Zeitaufgelöste Photolumineszenz

Die zeitaufgelösten Lumineszenz-Messungen wurden mit einer Schmierbildkamera (engl.: *streak camera*) durchgeführt. Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 3.3 dargestellt.

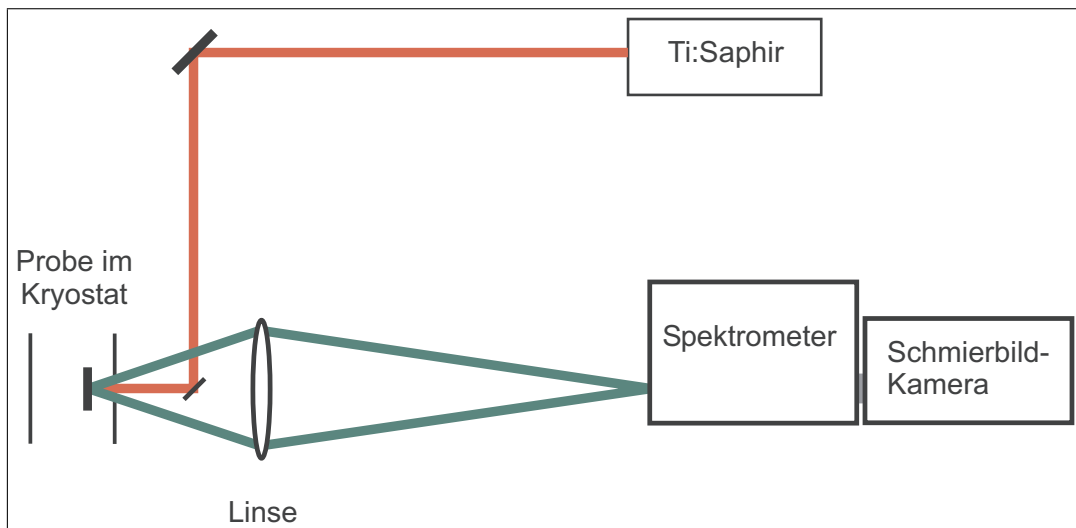


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung der Apparatur zur zeitaufgelösten PL.

Zur Anregung wird ein Ti:Saphirlaser verwendet, der Pulse mit 1,5 ps Dauer und einer Wiederholrate von 80 MHz erzeugt. Die Laser-Pulse werden von einer Linse  $f = 250 \text{ mm}$  schwach fokussiert und von einem kleinen Spiegel auf die Probe gelenkt. Der Durchmesser des Lasers auf der Probe beträgt etwa  $83 \mu\text{m}$ , die mittlere Leistung etwa 500 mW. Auch hier kann die Anregungsleistung durch ND-Filter um etwa drei Größenordnungen abgeschwächt werden.

Das von der Probe kommende Signal wird von einer Linse auf den Eintrittspalt eines Spektrometers abgebildet und von einer Schmierbildkamera energie- und zeitaufgelöst detektiert. Abbildung 3.4 zeigt ein Beispiel für eine Messung, wie sie mit der Schmierbildkamera aufgenommen werden.

Entlang der horizontalen Achse von links nach rechts ist die Zeit aufgetragen und entlang der vertikalen Achse von oben nach unten die Energie. Die Intensität ist durch die Graustufen dargestellt, wobei hier der Kontrast invertiert wurde, sodass schwarz hohe und weiß niedrige Intensität bedeutet. Durch diese Aufnahme kann man Schnitte parallel zur Energie-Achse legen und erhält so Spektren zu verschie-

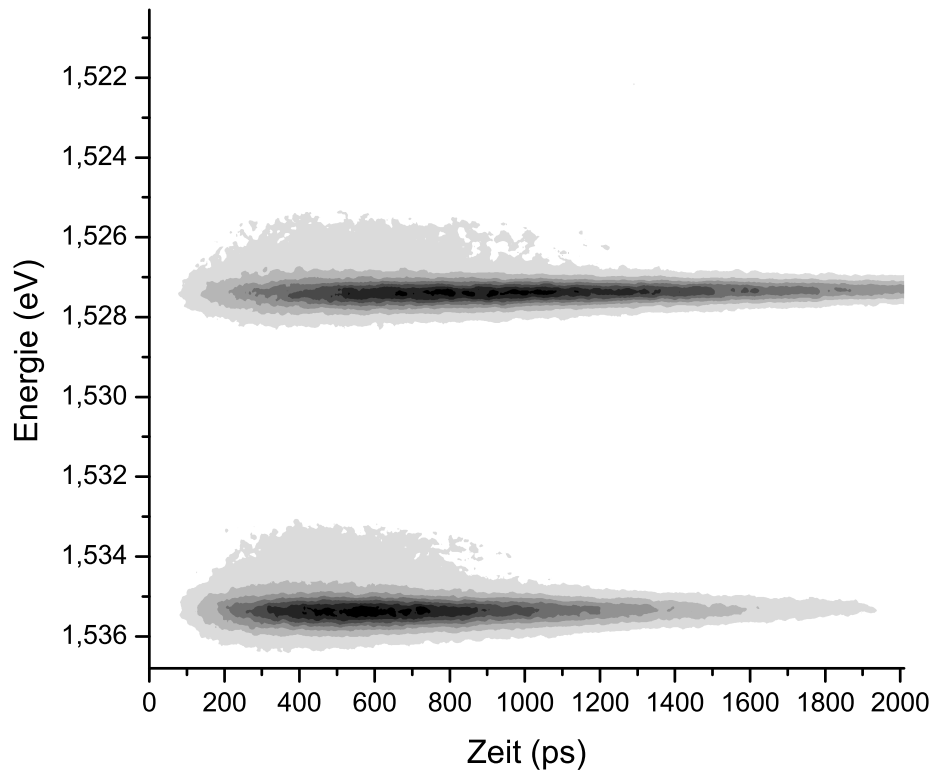


Abbildung 3.4: Beispiel einer zeitaufgelösten Lumineszenz-Messung, wie sie mit der Schmierbildkamera detektiert wird.

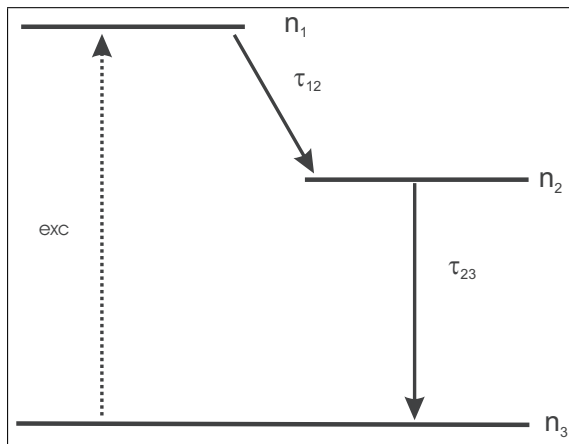
denen Zeiten. Legt man die Schnitte parallel zur Zeit-Achse erhält man Transienten bei bestimmten Energien.

Zur Beschreibung der zeitlichen Entwicklung der Lumineszenz wird ein Raten-gleichungsmodell verwendet, das die Übergangsraten und Dichten in einem aus drei Niveaus bestehenden System beschreibt (Abbildung 3.5).

Die Dichte  $n_1$  im obersten Niveau wird als instantan zur Zeit  $t = 0 \text{ ps}$  erzeugt angenommen und repräsentiert die durch den Laserpuls generierte Anregung. Die Anregung relaxiert mit der Rate  $\frac{1}{\tau_{12}}$  in das Niveau  $n_2$ , um dann mit der Rate  $\frac{1}{\tau_{23}}$  zu rekombinieren. Für die zeitliche Entwicklung der Besetzung des Niveaus  $n_2$  erhält man:

$$n_2(t) = n_1(t=0) \frac{\tau_{23}}{\tau_{23} - \tau_{12}} \left( e^{-\frac{t}{\tau_{23}}} - e^{-\frac{t}{\tau_{12}}} \right) \quad . \quad (3.2)$$

Unter der Annahme, dass die Lumineszenzintensität proportional zur Dichte  $n_2$  ist,



$$\begin{aligned}dn_1 &= -\frac{1}{\tau_{12}}n_1dt \\dn_2 &= -\frac{1}{\tau_{23}}n_2dt + \frac{1}{\tau_{12}}n_1dt \\dn_3 &= \frac{1}{\tau_{23}}n_2dt\end{aligned}$$

Abbildung 3.5: Schematische Darstellung des Drei-Niveau-Systems zur Beschreibung der Dynamik (links) sowie das entsprechende Ratengleichungssystem (rechts).

kann auch diese durch eine Gleichung analog zu Gleichung 3.2 beschrieben werden.

## 3.2 Anrege-Abfrage-Spektroskopie

Die Anrege-Abfrage-Spektroskopie erlaubt es, die zeitliche Dynamik optisch generierter Ladungsträger mit einer Zeitaufösung zu untersuchen, die nur durch die Dauer der verwendeten Laser-Pulse begrenzt ist. Im Folgenden soll kurz das Verfahren und seine Erweiterung zur orts aufgelösten Anrege-Abfrage-Spektroskopie erläutert werden. Die Einzelheiten finden sich in [Kov03].

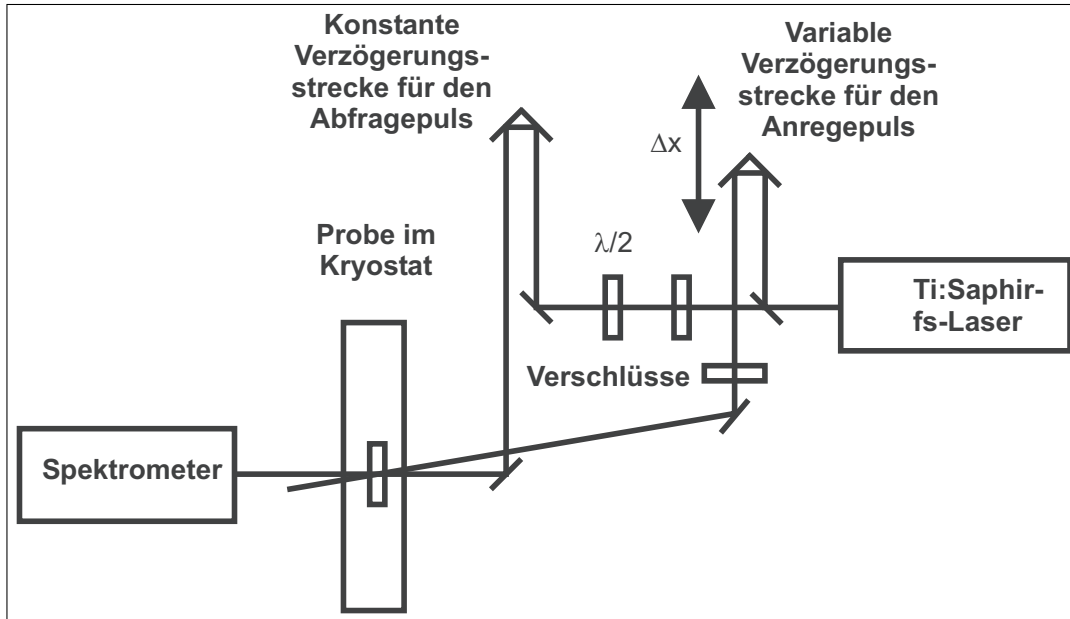


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Anrege-Abfrage-Spektroskopie. Ein Anregepuls regt in der Probe Ladungsträger an, die den Absorptionskoeffizienten der Probe verändern, was mit dem Abfragepuls detektiert wird. Die Messung der Änderung in Abhängigkeit der Verzögerungszeit  $t_p$  ergibt die Ladungsträgerdynamik in der Probe.

Bei der Anrege-Abfrage-Spektroskopie (Abbildung 3.6) untersucht man mit einem Abfragepuls (probe) das Absorptionsverhalten von Stoffen nach der Zeit  $t_p$  ihrer optischen Anregung durch den Anregepuls (pump). Daraus kann anschließend die Dynamik der Ladungsträger abgeleitet werden. Befinden sich diese nicht mehr in der kohärenten Phase, so kann man, nach dem Beer-Lambert'schen Gesetz die Intensität des transmittierten Abfragestrahls durch

$$I_p(\omega)_{pump\ off} = |E_p(\omega)|_{pump\ off}^2 = |E_0|^2 e^{-\alpha L} \quad (3.3)$$

ausdrücken, wobei  $E_0$  die Amplitude des auf die Probe einfallenden Abfragelichtfeldes,  $E_p(\omega)$  hinter der Probe,  $\alpha$  der Absorptionkoeffizient und  $L$  die Länge der Probe ist. Ebenso gilt für die Intensität des transmittierten Abfragestrahls nach

einer vorangegangenen optischen Anregung

$$I_p(\omega)_{pump\ on} = |E_p(\omega)|_{pump\ on}^2 = |E_0|^2 e^{-(\alpha+\Delta\alpha)L}, \quad (3.4)$$

wobei  $-\Delta\alpha$  die vom Anregepuls induzierte Absorptionsänderung ist [Pey93]. Für kleine Absorptionsänderungen nähert man die differentielle Absorption ( $-\Delta\alpha L$ ) als normierte Differenz des Transmissionssignals mit und ohne Anregung an:

$$-\Delta\alpha L(\omega) = \frac{I_p(\omega)_{pump\ on} - I_p(\omega)_{pump\ off}}{I_p(\omega)_{pump\ off}}. \quad (3.5)$$

Die differentielle Absorption  $-\Delta\alpha L$  ist die Größe, die bei allen Messungen in Kapitel 5 bestimmt wurde.

Ihre Berechnung weicht allerdings von der oben genannten Formel ab, weil die gemessenen Intensitätsspektren  $I(\omega)_{pump\ on}^{probe\ on}$  und  $I(\omega)_{pump\ off}^{probe\ on}$  von den in Gleichung 3.6 verwendeten abweichen. Jedes detektierte Signal enthält zusätzlich ein Untergrundrauschen  $I(\omega)_{pump\ off}^{probe\ off}$  und ein Lumineszenzsignal der Probe als Folge der Anregung. Wie in [Vol99a] hergeleitet ist, kann man beide Störsignale herausrechnen, wenn man alle Permutationen von ein- und ausgeschalteten Anrege- und Abfragepulsen registriert:

$$-\Delta\alpha L(\omega) = \ln \left( \frac{I(\omega)_{pump\ on}^{probe\ on} - I(\omega)_{pump\ on}^{probe\ off}}{I(\omega)_{pump\ off}^{probe\ off} - I(\omega)_{pump\ off}^{probe\ on}} \right). \quad (3.6)$$

Die optischen Eigenschaften von Halbleitern zeigen bei hohen Anregungsintensitäten nichtlineare Effekte, d.h. sie werden abhängig von der Anregungsintensität.

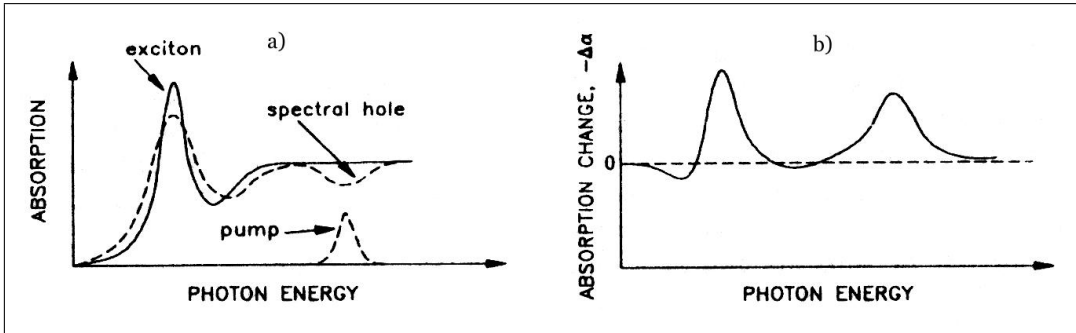


Abbildung 3.7: a) Die durchgezogene Linie stellt das Absorptionsspektrum einer Probe ohne und die gestrichelte Linie mit vorangegangener optischer Anregung dar. b) Man erkennt eine Absorptionsänderung bei der Exzitonresonanz (Ausbleichen) und bei der Energie des Anregepulses (spektrales Lochbrennen) (aus [Pey93]).

Einer der stärksten Effekte, der auch in der vorliegenden Arbeit ausgenutzt wird, ist das Ausbleichen der Exzitonresonanz (Abbildung 3.7). Die erzeugten Exzitonen relaxieren zum Bandminimum, wo sie Zustände besetzen, in die wegen dem Pauli-Prinzip keine weiteren Exzitonen mehr angeregt werden können (Pauli-Blocking).

Dadurch verringert sich das Absorptionsvermögen des Halbleiters und ein Ausbleichen der Exzitonresonanz ist zu beobachten. Die Abschirmung und Schwächung der Coulomb-Anziehung der Exzitonen durch Elektronen und Löcher verursacht eine Blauverschiebung (d.h. zu höheren Energien) der exzitonischen Resonanz. Rechnungen zeigen, dass dies durch die Berücksichtigung von Coulomb-Wechselwirkungen höherer Ordnung kompensiert wird, sodass weder Pauli-Blocking noch Coulomb-Wechselwirkung eine Energieverschiebung der Exzitonresonanz induzieren [Mei99].

### 3.2.1 Ortsaufgelöste Anrege-Abfrage-Spektroskopie

Bei der ortsaufgelösten Anrege-Abfrage-Spektroskopie wird die Zeitauflösung der Anrege-Abfrage-Spektroskopie mit der Ortsauflösung der Mikroskopie kombiniert. Dadurch ist es möglich, sowohl die zeitliche als auch die räumliche Dynamik einer Ladungsträgerverteilung zu untersuchen. Abbildung 3.8 zeigt den experimentellen Aufbau.

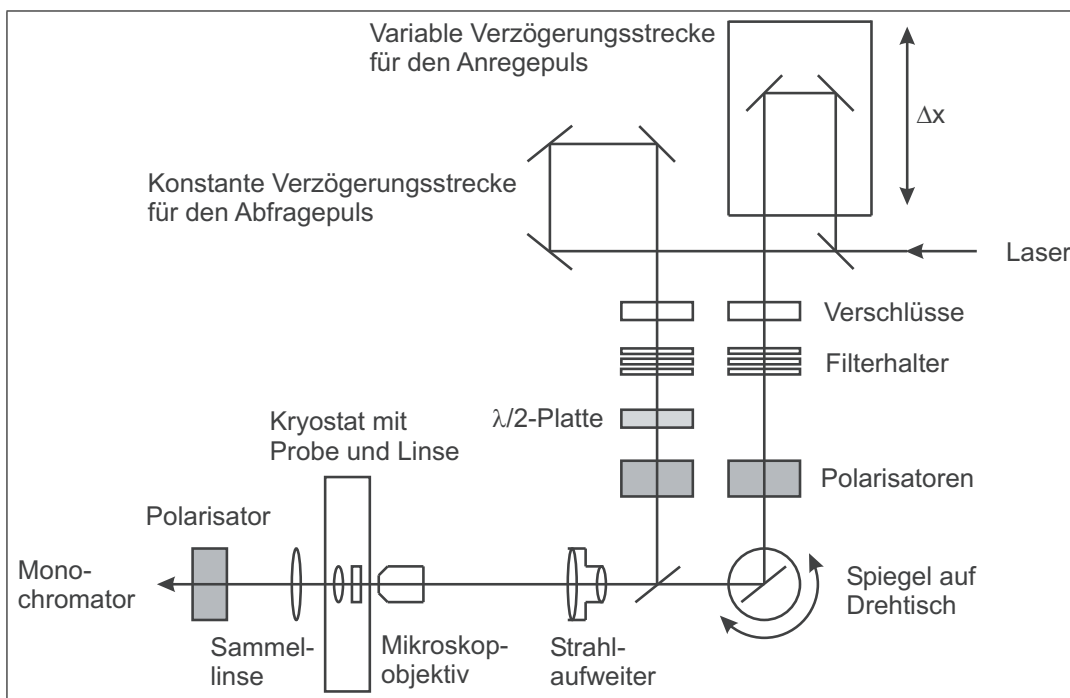


Abbildung 3.8: Aufbau zur ortsaufgelösten Anrege-Abfrage-Spektroskopie

Der Laserpuls wird durch den ersten Strahlteiler in einen Anrege-Puls und einen Abfrage-Puls aufgeteilt. Der Anrege-Puls durchläuft eine variable Verzögerungsstrecke und einen Polarisator und wird durch einen Spiegel auf einem Drehtisch auf die Probe gelenkt. Der Abfrage-Puls durchläuft eine feste Verzögerungsstrecke. Eine  $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte dreht die Polarisation um  $90^\circ$ , sodass beide Pulse nun

senkrecht zueinander linear polarisiert sind. An dem zweiten Strahlteiler wird der Abfrage-Puls mit dem Anrege-Puls wieder zusammen geführt.

Beide Pulse werden durch einen Strahlaufweiter auf den zehnfachen Durchmesser aufgeweitet und von einem Mikroskop-Objektiv auf die Probe im Kryostaten fokussiert. Direkt hinter der Probe befindet sich eine asphärische Linse, welche zusammen mit einer zweiten Linse außerhalb des Kryostaten den transmittierten Anteil der Pulse rekollimiert. Ein weiterer Polarisator unterdrückt den Anrege-Puls, sodass nur der Abfrage-Puls im Spektrometer detektiert wird.

Durch den Drehtisch lässt sich der Einfallswinkel  $\alpha$  des Anrege-Pulses zur optischen Achse des Objektivs ändern. Dies führt zu einer Verschiebung  $\Delta x$  in der Fokusebene:

$$\tan(\alpha) = \frac{\Delta x}{f}, \quad (3.7)$$

wobei  $f = 8,25 \text{ mm}$  die Brennweite des Objektivs ist. Dadurch ist möglich, beide Pulse relativ zueinander mit einer Schrittweite von etwa  $30 \text{ nm}$  zu positionieren [Kov03].

Bei den Messungen in Kapitel 5 wird ein Objektiv der Firma Zeiss (LD-Achroplan 20x/0,4) mit einer numerischen Apertur von 0,40 benutzt. Damit erhält man bei der verwendeten Wellenlänge von  $862 \text{ nm}$  nach Gleichung 2.21 eine Ortsauflösung von  $1,1 \mu\text{m}$ . Auch hier kann das Auflösungsvermögen durch die Verwendung einer SIL deutlich gesteigert werden [Vol99b].

Zur Untersuchung der räumlichen Dynamik muß die lokale Ladungsträgerdichte bestimmt werden. Dazu wird der Betrag der nach Gleichung 3.6 bestimmten differentiellen Absorption über den Spektralbereich der Exzitaresonanz numerisch integriert:

$$I(\Delta x) = \int_{850 \text{ nm}}^{860 \text{ nm}} |-\Delta\alpha L(\lambda)| d\lambda \quad (3.8)$$

Durch die Variation des Strahlabstandes  $\Delta x$  kann so die Ladungsträgerverteilung Punkt für Punkt abgetastet werden. Die so gemessene Verteilung stellt eine Faltung der Ladungsträgerverteilung mit dem Intensitätsprofil des Abfrage-Pulses dar. Da das Intensitätsprofil einer Gauß-Kurve entspricht (siehe Abbildung 2.12) kann die Verteilung entfaltet werden.



### 3.3 Depolarisations-SNOM

In diesem Abschnitt soll der Aufbau des Depolarisations-SNOM, das für die Messungen an den ferromagnetischen *MnAs*-Cluster in Kapitel 6 verwendet wurde, kurz beschrieben werden. Die Details können in [Leu00, Sch00] nachgelesen werden.

Eine Möglichkeit, um mit unbedampften Sonden Nahfeldauflösung zu erreichen, ist das Depolarisation-SNOM [Fre98a, Fre98b, Fre99]. Dabei wird im internen Reflexionsmodus gearbeitet. Abbildung 3.9 zeigt den Aufbau schematisch.

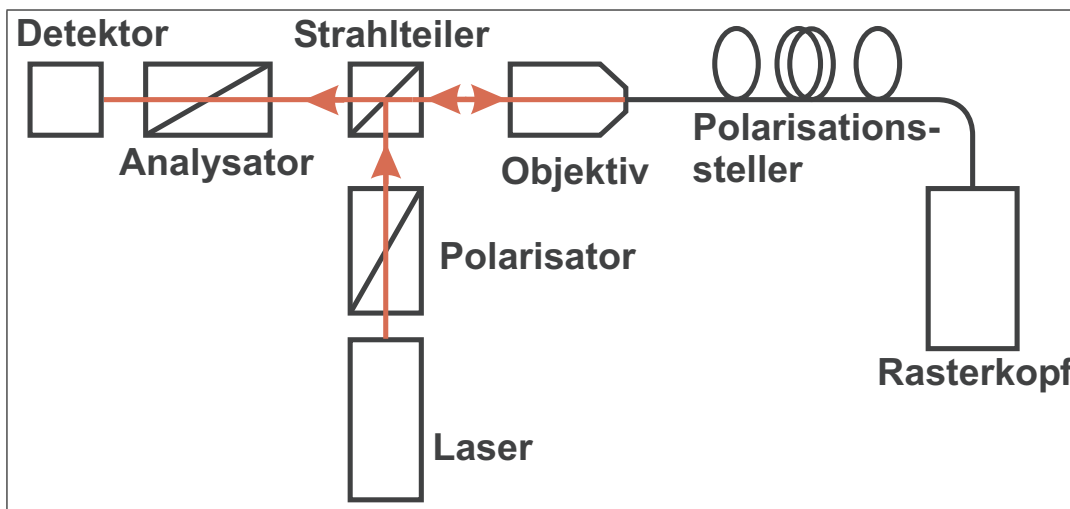


Abbildung 3.9: Aufbau Depolarisations-SNOM

Das Licht eines Lasers wird durch einen Polarisator linear polarisiert und über einen Strahlteiler und ein Mikroskopobjektiv in die Faser eingekoppelt. In der Faser ist ein Polarisationssteller integriert, der aus mehreren Faserschlaufen besteht. Die linke und die rechte Schlaufe sind Einfachschlaufen und bilden zwei  $\lambda/4$ -Plättchen nach. Damit kann die durch Biegung der Faser hervorgerufene Depolarisation in der Faser kompensiert werden. Die mittlere Schlaufe ist eine Doppelschleife und wirkt wie ein  $\lambda/2$ -Plättchen, mit dem die Polarisationssebene eingestellt werden kann.

Das Licht durchläuft die Faser bis zur Spitze, die sich am Rasterkopf befindet. Dort tritt das Licht aus und wird reflektiert. Das reflektierte Licht wird durch die Spitze wieder eingesammelt und läuft in der Faser zurück. Da die Spitze unbedampft ist, erfolgt der Austritt und das Einsammeln des Lichtes nicht nur an der Spitze, sondern am gesamten Sekundärkegel und teilweise auch an der Frontfläche. Dadurch wird die Probe sowohl im Fernfeld als auch im Nahfeld beleuchtet. Auch beim Einsammeln durch die Fasersonde werden Fern- und Nahfeld-Komponenten detektiert. Die Fernfeld-Komponente ist parallel zum einfallenden Licht polarisiert. Die Polarisation der Nahfeld-Komponente hingegen wird durch eine Änderung der dielektrischen Funktion in der Probe gedreht, wenn die Polarisationssebene des einfallenden Lichtes senkrecht zur Änderung steht. Abbildung 3.10 soll dies verdeutlichen.

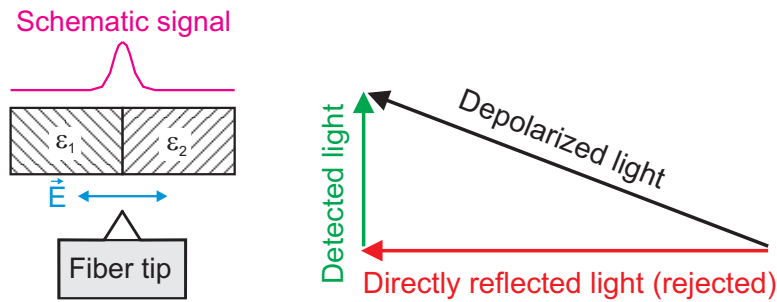


Abbildung 3.10: Signalentstehung im Depolarisations-SNOM. Eine Änderung der dielektrischen Funktion in der Probe führt zu einer Depolarisation des Lichtes, wenn die Polarisations Ebene senkrecht zur Änderung steht.

Durch einen Analysator, der senkrecht zum Polarisator steht, werden die Fernfeld-Anteile unterdrückt und nur der Anteil, dessen Polarisation im Nahfeld gedreht wurde gelangt zum Detektor.

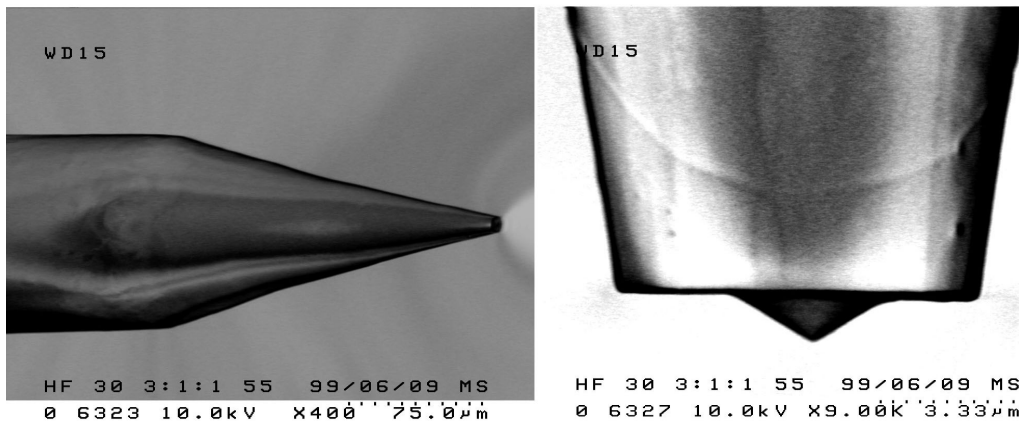


Abbildung 3.11: Im Zwei-Schritt-Verfahren geätzte Faser-Sonde

Das Signal, das beim Depolarisations-SNOM detektiert wird, ist als proportional zur Änderung der dielektrischen Funktion der Probe.

Um ein möglichst gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu erhalten, darf der Polarisationsgrad des Lichtes durch die Fasersonde selbst nur geringfügig depolarisiert werden. Mit Faser-Sonden, die in einem Zwei-Schritt-Verfahren geätzt werden (siehe Abbildung 3.11, lassen sich Polarisationsgrade von 1 : 2000 bis 1 : 5000 erreichen [Leu00]. Im Gegensatz dazu erreicht man mit gezogenen Spitzen einen Polarisationsgrad von nur 1 : 20.

Um die Spitze im Nahfeld der Probe zu halten, muss der Abstand auf wenige *nm* geregelt werden. Dabei werden zwei verschiedene Modi angewandt:

- Konstanter Abstand (engl.: *constant distance mode, CDM*):  
in diesem Modus wird die Spitze durch eine aktive Abstandsregelung in konstantem Abstand zur Probenoberfläche gehalten, die Probentopographie wird nachgeregelt (siehe Abbildung 3.12 a)). Aufgrund der geringen Bandbreite der Regelung [Lip98] kann die Probe nur langsam abgerastert werden. Allerdings können auch Proben mit großen Höhenunterschieden untersucht werden, und man erhält zusätzlich zu der optischen Information auch die Topographie der Probe.
- Konstante Höhe (engl.: *constant height mode, CHM*):  
in dieser Betriebsart wird die Spitze in konstanter Höhe über eine mittlere Ebene der Probe gerastert, die Abstandsregelung ist dabei ausgeschaltet (siehe Abbildung 3.12 b)). Dadurch kann die Probe wesentlich schneller abgerastert werden. Dieser Modus kann allerdings nur bei relativ flachen Proben (Rauigkeit  $\leq 100 \text{ nm}$ ) verwendet werden, da sonst der Abstand zwischen Spitze und Probe so groß wird, dass nicht mehr an allen Positionen im Nahfeld gemessen wird. Außerdem erhält man beim CHM keine Topographie.

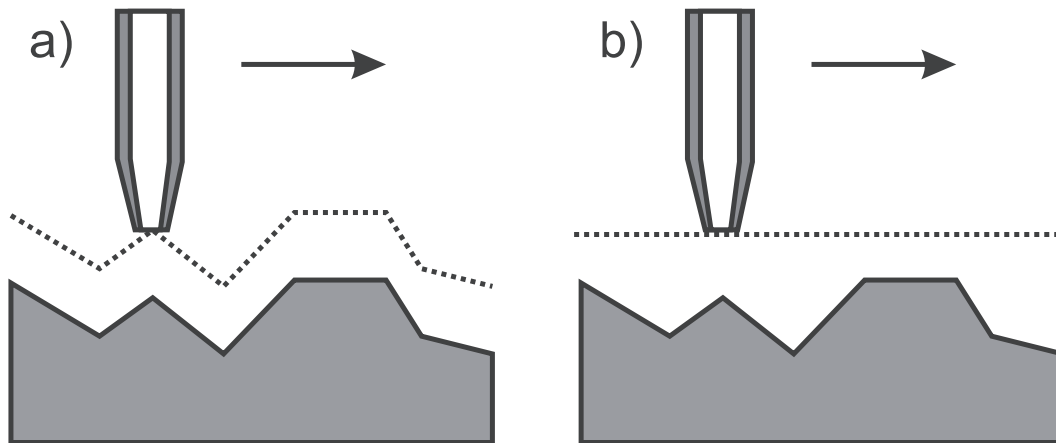


Abbildung 3.12: Modi der Abstandsregelung, a) konstanter Abstand, b) konstante Höhe.



# 4 Spektroskopie an *GaAs*-Quantenfilmen

In diesem Kapitel werden Photolumineszenz-Messungen an *GaAs*-Quantenfilmen vorgestellt. Zuerst wird die verwendete Probe beschrieben. Danach werden die ortsaufgelösten Messungen dargestellt und dann die zeitaufgelösten.

## 4.1 Probencharakterisierung

Die untersuchte Probe wurde in der Arbeitsgruppe von Professor Wieck in Bochum hergestellt und trägt die Nummer 1294. Die Probe wurde im MBE-Verfahren gewachsen und enthält 12 Quantenfilme verschiedener Dicke von 19,8 nm bis 3,3 nm. Dabei ist der 19,8 nm Quantenfilm der oberste Film in der Probe und der 3,3 nm der unterste. Die Einzel-Quantenfilme bestehen aus *GaAs*, und sind durch Barrieren aus *AlAs* getrennt.

Abbildung 4.1 zeigt einen Überblick über die Photolumineszenzspektren der zwölf Quantenfilme. Deutlich erkennt man eine mit abnehmender Filmdicke zunehmende Linienbreite. Während die dicken Filme (19,8 nm bis 9,9 nm) eine nahezu homogen verbreiterte Linie zeigen, sind die Linien bei den dünnen Filmen stark inhomogen verbreitert. Da sowohl die Filme als auch die Barrieren nur aus binären Halbleitern bestehen, zeigt die Probe keine Legierungsunordnung, sodass als Ursache für die inhomogene Verbreiterung nur die Grenzflächenrauigkeit in Frage kommt. Beim Übergang vom 19,8 nm-Film zum 4,0 nm-Film steigt der Einfluss der durch die Grenzflächenrauigkeit verursachten Unordnung an.

Die unterschiedlichen Filmdicken führen zu einer unterschiedlichen Absorption in den einzelnen Filmen bei gleicher Anregungsleistung. Außerdem ist die einfallende Leistung für die dünnen Filme geringer als für die dicken, da die darüber liegenden Filme bereits einen Teil der Leistung absorbiert haben. Der Zusammenhang zwischen der Stärke der ND-Filter, die zur Abschwächung des Anregungs-Lasers benutzt werden, und der Anregungsdichte in den einzelnen Quantenfilmen ist in Abbildung 4.2 dargestellt.

Dabei wurde bei allen Filmen der Absorptionskoeffizient  $\alpha$  für *GaAs*-Volumenmaterial zur Berechnung verwendet, da bei der hochenergetischen Anregung 1,96 eV der

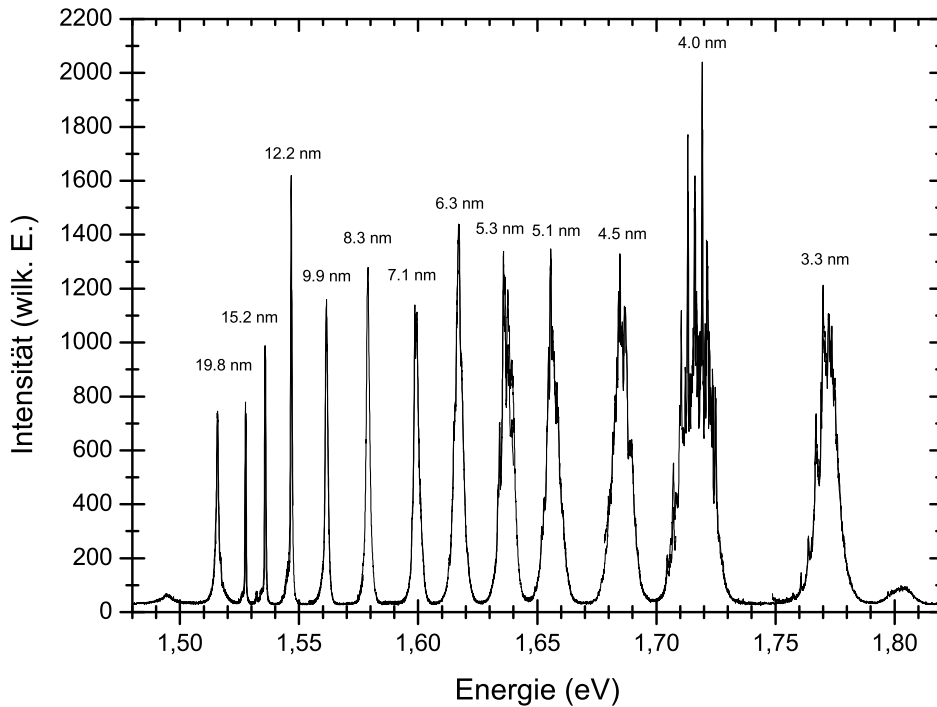


Abbildung 4.1: Photolumineszenz der Probe *Bo#1294*

Einfluss des Confinements auf die Absorption vernachlässigt werden kann. Außerdem sind die Absorptionskoeffizienten der einzelnen Filme für diese Photonenenergie nicht bekannt. Aus der in den einzelnen Filmen absorbierten Leistungsdichte  $P$ , der Photonenenergie des Anregungslasers  $\hbar\omega_{ex}$  und der Lebensdauer der Anregung  $\tau$  lässt sich die Ladungsträgerdichte  $n$  bestimmen:

$$n = \frac{P}{\hbar\omega_{ex}} \tau . \quad (4.1)$$

Mit einer Photonenenergie  $\hbar\omega_{ex} = 1,96 \text{ eV}$  und einer Lebensdauer  $\tau = 800 \text{ ps}$  (entspricht etwa dem Mittelwert der in Kapitel 4.4 bestimmten Abfallzeit für niedrige bis mittlere Dichten) erhält man für den  $19,8 \text{ nm}$  Film Ladungsträgerdichten von etwa  $1,4 \cdot 10^9 \text{ 1/cm}^2$  bis etwa  $1,2 \cdot 10^{12} \text{ 1/cm}^2$ . Da allerdings die Abfallzeit dichteabhängig ist, sind die angegebenen Ladungsträgerdichten nur Näherungswerte.

Außerdem wurde bei der Herleitung von Gleichung 4.1 die Diffusion vernachlässigt, was gerade bei der stark lokalisierten Anregung in der Mikro-PL eine erhebliche Fehlerquelle darstellt. Deshalb sind die oben angegebenen Dichten eher als obere Grenze zu betrachten. Die tatsächlichen Dichten in den Filmen sind deutlich gerin-

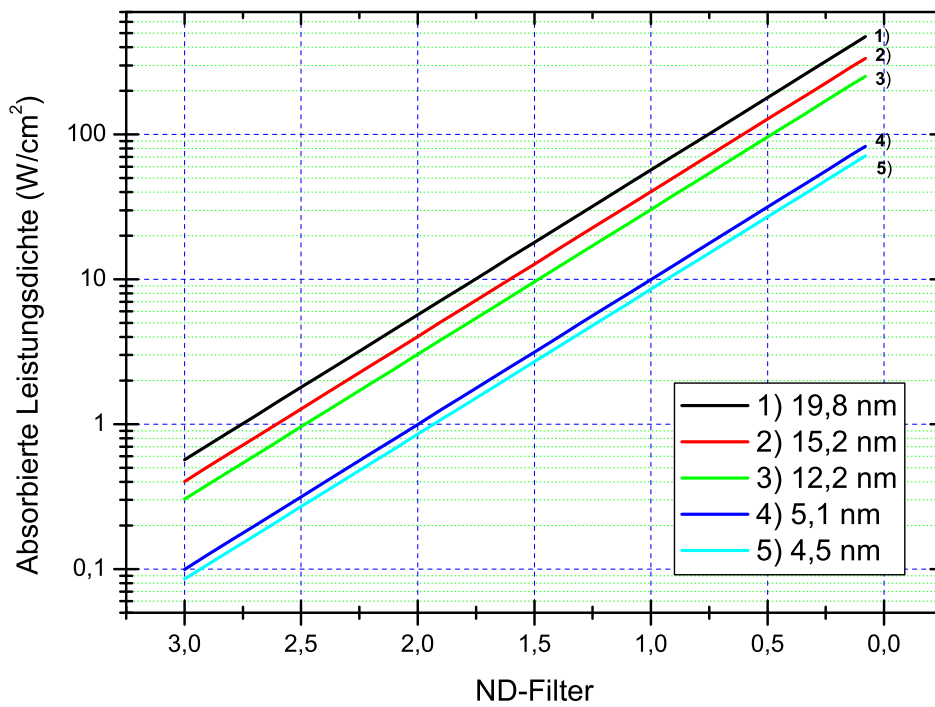


Abbildung 4.2: Anregungsdichte in den einzelnen Quantenfilmen

ger. Im Folgenden wird daher auf die Angabe von Ladungsträgerdichten verzichtet und stattdessen die im Film absorbierte Leistungsdichte oder der bei der Messung verwendete ND-Filter angegeben.

## 4.2 Ortsaufgelöste Photolumineszenz an homogenen Quantenfilmen

Hier folgen nun die ortsaufgelösten Messungen an homogenen Filmen. Zunächst wird der Einfluss des Auflösungsvermögens, dann die Intensitätsabhängigkeit und zuletzt die Temperaturabhängigkeit betrachtet. Die Messungen wurden, soweit nicht anders angegeben, bei einer Kühlfinger-Temperatur von  $5\text{ K}$  durchgeführt.

### 4.2.1 Einfluss des Auflösungsvermögens

Zuerst soll hier der Einfluss des lateralen Auflösungsvermögens auf die Spektren der homogenen Filme diskutiert werden.

Abbildung 4.3 zeigt Spektren, die mit unterschiedlicher Ortsauflösung aufgenommen wurden. In a) mit  $25\ \mu\text{m}$  Pinhole und GaP-SIL, in b) mit Pinhole aber ohne GaP-SIL und in c) ohne Pinhole und SIL. Die Anregungsdichten betragen bei allen drei Messungen  $0,6\text{ W/cm}^2$  für den  $19,8\text{ nm}$  Quantenfilm,  $0,46\text{ W/cm}^2$  für den  $15,2\text{ nm}$  Quantenfilm und  $0,34\text{ W/cm}^2$  für den  $12,2\text{ nm}$  Quantenfilm.

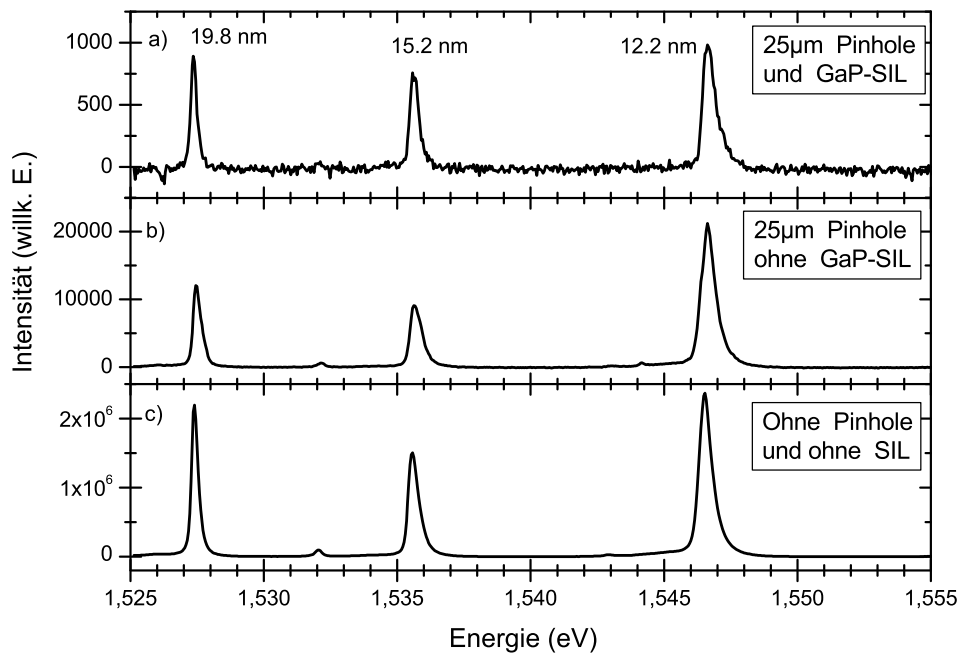


Abbildung 4.3: Spektren der drei dicksten Filme, gemessen mit unterschiedlicher Ortsauflösung: a) mit  $25\ \mu\text{m}$  Pinhole und GaP-SIL, b) mit  $25\ \mu\text{m}$  Pinhole aber ohne SIL und c) ohne Pinhole und ohne SIL



Da die dicken Filme sehr homogen sind, spielt das räumliche Auflösungsvermögen bei den Messungen keine Rolle. Sowohl die Lage der Maxima als auch die Linienform sind unabhängig von der Ortsauflösung. Dies sieht man deutlich in Abbildung 4.4. Die normierten Spektren für die unterschiedlichen Auflösungsvermögen sind nahezu deckungsgleich.

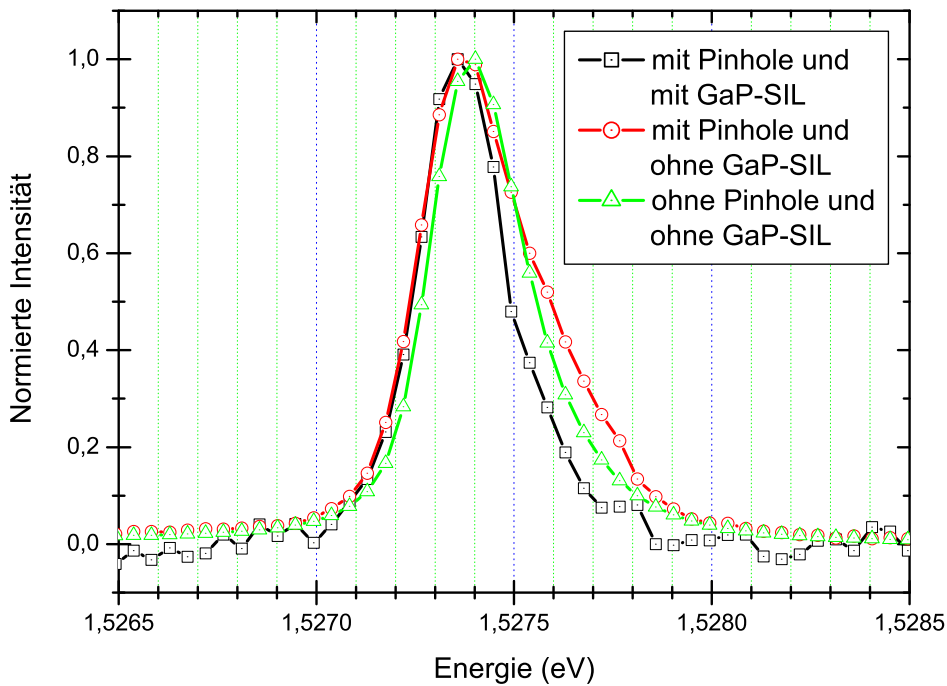


Abbildung 4.4: Normierte Spektren des 19,8 nm-Quantenfilms bei unterschiedlichen Ortsauflösungen

Die PL-Intensität sinkt mit zunehmendem Auflösungsvermögen (abnehmender Halbwertsbreite der Detektionsfläche), da die Fläche, aus der die PL eingesammelt wird, abnimmt. Beispielsweise verringert sich die Intensität von Abbildung 4.3 b) (ohne SIL) zu Abbildung 4.3 a) (mit SIL) auf 1/10, da das Auflösungsvermögen mit *GaP*-SIL um einen Faktor 3,2 höher ist als ohne SIL. Dadurch reduziert sich die Fläche auf 1/10 ( $3,2^2 \approx 10$ ).

Bei der Messung ohne Pinhole ist die PL-Intensität allerdings nicht mehr proportional zur Detektionsfläche, da hier die Anregungsfläche deutlich kleiner ist als die Detektionsfläche (siehe Kapitel 3.1.1).

### 4.2.2 Intensitätsabhängigkeit

Im Gegensatz zur Unabhängigkeit vom Auflösungsvermögen zeigt die Linienform der Photolumineszenz eine starke Abhängigkeit von der Anregungsdichte. Abbildung 4.5 zeigt Spektren der drei dicken Filme für sieben unterschiedliche Anregungsdichten.

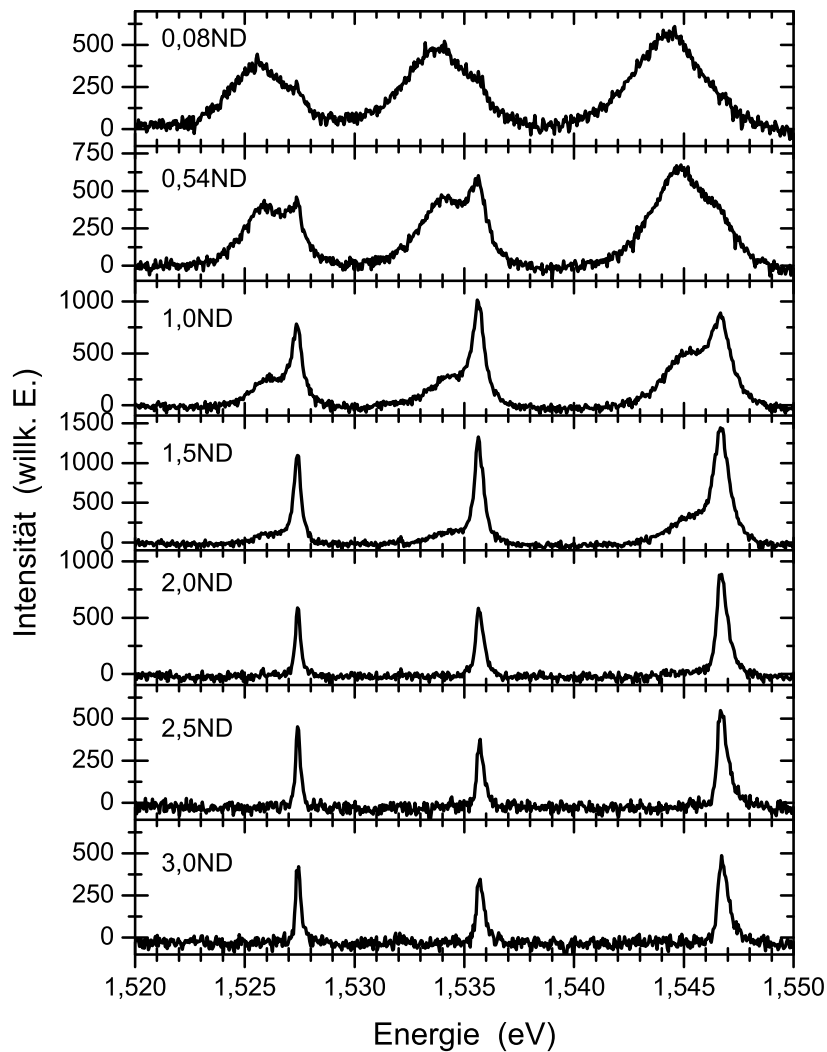


Abbildung 4.5: Abhängigkeit der Photolumineszenz der dicken Quantenfilme von der Anregungsdichte

Man erkennt, dass für niedrige Anregungsdichten ( $3,0 \text{ ND}$ ) nur ein Übergang je Film zu beobachten ist. Dieser Übergang kann der Exziton-Rekombination zugeschrieben werden. Bei zunehmender Anregungsdichte ( $\geq 1,5 \text{ ND}$ ) kann man zwei

Maxima erkennen. Der zweite Übergang liegt auf der niederenergetischen Seite der jeweiligen Quantenfilmübergänge. Dieser niederenergetische Übergang dominiert das Spektrum bei hohen Anregungsdichten und zeigt eine deutlich größere Linienbreite.

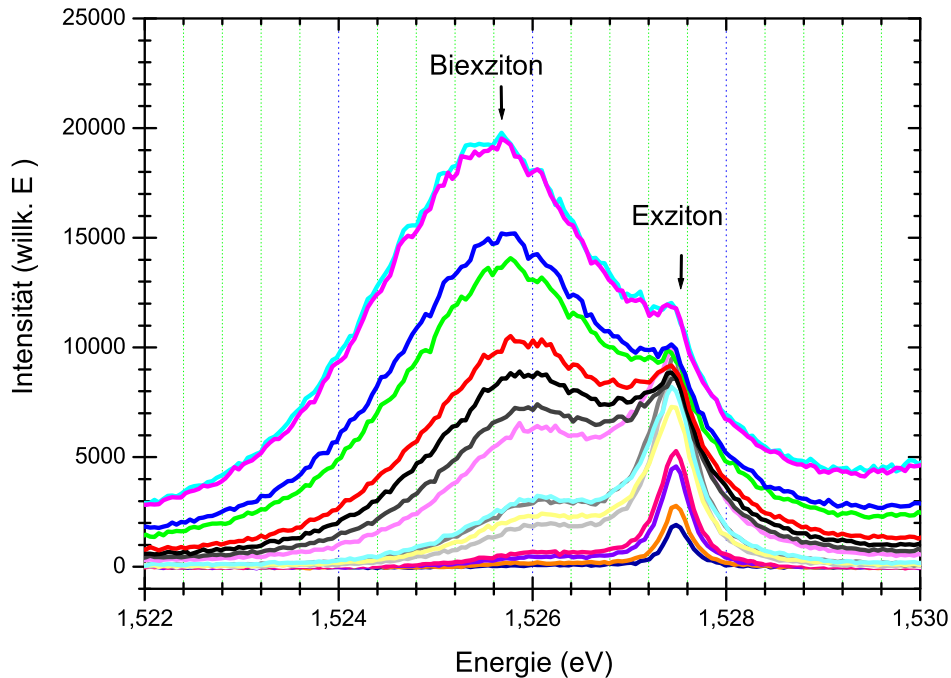


Abbildung 4.6: Der  $19,8\text{nm}$  Quantenfilm für verschiedene Anregungsdichten

In Abbildung 4.6 ist dies für den  $19,8\text{ nm}$  Quantenfilm nochmals deutlicher dargestellt. Die Anregungsdichte wurde dabei um etwa einen Faktor 1000 variiert. Während sich die Position des Exziton-Übergangs bei zunehmender Anregungsdichte nicht verändert, ändert sich die Position der niederenergetischen Linie mit steigender Anregungsdichte deutlich. Diese Rotverschiebung kann man in Abbildung 4.6 deutlich erkennen.

Zur genaueren Auswertung wurden an die einzelnen Spektren Gauß- und Lorentz-Kurven angepasst. Die Exziton-Linie hat die Form einer Lorentz-Kurve, ist also nur homogen verbreitert (siehe Abbildung 4.7).

Zur Anpassung der niederenergetischen Linie wurden zwei verschiedene Modelle verwendet. Im ersten Modell wurde die höherenergetische Linie durch eine Lorentz-Kurve und die niederenergetische Linie durch eine Gauß-Kurve angepasst (Modell Gauß-Lorentz). Im zweiten Modell wurden beide Linien durch Lorentz-Kurven angepasst (Modell 2-Lorentz). Die aus der Anpassung der beiden Modelle erhaltenen Kurven sind zusammen mit dem gemessenen Spektrum in Abbildung 4.8 dargestellt.

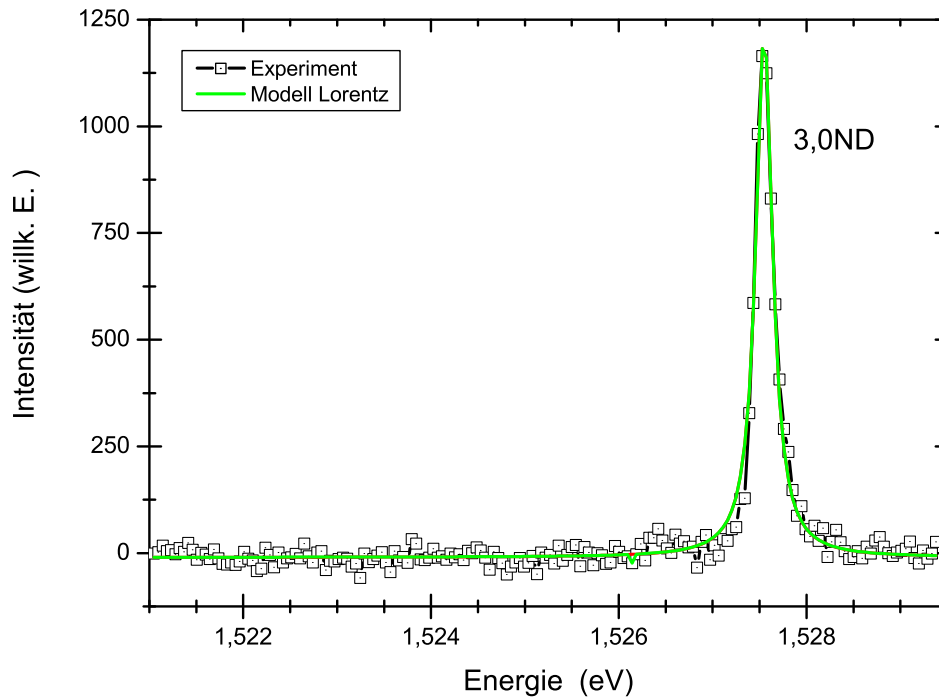


Abbildung 4.7: Anpassung der Linienform für niedrige Anregungsdichte

Die angepassten Kurven der beiden Modellen unterscheiden sich deutlich. Während das Modell Gauß-Lorentz das gemessene Spektrum recht gut beschreibt, weicht das Modell 2-Lorentz deutlich von den Messwerten ab. Dies gilt vor allem an den beiden Flanken des Spektrums. Die niederenergetische Linie zeigt im Gegensatz zur Exziton-Linie eine deutlich inhomogene Verbreiterung und kann daher nicht durch eine Lorentz-Kurve beschrieben werden.

In beiden Modellen ist die Halbwertsbreite der niederenergetischen Linie deutlich größer als die der höherenergetischen. Beide Breiten steigen mit der Anregungsdichte deutlich an. Die Halbwertsbreite der höherenergetischen Linie steigt durch anregungsinduziertes Dephasieren von  $210 \mu\text{eV}$  auf  $720 \mu\text{eV}$ , die der niederenergetischen von  $1,1 \text{ meV}$  auf  $2,8 \text{ meV}$ .

In Abbildung 4.9 wird die energetische Lage der Maxima der beiden Linien gezeigt, die aus der Anpassung mit dem Modell Gauß-Lorentz gewonnen wurden.  $X$  stellt die energetische Lage der Exziton-Linie und  $BX$  die des niederenergetischen Übergangs dar. Die beiden gestrichelten Linien zeigen die Lage der Exziton- und Biexziton-Übergänge, die mittels kohärenter Anregungsspektroskopie (engl.: *coherent excitation spectroscopy, CES*) bestimmt wurden [Fin03]. Diese Werte wurden

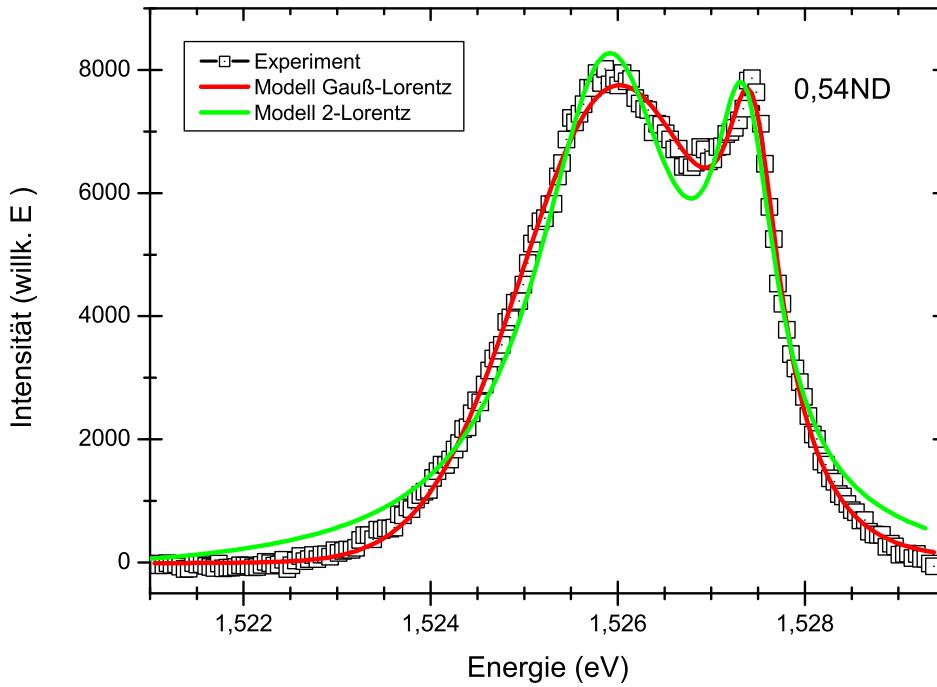


Abbildung 4.8: Anpassung der Linienform für hohe Anregungsdichten

bei einer mittleren Anregungsdichte gemessen. Die Biexzitonbindungsenergie aus den CES-Messungen beträgt  $1,2 \text{ meV}$ .

Wie man aus Abbildung 4.9 entnehmen kann, entspricht der Abstand der beiden Maxima für mittlere Anregungsdichten der Biexzitonbindungsenergie. Bei hoher Anregungsdichte steigt dieser Energieabstand auf  $1,8 \text{ meV}$  an. Der Energieabstand nimmt von der mittleren Anregungsdichte bis zur höchsten Anregungsdichte um etwa 50% zu. Dies ist auf die Rotverschiebung des niederenergetischen Übergangs bei hohen Anregungsdichten zurückzuführen. Nach theoretischen Arbeiten von Keldysh [Kel02] sollte die Biexziton-Bindungsenergie mit zunehmender Dichte abnehmen, was zu einer Blauverschiebung der Biexziton-Lumineszenz führen würde. Im hier vorliegenden Fall wird aber genau das Gegenteil, nämlich eine Rotverschiebung beobachtet.

Ein ähnliches Verhalten haben Ko und Mitarbeiter [Ko00] an  $\text{ZnO}$ -Filmen beobachtet. Sie führen die niederenergetische Linie aber nicht auf Biexzitonen zurück, sondern auf eine stimulierte Emission unter Beteiligung einer inelastischen Exziton-Exziton-Streuung. Dabei rekombiniert eines der Exzitonen, während das zweite Exziton in einen angeregten Zustand gestreut wird. Mit zunehmender Anregungsdichte wird das zurückbleibende Exziton in immer höhere angeregte Zustände ge-

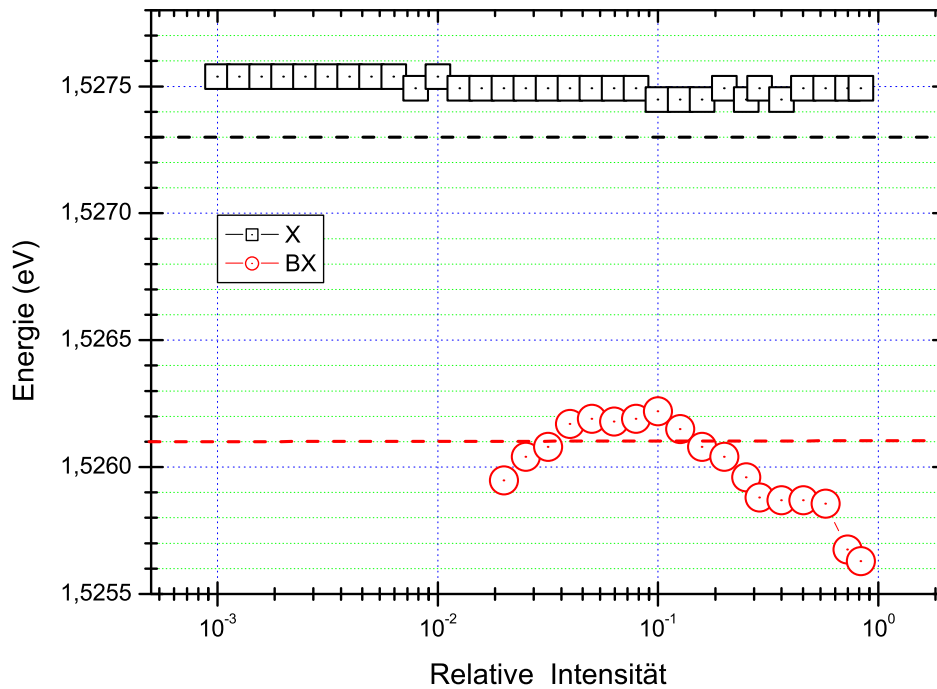
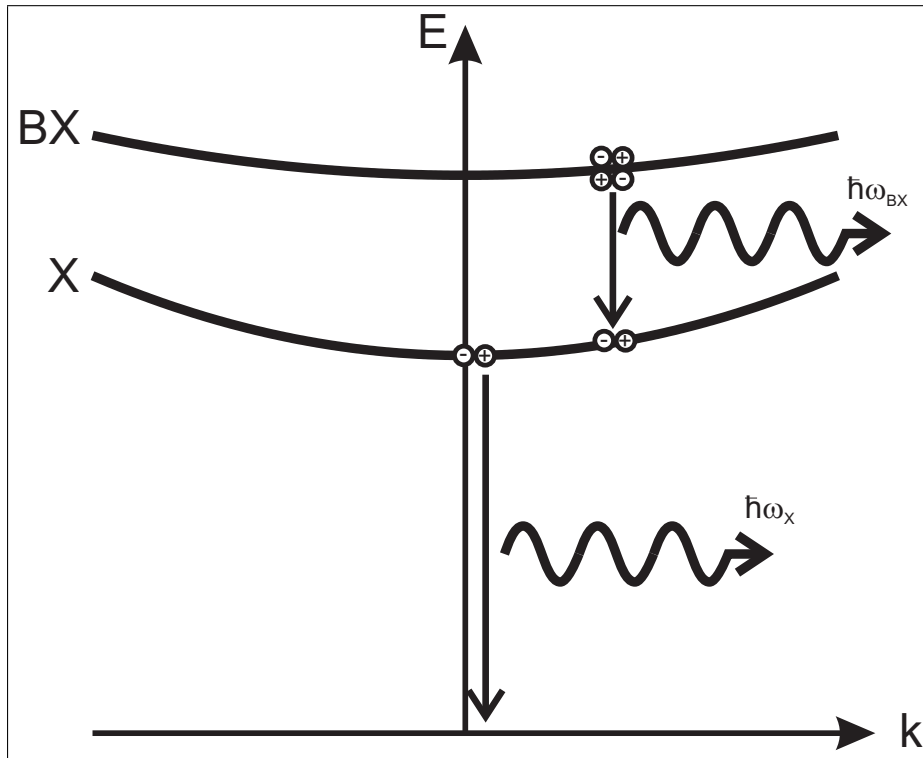


Abbildung 4.9: Energetische Lagen der beiden Maxima des 19,8 nm Quantenfilms für verschiedene Anregungsdichten

streut, sodass die Emission des rekombinierende Exzitons zu niedrigeren Energien schiebt. Diese Modell kann aber hier nicht angewandt werden, da die Verschiebung mit 0,6 meV zu klein ist, um ein Exziton in einen angeregten Zustand zu streuen. Das oben beschriebene Verhalten ist unabhängig von der Ortsauflösung und wurde auch bei dem 15,2 nm- und dem 12,2 nm-Quantenfilm beobachtet. Auch hier nimmt die Bindungsenergie mit steigender Anregungsdichte um etwa 50% zu.

Eine mögliche Erklärung könnte die Rekombination von Biexzitonen mit  $k \neq 0$  sein. Die Rekombination eines Exzitons ist nur für verschwindenden Schwerpunktsimpuls möglich, da der Photonenimpuls gering ist. Im Gegensatz dazu ist die Rekombination eines Biexzitons auch bei größerem Schwerpunktsimpuls möglich, da das zurückbleibende Exziton die Impulserhaltung gewährleistet [Kim94].

Da die effektive Masse der Biexzitonen größer ist als die der Exzitonen haben sie auch eine geringere Dispersion (siehe Abbildung 4.10), was dazu führt, dass der energetische Abstand zwischen den beiden Bändern abnimmt. Die Lage der Biexziton-Lumineszenz wird aber durch diesen Abstand bestimmt. Dies führt zu einer Rotverschiebung mit steigendem Schwerpunktsimpuls der rekombinierenden Biexzitonen.


 Abbildung 4.10: Dispersion für Exzitonen ( $X$ ) und Biexzitonen ( $BX$ ).

Die Temperatur der Ladungsträger und damit auch ihre kinetische Energie steigt mit steigender Anregungsdichte [Ulb73], was zu der beobachteten Rotverschiebung führt. Dieser Effekt wurde auch schon von Cingolani und Mitarbeitern [Cin88] an  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ -Quantenfilmen beobachtet. Im Gegensatz zu den hier gemessenen Spektren sehen die Autoren allerdings auch eine Blauverschiebung und eine deutliche Zunahme der Linienbreite der Exziton-Linie bei hohen Dichten. Selbst bei den höchsten Dichten dominiert dort die Exziton-Linie die Spektren.

Die Linienform der Biexziton-Lumineszenz kann nach [Cin88] beschrieben werden durch:

$$I(\hbar\omega) \propto \frac{\exp[-(E_X - E_{BBX} - \hbar\omega)/kT_{eff}]}{1 + \exp[-(E_X - E_{BBX} - \hbar\omega)/\Gamma_{BX}]} \quad (4.2)$$

Dabei ist  $E_X$  die Energie der Exziton-Linie,  $E_{BBX}$  die Biexziton-Bindungsenergie,  $T_{eff}$  die effektive Temperatur der Biexzitonen und  $\Gamma_{BX}$  ein Verbreiterungsfaktor.

Abbildung 4.11 zeigt die Anpassung der Linienform durch Gleichung 4.2. Dabei wurde die Exziton-Lumineszenz wiederum durch eine Lorentz-Linie angepasst. Zum Vergleich ist auch die Anpassung durch das Modell Gauß-Lorentz dargestellt. Auch hier erhält man durch das Modell Gauß-Lorentz eine bessere Übereinstimmung mit dem gemessenen Spektrum.

Aus der Anpassung nach Gleichung 4.2 erhält man eine, mit steigender Anre-

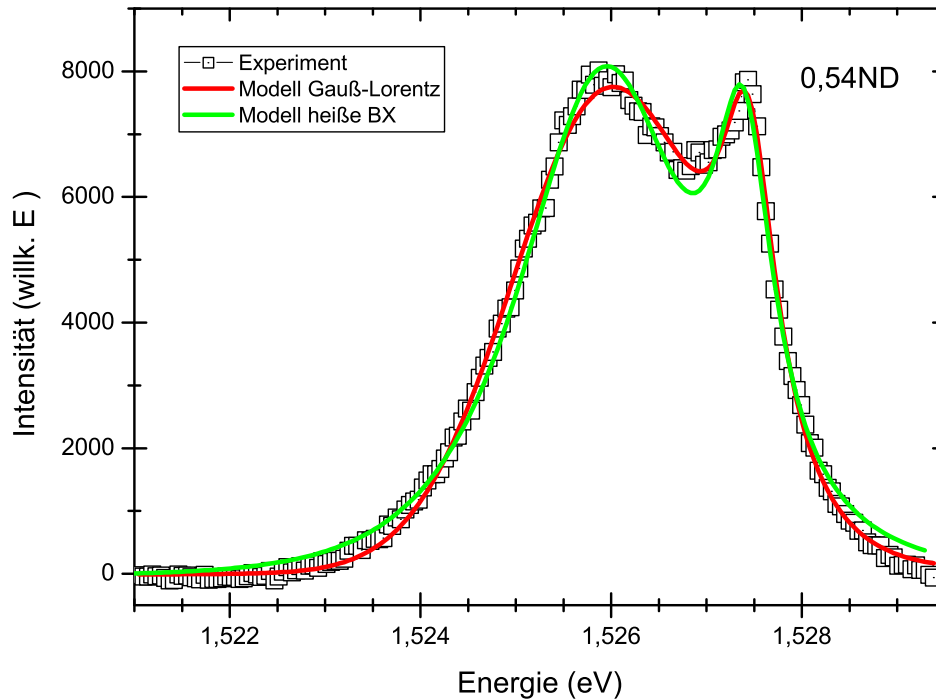


Abbildung 4.11: Anpassung der Linienform für heie Biexzitonen

gungsdichte, steigende effektive Temperatur. Die Temperatur steigt dabei von etwa  $6\text{ K}$  bei  $1,6\text{ ND}$  auf etwa  $13\text{ K}$  bei  $0,08\text{ ND}$  an. Dieser Temperaturanstieg ist aber nicht ausreichend, um die Rotverschiebung zu erklren. Zustzlich muss auch die Biexziton-Bindungsenergie in gleichem Mae variiert werden, wie bei den beiden anderen Modellen. Auerdem beschreibt Gleichung 4.2 die gemessenen Spektren nur geringfgig besser als das Modell 2-Lorentz, an den Flanken aber schlechter als das Modell Gau-Lorentz. Daher ist eine thermische Verteilung alleine nicht ausreichend, um das Intensittsverhalten der Biexziton-Linie zu erklren.

Zusammenfassend: im Gegensatz zur Exziton-Linie zeigt die Biexziton-Linie eine deutlich inhomogene Verbreiterung und eine starke Rotverschiebung mit steigender Anregungsdichte. Die Ursache fr dieses Verhalten ist derzeit noch unklar.

### 4.2.3 Temperaturabhngigkeit

In diesem Abschnitt wird die Temperaturabhngigkeit der PL untersucht. Fr die Messungen wurde das  $25\text{ }\mu\text{m}$  Pinhole und die GaP-SIL bei mittlerer Anregungsdichte ( $1,5\text{ ND}$ ) benutzt. Unter diesen Bedingungen wird nur die Khlfinger-Temperatur



von 5 K bis 150 K variiert.

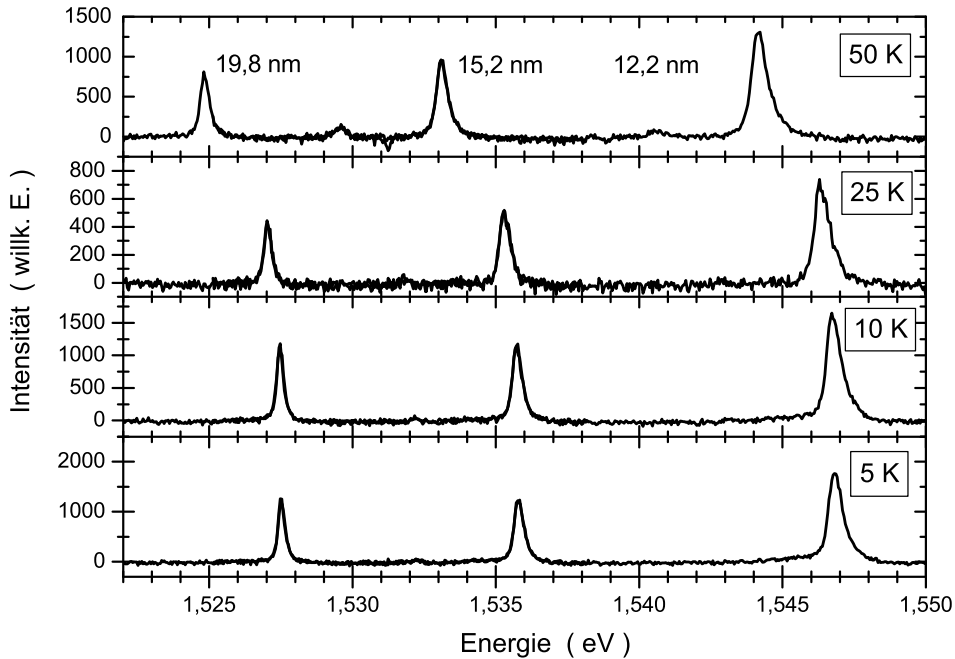


Abbildung 4.12: Temperaturabhängigkeit der Lumineszenz

Die so erhaltenen Spektren sind in Abbildung 4.12 gezeigt. Zunächst ändern sich die Spektren für Temperaturen von 5 – 10 K kaum, wogegen sich für höhere Temperaturen eine deutliche Rotverschiebung zeigt. Diese Rotverschiebung ist zu erwarten, da die Bandlücke mit steigender Temperatur kleiner wird. Abbildung 4.13 zeigt die Lage der Maxima der vier dicken Filme für verschiedene Temperaturen, die Symbole sind die Messwerte, die durchgezogene Linie angepasste Varshni-Kurven.

Als Ergänzung zu der in [HN03] durchgeführten Auswertung wurden hier zusätzlich noch der 9,9 nm-Film und das Substrat berücksichtigt. Außerdem wurden für die Filme auch noch die Spektren bei 150 K ausgewertet.

Die aus der Anpassung erhaltenen Parameter sind in Tabelle 4.1 zusammen mit den empfohlenen Werten für *GaAs*-Volumenmaterial aus [Vur01] aufgeführt. Zusätzlich sind in der letzten Zeile die Werte aus der Anpassung von Gleichung 4.3 angegeben (s.u.).

Die Parameter sind für die vier Quantenfilme und das Substrat mit Ausnahme der Bandlücke identisch. Die geringen Unterschiede der einzelnen Werte sind kleiner als die Messunsicherheit. Sie weichen zwar von den empfohlenen Werten deutlich ab, liegen aber noch innerhalb des in [Vur01] angegebenen Wertebereichs. Außer-

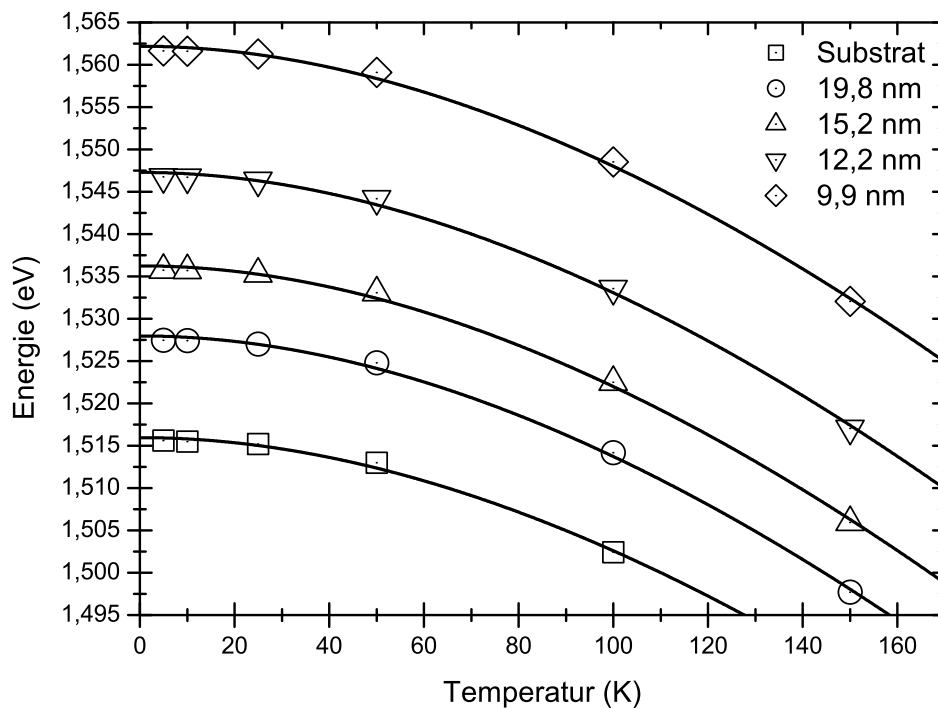


Abbildung 4.13: Temperaturabhängigkeit der Lage der Lumineszenz. Die Symbole kennzeichnen die Messwerte für die einzelnen Filme, die durchgezogenen Linien sind angepasste Varshni-Kurven.

dem stimmen sie mit anderen Werten, die ebenfalls aus Lumineszenz-Messungen bestimmt wurden [Gri92, EA93], sehr gut überein.

Die identischen Werte für das Substrat und die Quantenfilme zeigen, dass eine mögliche Verspannung, hervorgerufen durch unterschiedliche Ausdehnungskoeffizienten von Film und Barriere, hier keine Rolle spielt. Der Unterschied zwischen den Werten aus [Vur01] und den aus der PL bestimmten Werten könnte prinzipiell darauf zurückzuführen sein, dass bei der PL nicht die Bandlücke gemessen wird, sondern die um die Exzitonbindungsenergie verminderte Bandlücke. Da die effektive Massen, und damit auch die Exzitonbindungsenergie, ebenfalls temperaturabhängig sind könnte dies zu einem anderen Verlauf der Temperaturabhängigkeit führen. Allerdings ist die Änderung der effektiven Masse im hier betrachteten Temperaturbereich zu gering ( $\approx 2\%$ ) um den deutlichen Unterschied zu erklären. Vielmehr zeigt sich hier, dass das empirische Varshni-Modell gerade für niedrige Temperaturen ungeeignet ist. In [Päs97] haben Pässler und Oelgart daher ein stärker analytisch

	Substrat	19,8 nm	15,2 nm	12,2 nm	9,9 nm	GaAs
$E_{g0}$ (eV)	1,5160	1,5280	1,5363	1,5473	1,5622	1,519
$\alpha$ (meV/K)	0,94	1	1	1	1	0,54
$\beta$ (K)	603	602	601	603	605	204
$E_{g0}^P$ (eV)	1,5157	1,5275	1,5358	1,5469	1,5618	

Tabelle 4.1: Varshni-Parameter für die vier dicken Quantenfilme und das Substrat

begründetes Modell vorgeschlagen:

$$E_g(T) = E_{g0} - \frac{\alpha \cdot \Theta}{2} \left[ \sqrt[p]{1 + \left(\frac{2T}{\Theta}\right)^p} - 1 \right], \quad (4.3)$$

wobei  $\alpha$  der Hochtemperaturgrenzwert der Entropie ist,  $\Theta$  die effektive Phononentemperatur und  $p$  ein materialspezifische Parameter.

Auch Gleichung 4.3 wurde an die Messwerte angepasst. Dabei war es aber ausreichend nur den Parameter  $E_{g0}$  zu variieren, für die anderen drei Parameter konnten die Literaturwerte aus [Päs99] übernommen werden. Die aus der Anpassung bestimmten Werte sind in Tabelle 4.1 als  $E_{g0}^P$  in der letzten Zeile aufgeführt.

Abbildung 4.14 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Lumineszenz des 19,8 nm Films (Symbole) zusammen mit berechneten Kurven, wobei die gestrichelte Linie dem Varshni-Modell mit den Werten aus [Vur01] entspricht und die durchgezogene Linie dem Pässler-Modell mit den Werten aus [Päs99]. In beiden Fällen wurde lediglich  $E_{g0}$  verschoben.

Deutlich erkennt man, dass das Varshni-Modell die Bandlücke bei kleinen Temperaturen ( $\leq 65$  K) deutlich überschätzt und bei größeren Temperaturen geringfügig unterschätzt. Im Gegensatz dazu wird die Temperaturabhängigkeit durch Gleichung 4.3 hervorragend beschrieben. Lediglich bei 5 K und 10 K erkennt man eine geringe Abweichung. Dies liegt daran, dass gerade bei tiefen Temperaturen die Probe durchaus wärmer sein kann als der Kühlfinger des Kryostaten.

Kühlfinger	5 K	10 K	25 K	50 K	100 K	150 K
Probe	12,2 K	14,8 K	24,8 K	49,3 K	99,7 K	149,9 K

Tabelle 4.2: Aus der Anpassung bestimmte Proben-Temperatur für verschiedene Kühlfinger-Temperaturen

Tabelle 4.2 zeigt die aus der Anpassung bestimmte Proben-Temperatur für die verschiedenen Kühlfingertemperaturen. Ab 25 K stimmen beide Temperaturen überein, bei 5 K und 10 K ist die Probe deutlich wärmer als der Kühlfinger.

Da bei der Mikro-PL die Probe direkt hinter dem Fenster des Kryostaten montiert ist, wird die Probe durch Wärmestrahlung aus der Umgebung erwärmt. Eine Erwärmung durch die absorbierte Laserleistung kann hier ausgeschlossen werden, da bei

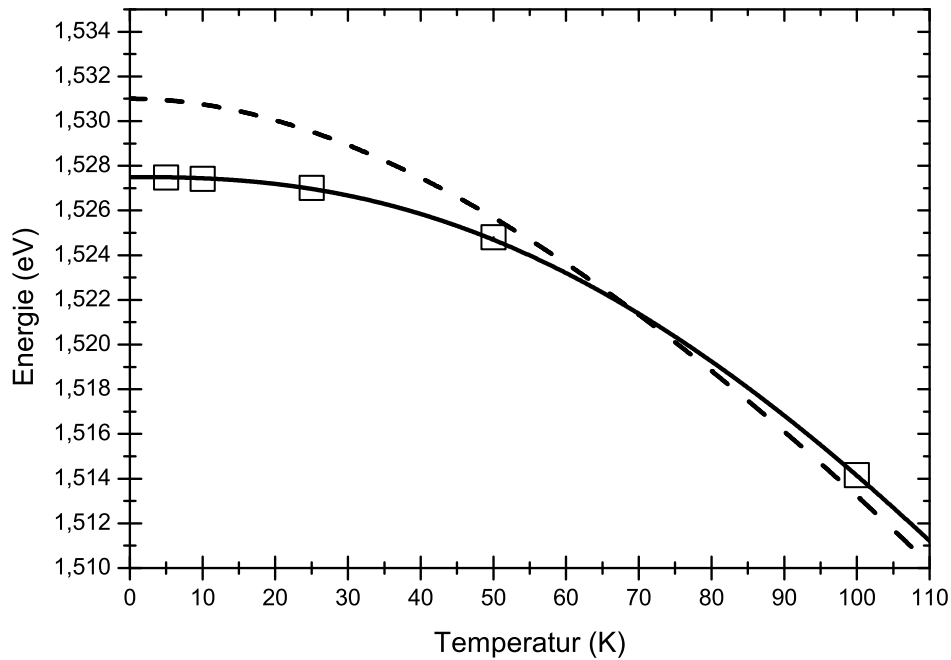


Abbildung 4.14: Vergleich der gemessenen Temperaturabhängigkeit der Lumineszenz des 19,8 nm Films mit verschiedenen Modellen. Die Symbole sind die Messwerte, die durchgezogene Linie entspricht dem Pässler-Modell, die gestrichelte dem Varshni-Modell mit den Parametern, die in der Literatur zu finden sind.

den dichteabhängigen Messungen keine Verschiebung der Exziton-Linie beobachtet wurde, obwohl die Dichte um etwa drei Größenordnungen variiert wurde.

Zwar kann die Temperaturabhängigkeit auch im Varshni-Modell beschrieben werden (siehe Abbildung 4.13), dazu müssen aber alle drei Parameter variiert werden, und die beiden Parameter  $\alpha$  und  $\beta$  weichen erheblich von den Literaturwerten ab. Im Gegensatz dazu muss beim Pässler-Modell nur der Energiewert für  $T = 0$  K angepasst werden. Trotzdem wird die Temperaturabhängigkeit durch das Pässler-Modell besser beschrieben, da die Wurzel aus dem gemittelten, quadratischen Fehler (engl.: *root mean square*, *RMS*) deutlich kleiner ist als beim Varshni-Modell (um den Faktor 4 (beim Substrat) bis 9 (beim 19,8 nm Film)).

## 4.3 Ortsaufgelöste Photolumineszenz an inhomogenen Quantenfilmen

Hier folgen nun die ortsaufgelösten Messungen an inhomogen verbreiterten oder kurz inhomogenen Filmen. Zunächst wird der Einfluss des Auflösungsvermögens, dann die Intensitätsabhängigkeit und zuletzt die Temperaturabhängigkeit betrachtet. Anschließend wird die Autokorrelationsspektroskopie diskutiert. Auch diese Messungen wurden, soweit nicht anders angegeben, bei einer Kühlfinger-Temperatur von  $5\text{ K}$  durchgeführt.

### 4.3.1 Einfluss des Auflösungsvermögens

Der Einfluss des Auflösungsvermögens bei dicken Quantenfilmen wird im Abschnitt 4.2.1 vorgestellt. In diesem Abschnitt wird nun der Einfluss des Auflösungsvermögens auf die Spektren dünner Quantenfilme (z.B.  $5,1\text{ nm}$  und  $4,5\text{ nm}$  Dicke) untersucht.

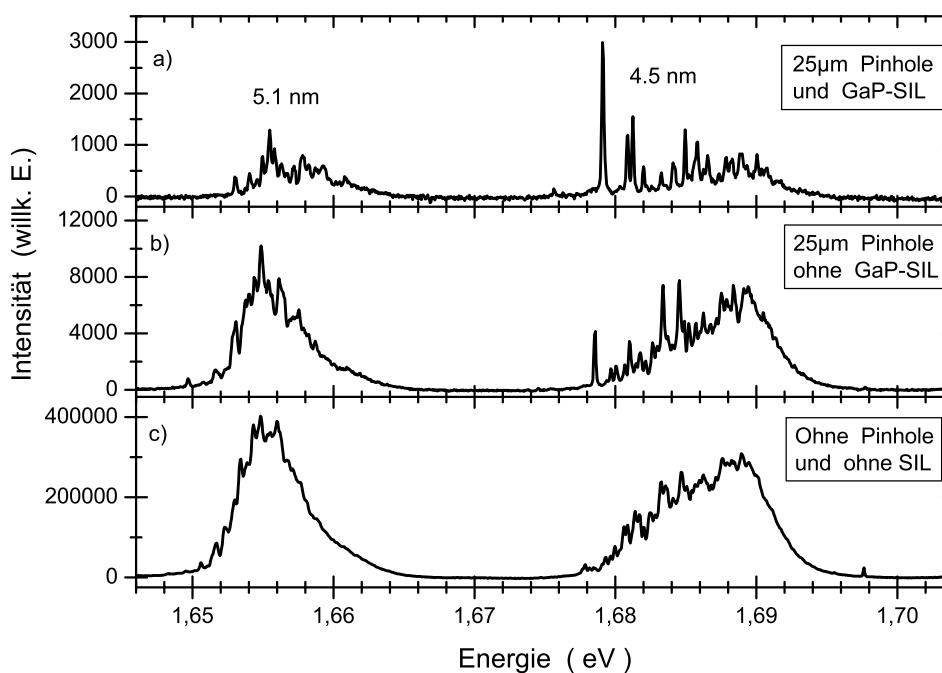


Abbildung 4.15: Einfluss des Auflösungsvermögens bei inhomogenen Quantenfilmen

Der drastische Einfluss der unterschiedlichen Ortsauflösung auf die Spektren wird in Abbildung 4.15 gezeigt. Mit geringerer Auflösung wird die Fläche, deren Lumineszenz detektiert wird, größer, und man kann viele lokalisierte Zustände erkennen.

Da der Unterschied in der Zentralwellenlänge der einzelnen Zustände kleiner ist als ihre Halbwertsbreite, können sie nicht getrennt werden. Im Gegensatz dazu wird die Fläche mit steigender Auflösung kleiner, und man kann weniger lokalisierte Zustände beobachten. Diese Zustände sind auf der Energieskala deutlich getrennt. Die gemessene Halbwertsbreite der einzelnen Linie beträgt etwa  $170 \mu\text{eV}$  und ist durch die experimentelle Auflösung begrenzt ( $170 \mu\text{eV}$  entsprechen drei Bildpunkten auf den Detektor). Die Linienbreite ist sogar noch geringer als die der homogenen Filme. Für den  $19,8 \text{ nm}$  Film beispielsweise wurde eine Linienbreite von  $210 \mu\text{eV}$  gemessen. Einhergehend mit der geringen Linienbreite ist eine lange Lebensdauer der lokalisierten Zustände.

Zur Untersuchung einzelner lokalisierter Zustände an inhomogen verbreiterten Quantenfilmen ist deshalb eine möglichst hohe Ortsauflösung nötig.

### 4.3.2 Intensitätsabhängigkeit

Im Vergleich zu den homogenen Quantenfilmen ist die Linienverbreiterung inhomogener Quantenfilme bei hohen Anregungsdichten wesentlich größer. Abbildung 4.16 zeigt die Spektren der beiden Quantenfilme bei verschiedener Anregungsdichte. Die Anregungsdichte wurde von  $3,0 \text{ ND}$  bis  $0,08 \text{ ND}$  um etwa einen Faktor 1000 variiert.

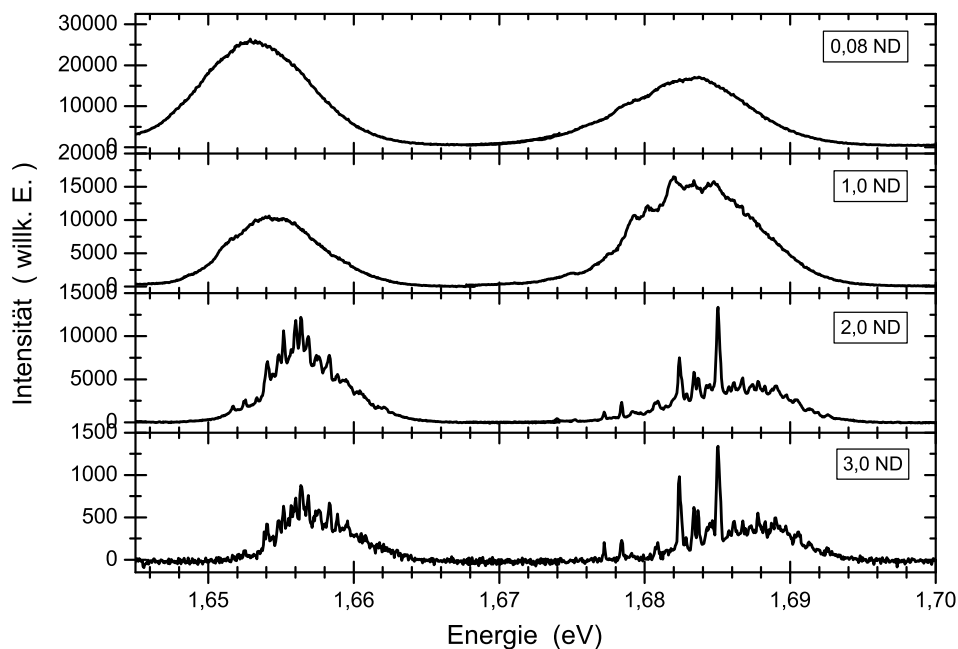


Abbildung 4.16: Intensitätsabhängigkeit bei inhomogenen Quantenfilmen

Die mit der höchsten Anregungsdichte aufgenommenen Spektren sind deutlich als Gauß-Linien erkennbar, während einzelne lokalisierte Zustände bei abnehmender Anregungsdichte die Lumineszenz-Spektren dominieren. Die lokalisierten Zustände sind bei hoher Anregungsdichte nicht mehr zu erkennen.

Man kann in Abbildung 4.16 eine Rotverschiebung des Schwerpunktes des Spektrums bei höherer Anregungsdichte erkennen. Diese Rotverschiebung wird durch die Biexzitonen verursacht. Die Biexziton-Lumineszenz ist niederenergetischer als die der Exzitonen und ihre Intensität steigt mit zunehmender Anregungsdichte superlinear an im Gegensatz zum linearen Anstieg der Exziton-Lumineszenz.

Um die lokalisierten Zustände des inhomogenen verbreiterten  $4,5 \text{ nm}$  Quantenfilms genauer zu untersuchen, wurden Spektren an verschiedenen Proben-Positionen aufgenommen. Abbildung 4.17 zeigt eine Serie solcher Spektren. Dabei wurde das Mikroskop-Objektiv von Spektrum zu Spektrum jeweils um etwa  $180 \text{ nm}$  verschoben.

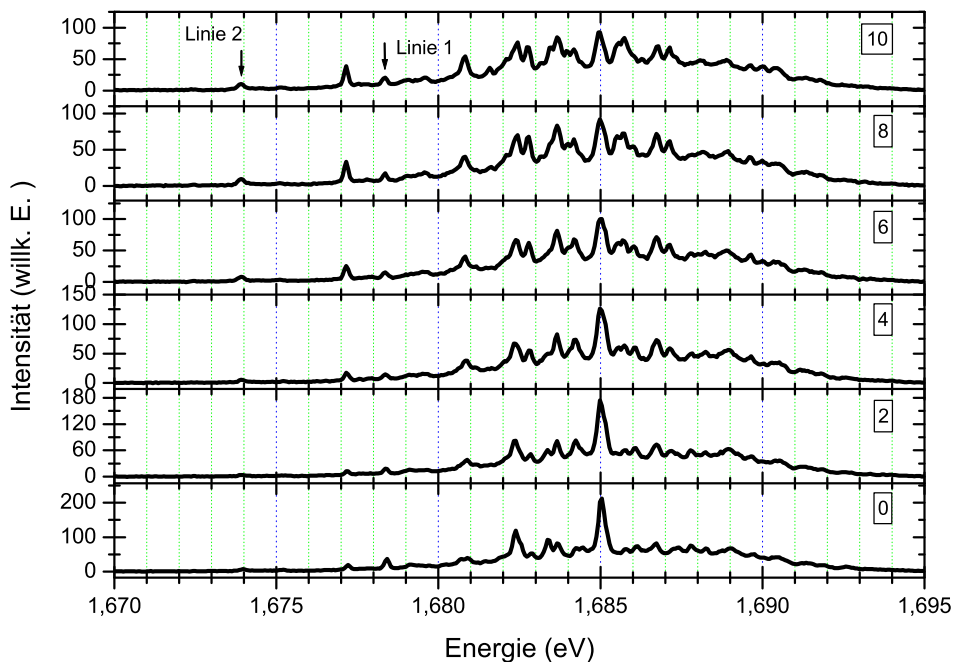


Abbildung 4.17: Spektren an verschiedenen Proben-Positionen

Deutlich ist die unterschiedliche Feinstruktur der lokalisierten Zustände für die verschiedenen Proben-Positionen zu erkennen. Aufgrund der geringen Verschiebung sind die gleichen lokalisierten Zustände in allen Spektren erkennbar, wenn auch mit unterschiedlichen Intensitätsverhältnissen.

Um zu untersuchen, ob einzelne Linien lokalisierten Biexzitonen zugeordnet werden können, wurden Linien-Paare ausgewählt, deren energetischer Abstand der mittels CES bestimmten Biexzitonbindungsenergie [Fin03] entspricht. Ein solches Linien-Paar ist in Abbildung 4.17 durch Pfeile hervorgehoben.

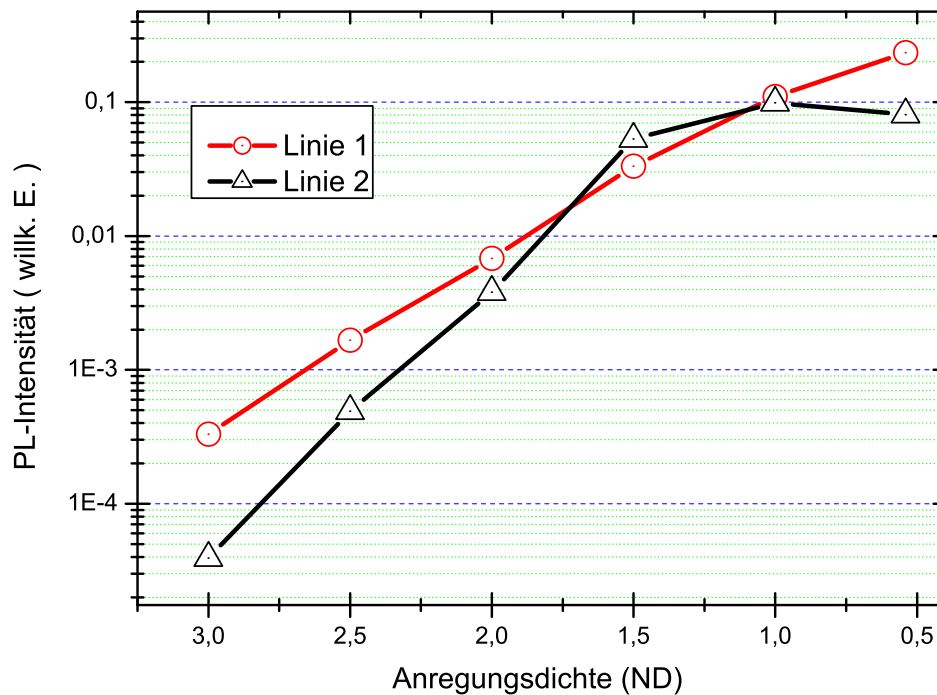


Abbildung 4.18: Intensitätsabhängigkeit einzelner lokalisierter Zustände für den 4,5 nm Quantenfilm.

Abbildung 4.18 stellt das Verhältnis der PL-Intensität dieser beiden Linien als Funktion der Anregungsintensität dar. Die Intensität der Linie 1 steigt nahezu linear mit der Anregungsdichte an. Für Linie 2 dagegen nimmt die PL-Intensität zunächst quadratisch zu und sättigt bei höheren Anregungsdichten (1,5 ND) ab. Dieses Verhalten ist typisch für Biexzitonen ([Bru94a]). Die Energiedifferenz zwischen den beiden Linien beträgt etwa  $4,45\text{meV}$ . Die für diesen Quantenfilm mit CES gemessene Bindungsenergie beträgt etwa  $4,5\text{meV}$  [Fin03]. Daher kann man die Linie 2 dem Zerfall eines lokalisierten Biexzitons zuordnen.



### 4.3.3 Temperaturabhängigkeit

Zur Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der dünner Quantenfilme wurden Spektren mit  $25\ \mu\text{m}$  Pinhole und  $\text{GaP-SiL}$  bei einer Anregungsdichte von  $3,0\ \text{ND}$  gemessen. Abbildung 4.19 zeigt die zwei dünnen Quantenfilme mit  $5,1\ \text{nm}$  und  $4,5\ \text{nm}$  Dicke bei verschiedenen Temperaturen.

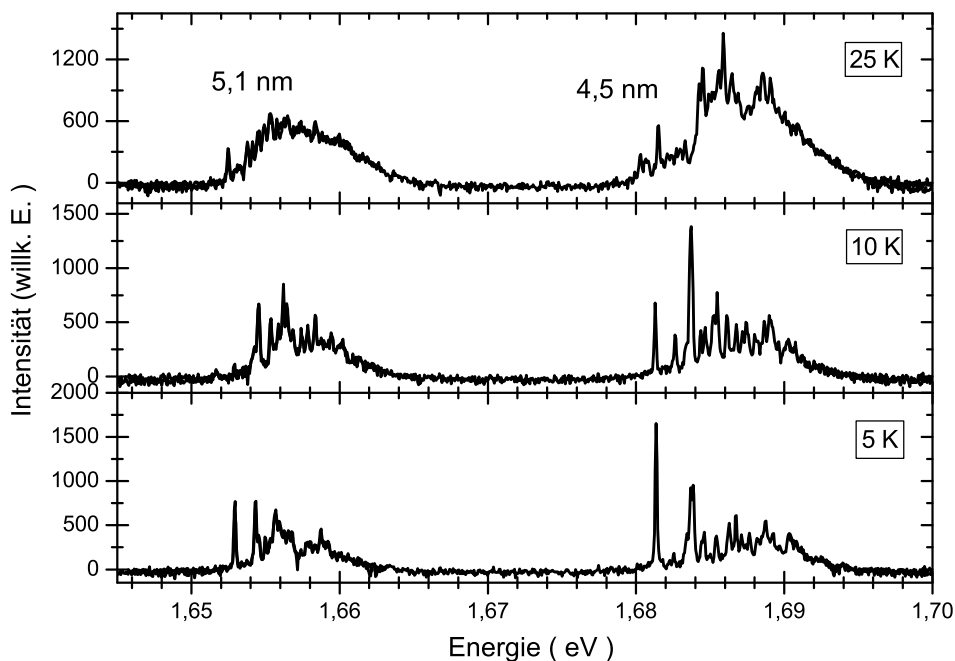


Abbildung 4.19: Temperaturabhängigkeit der Lumineszenz für inhomogen verbreiterte Quantenfilme

Deutlich sind bei  $5\ \text{K}$  die verschiedenen lokalisierten Energiezustände zu erkennen. Bei tiefen Temperaturen relaxieren die Ladungsträger in das lokale Energieminimum und rekombinieren. Dadurch sind viele lokalisierte Zustände und ein kleiner Untergrund in den Spektren bei niedriger Temperatur zu erkennen. Dagegen kann man wenige einzelne lokalisierte Zustände und einen intensiven inhomogenen Untergrund bei höheren Temperaturen beobachten. Bei  $25\ \text{K}$  ist der Untergrund schon so stark, dass es nicht sinnvoll ist, bei höherer Temperatur zu messen.

Wenn man in inhomogen verbreiteten Systemen lokalisierte Zustände sehen will, muss man bei hinreichend kleiner Temperatur messen. Im Gegensatz zu den dicken Quantenfilmen kann man die thermische Rotverschiebung bei den dünnen Quantenfilmen nicht deutlich erkennen. Da die dünnen Filme viele unterschiedliche Energiezustände besitzen, kann man beim Vergleich der Spektren nicht unterscheiden,

ob eine Linie bei einer höheren Proben-Temperatur verschoben ist, oder ob es ein anderer niederenergetischer Zustand ist. Die Ladungsträger relaxieren in ein lokales Potentialminimum. Es kann aber durchaus sein, dass es in unmittelbarer Nähe noch ein tieferes Minimum existiert, das die Ladungsträger aber nicht erreichen können, da es durch ein lokales Maximum getrennt ist. Durch thermische Aktivierung kann dieses Maximum überwunden werden, wodurch die Ladungsträger in das tiefere Minimum relaxieren können. Dies führt auch zu einer Rotverschiebung.

Außerdem zeigte sich eine deutliche Rotverschiebung bei den dicken Filmen erst oberhalb von 25 K. In diesen Temperaturbereich sind bei den dünnen Filmen aber keine lokalisierten Zustände mehr erkennbar. Zusätzlich kann die thermische Ausdehnung des Kühlfingers und des Probenhalters dazu führen, dass bei verschiedenen Temperaturen auch unterschiedliche Probenstellen gemessen werden.

### 4.3.4 Autokorrelationspektroskopie

Wie im Abschnitt 2.2.1 dargelegt ist, soll die Autokorrelationsanalyse es ermöglichen, die quantenmechanische Niveauabstoßung in orts aufgelösten Photolumineszenzspektren nachzuweisen. Allerdings sind auch andere Interpretationen möglich.

Intonti und Mitarbeiter [Int01, Int02] beobachten ein Maximum bei einer Energiedifferenz von  $\Delta E = 3 \text{ meV}$  in der gemittelten Autokorrelationsfunktionen von Nano-Photolumineszenz-Spektren eines einzelnen 3 nm dünnen GaAs-Quantenfilms und interpretieren dies als Niveauabstoßung. Von Freymann und Mitarbeiter [Fre02] sehen bei Messungen an Quantenfilmen ebenfalls eine Signatur bei 3 meV, interpretieren diese allerdings als eine Aufspaltung durch Monolagen-Inseln.

Auch bei Messungen an Quantendrähten wurde eine Signatur in der Autokorrelation gefunden. Ebenso wie bei den Quantenfilmen gibt es hier zwei Interpretationen dieser Signatur. Crottini und Mitarbeiter [Cro02] interpretieren die Signatur bei  $\Delta E = 2 \text{ meV}$  als Niveauabstoßung. Feltrin und Mitarbeiter [Fel03] hingegen führen diese Signatur auf die Emission angeregter Zustände der Exzitonen zurück, da durch die Unordnung die Phonon-Streurate für tiefliegende Exziton-Zustände reduziert ist.

Die Autokorrelationsanalyse wird in fünf Schritten durchgeführt [Fre00]:

1. Die individuellen Spektren werden auf die gleiche Fläche normiert, vor dem Normieren können die Spektren mit Filterfunktionen multipliziert werden, wodurch einzelne Energiebereiche unterschiedlich stark gewichtet werden,
2. Subtraktion des gemittelten Spektrums von jedem einzelnen Spektrum,
3. die individuellen Autokorrelationspektren werden berechnet,
4. über einen kompletten Datensatz wird gemittelt und
5. das Maximum der gemittelten Autokorrelation wird auf 1 normiert.

Abbildung 4.20 zeigt die so berechnete Autokorrelation des 4,5 nm Quantenfilms. Dabei wurde über die Autokorrelationen von 256 Spektren gemittelt.

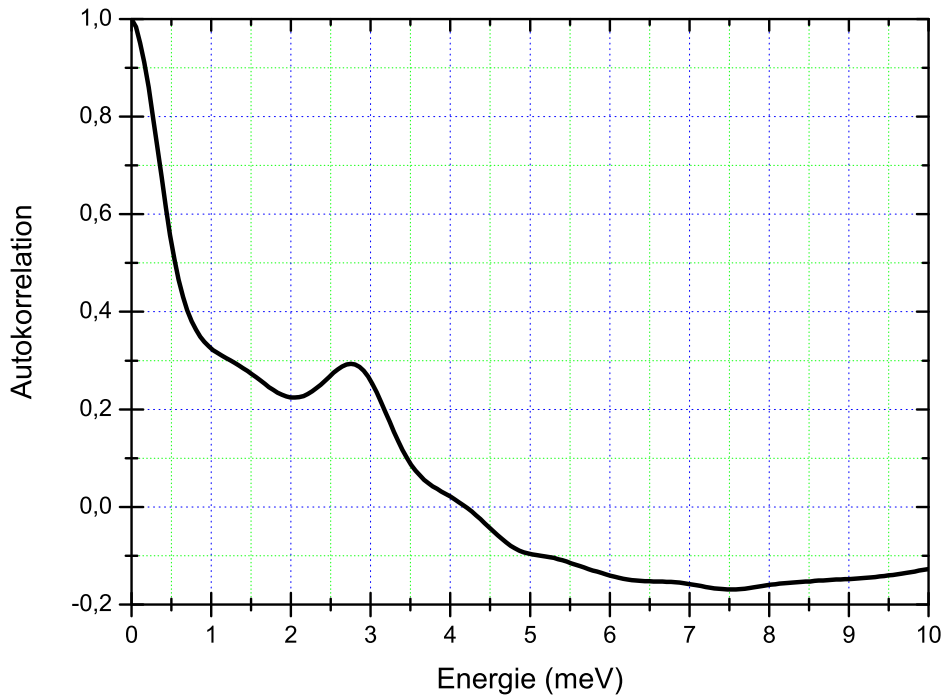


Abbildung 4.20: Gemittelte Autokorrelation des 4,5 nm Quantenfilms

Man erkennt eine deutliche Signatur bei  $\Delta E = 2,75 \text{ meV}$ . Das bedeutet, dass in der Mehrzahl der 256 Spektren zwei Linien mit einem Energieabstand von  $2,75 \text{ meV}$  vorhanden sind.

Um die Struktur in der Autokorrelation genauer zu untersuchen, werden die Spektren vor der Normierung mit Filter-Funktionen der Form  $f(E) \propto \exp(\pm \frac{E}{E_0})$  multipliziert [Fre02], wobei durch die Wahl des Filter-Parameters  $E_0$  die Stärke der Beeinflussung variiert werden kann und durch das Vorzeichen im Argument die Charakteristik des Filters bestimmt wird. Für das positive Vorzeichen erhält man ein Hochpass-Verhalten, bei dem die hochenergetischen Anteile des Spektrums stärker gewichtet werden, für das negative Vorzeichen ein Tiefpass-Verhalten, bei dem die niederenergetischen Anteile stärker gewichtet werden. Der Einfluss des Filters wird um so größer, je kleiner der Wert des Filterparameters  $E_0$  wird.

Abbildung 4.21 zeigt die Autokorrelation gefilterter Spektren des 4,5 nm Quantenfilm bei einer Anregungsdichte von etwa  $9 \text{ W/cm}^2$ . Man erkennt deutlich, dass die Signatur bei  $2,75 \text{ meV}$  bei der Tiefpass-Filterung erhalten bleibt. Erst bei  $E_0 = 4 \text{ meV}$

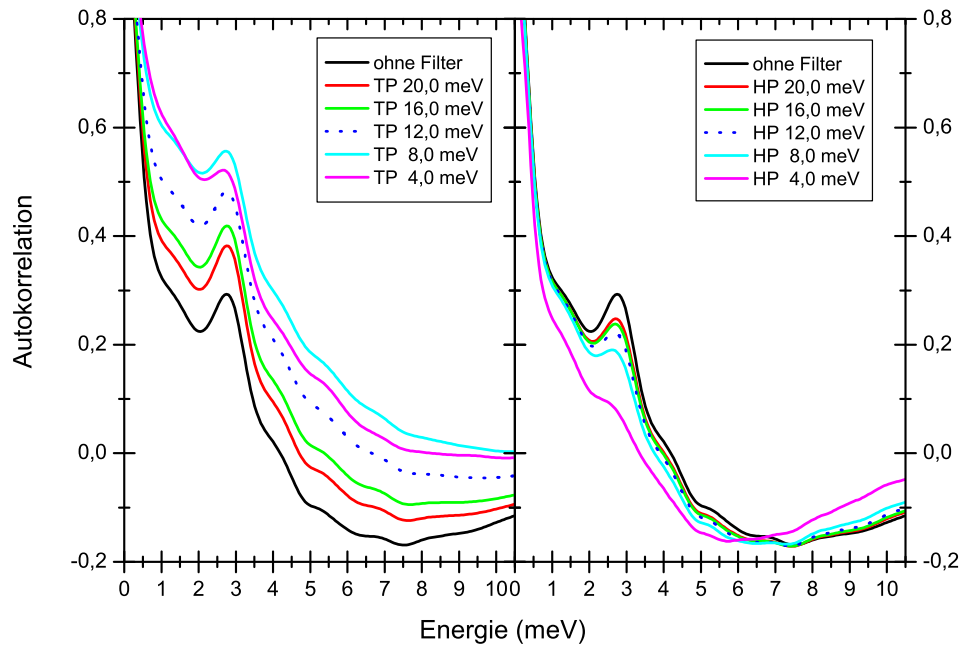


Abbildung 4.21: Gefilterte Autokorrelation des 4,5 nm Quantenfilms

sieht man eine deutliche Abnahme. Im Gegensatz dazu sieht man bei der Hochpass-Filterung eine Abnahme des Signals bei zunehmender Filterwirkung. Daraus folgt, dass die niederenergetische Linie der beiden die schwächere ist.

Ein solches Verhalten bezüglich der Filterung führen von Freymann und Mitarbeiter [Fre02] als Begründung für die Interpretation der Signatur als eine Aufspaltung durch Monolagen-Inseln an. Allerdings ist nach [Fel03] auch eine andere Interpretation möglich: die beiden Linien, die die Signatur bei  $\Delta E = 2,75 \text{ meV}$  verursachen, stammen vom zwei Exzitonen, die im gleichen Potential-Minimum lokalisiert sind. Dabei befindet sich ein Exziton im Grundzustand und das zweite im ersten angeregten Zustand. Dabei wird die Relaxation aus dem angeregten Zustand in den Grundzustand erschwert, da bei ungeordneten Systemen die Phononenstreurate für die niedrig liegenden Zustände reduziert ist. Dadurch können nicht alle Exzitonen innerhalb ihrer Lebensdauer in den Grundzustand relaxieren, sodass auch die Lumineszenz aus einem angeregten Zustand beobachtet werden kann. Die Abnahme der Signatur bei Hochpass-Filterung ist dann so zu interpretieren, dass die Lumineszenz aus dem Grundzustand schwächer ist, als die aus dem angeregten Zustand, da die Relaxation in den niederenergetischen Zustand langsamer ist als die Rekombination.

Bei der Autokorrelation wurde über 256 Spektren und eine Fläche von etwa  $52 \mu\text{m}^2$  gemittelt. Daher ist es unwahrscheinlich, dass die Signatur von einer Aufspaltung

durch Monolagen-Inseln herrührt, da diese Inseln sonst über die gesamte Fläche verteilt nahezu die gleiche Größe haben müssten, um in allen Spektren eine vergleichbare Aufspaltung hervorzurufen. Im Gegensatz dazu setzt die Interpretation nach [Fel03] keine solche großflächige Ordnung voraus. Zu jedem lokalisierten Zustand existieren auch angeregte Zustände, die an der gleichen Position lokalisiert sein können, wenn das Potentialminimum nur hinreichend tief ist. Es ist daher wahrscheinlicher, dass die Signatur in der Autokorrelation durch diesen Effekt verursacht wird, wobei aber auch eine Niveau-Abstoßung oder eine Aufspaltung durch Monolageninsel nicht vollständig ausgeschlossen werden können, da die Autokorrelationspektroskopie keine Information über die Ursache der Signatur liefert.

Die Zunahme des Untergrundes bei der Tiefpass-Filterung kann man dadurch erklären, dass dieser Untergrund von unkorrelierten lokalisierten Exzitonen herrührt. Diese lokalisierten Zustände findet man primär auf der niederenergetischen Seite des Spektrums.

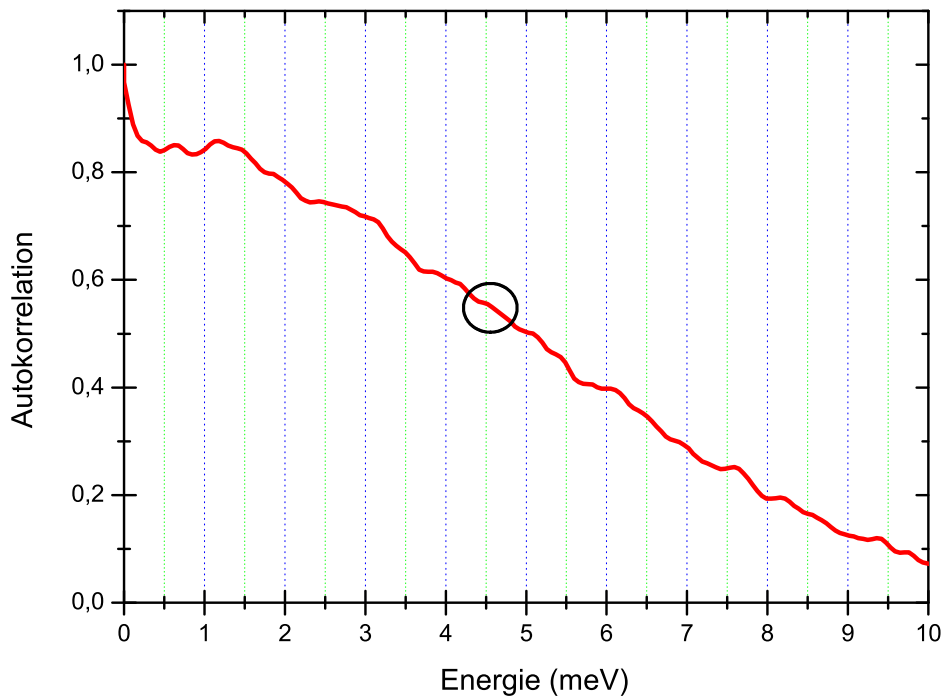


Abbildung 4.22: Autokorrelation eines einzelnen Spektrums des 4,5 nm Quantenfilms, der Kreis deutet den Bereich an, für den die Korrelation zwischen Exziton und Biexziton sichtbar sein sollte.

Es fällt auf, dass in dem Autokorrelationsspektrum keine Signatur bei der Biex-

ziton-Bindungsenergie von  $4,5 \text{ meV}$  erkennbar ist. Dies würde man aber erwarten, da bei der Rekombination eines Biexzitons immer ein Exziton zurück bleibt, das ebenfalls rekombiniert. Daher müssten zwei miteinander korrelierte Linien vorhanden sein, deren Energie sich um die Biexziton-Bindungsenergie unterscheiden. Das Fehlen dieser Signatur rührt daher, dass in den Lumineszenz-Spektren zwar mehrere lokalisierte Exzitonen erkennbar sind, aber Biexzitonen nur vereinzelt beobachtet werden können. Betrachtet man ein einzelnes Spektrum (siehe Abbildung 4.17), so erkennt man mehrere, miteinander unkorrelierte Exzitonen. Diese führen zu einem starken Untergrund in der Autokorrelation dieses Spektrums. Da nur zu einzelnen Exzitonen auch ein Biexziton beobachtet werden kann, wird das Signal der Autokorrelation zwischen beiden von dem Untergrund verdeckt. Daher ist selbst in der Autokorrelation eines einzelnen Spektrums (Abbildung 4.22) keine Signatur bei der Biexzitonbindungsenergie zu erkennen.

Durch die Mittelung über viele Spektren wird zwar der unkorrelierte Anteil abgeschwächt, der korrelierte Anteil bleibt aber nur dann erhalten, wenn er in der Mehrzahl der Spektren vorhanden ist. Bei niedrigen Anregungsdichten können lokalisierte Exzitonen beobachtet werden, allerdings ist die Wahrscheinlichkeit, ein lokalisiertes Biexziton zu beobachten, gering. Mit zunehmender Anregungsdichte steigt die Wahrscheinlichkeit für Biexzitonen an, gleichzeitig erhöht sich aber auch die Anzahl der beobachtbaren lokalisierten Exzitonen. Dadurch wird die Autokorrelation bei hohen Anregungsdichten von einem breiten Untergrund dominiert, der eine möglicherweise vorhandene Signatur bei der Biexziton-Bindungsenergie verdeckt.

## 4.4 Zeitaufgelöste Photolumineszenz

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der zeitaufgelösten Messungen der Lumineszenz dargestellt. Zur Messung wurde der in 3.1.2 beschriebene Aufbau verwendet. Der Anregungslaser wurde auf eine Zentralwellenlänge von  $770 \text{ nm}$  abgestimmt, was einer Photonenenergie von  $1,61 \text{ eV}$  entspricht.

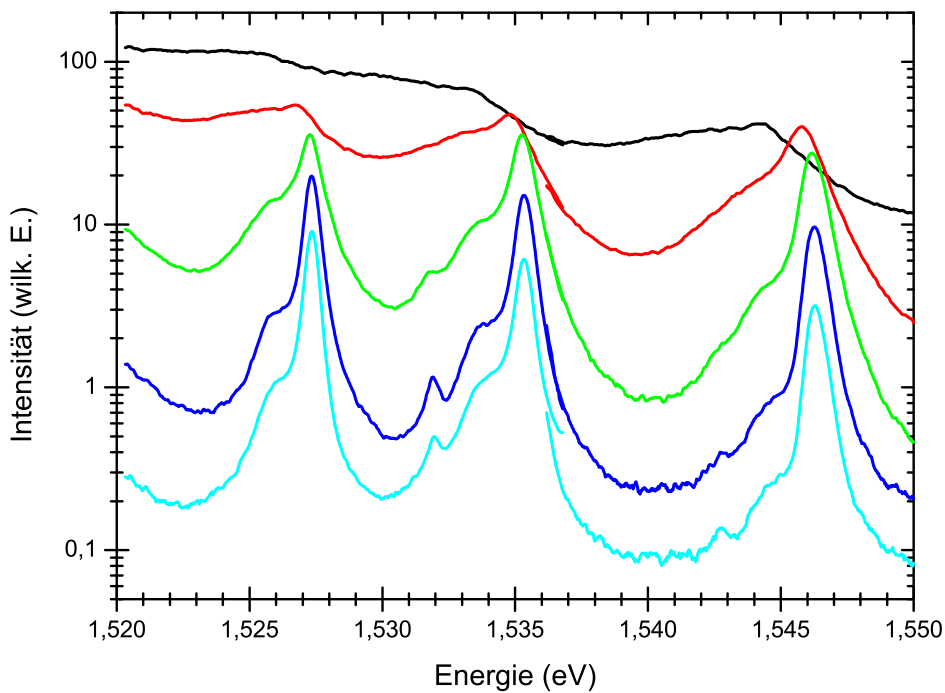


Abbildung 4.23: Zeitintegrierte Spektren der drei dicken Quantenfilme ( $19,8 \text{ nm}$ ,  $15,2 \text{ nm}$ ,  $12,2 \text{ nm}$ ) bei hochenergetischer Anregung

Abbildung 4.23 zeigt die zeitintegrierten Spektren der drei dicksten Quantenfilme bei gepulster Anregung für verschiedenen Ladungsträgerdichten. Die Dichten (in  $1/\text{cm}^2$ ) betragen für den  $19,8 \text{ nm}$  Quantenfilm von unten nach oben:  $8,5 \cdot 10^{10}$ ,  $2,7 \cdot 10^{11}$ ,  $8,5 \cdot 10^{11}$ ,  $2,7 \cdot 10^{12}$  und  $7,7 \cdot 10^{12}$ . Im  $15,2 \text{ nm}$  Film sind die Dichten um den Faktor 1,3 geringer, im  $12,2 \text{ nm}$  Film um den Faktor 1,7. Das Verhältnis der Ladungsträgerdichten in den vier dicken Quantenfilme bei gleicher Anregungsdichte ist in Tabelle 4.3 aufgelistet.

Deutlich erkennt man bei niedrigen Dichten die Lumineszenz am Schwerloch-Exziton des  $19,8 \text{ nm}$  Films bei etwa  $1,5273 \text{ eV}$ , des  $15,2 \text{ nm}$  Films bei etwa  $1,5353 \text{ eV}$  und des  $12,2 \text{ nm}$  Films bei etwa  $1,546 \text{ eV}$ . Die Lumineszenz der entsprechenden Biexzitonen

19,8 nm	15,2 nm	12,2 nm	9,9 nm
1	0,74	0,58	0,46
2,16	1,60	1,26	1

Tabelle 4.3: Verhältnis der Ladungsträgerdichten der vier dicken Quantenfilme bei gleicher Anregungsdichte

bei etwa 1,526 eV, 1,534 eV und 1,544 eV ist deutlich schwächer. Außerdem ist die Lumineszenz am Leichtloch-Exziton des 19,8 nm Films bei etwa 1,532 eV und des 15,2 nm Films bei etwa 1,5425 eV zu erkennen. Mit zunehmender Dichte steigt der Untergrund stark an und überdeckt bei der höchsten Dichte die Signale der Quantenfilme nahezu vollständig. Dieser Untergrund wird durch die Rekombination heißer Ladungsträger im Substrat verursacht. Der Effekt ist beim 19,8 nm Film aufgrund des geringeren Confinements stärker ausgeprägt als beim 15,2 nm und beim 12,2 nm Film.

Auffallend ist, dass das Signal am Biexziton deutlich schwächer ist als das Signal am Exziton. Im Gegensatz zu den orts aufgelösten Messungen steigt es auch nicht mit zunehmender Ladungsträgerdichte an (siehe Abbildung 4.6). Dies rührt daher, dass die Lumineszenz am Exziton nicht nur von der Rekombination von Exzitonen stammt, sondern auch die Rekombination korrelierter Elektron-Loch-Paare zum Signal beiträgt [Kir98]. Die scheinbare Zunahme des Biexziton-Signals bei den höchsten Dichten wird durch den Untergrund verursacht.

Außerdem erkennt man eine Rotverschiebung des Exziton-Signals mit zunehmender Dichte. Diese Rotverschiebung ist auf die Erwärmung der Probe durch die absorbierte Laser-Leistung zurückzuführen. Durch die in Kapitel 4.2.3 durchgeführte Untersuchung der Temperaturabhängigkeit kann der Lage der Maxima eine Temperatur zugeordnet werden.

Die so erhaltene Temperatur ist in Abbildung 4.24 als Funktion der absorbierten Laser-Leistung dargestellt. Die Symbole sind die aus den Messwerten erhaltenen Temperaturen, die Linien angepasste Geraden. Auffallend ist, dass der 19,8 nm Film bei geringer Leistung etwa 5 K kälter zu sein scheint, als die drei dünneren Filme, deren Temperaturen im Rahmen der Messgenauigkeit übereinstimmen. Mit steigender Leistung nähert sich die Temperatur des 19,8 nm Films der Temperatur der dünneren Filme an. Da die einzelnen Filme nur durch die Barrieren und eine dünne Zwischenschicht getrennt sind sollten sie eigentlich bei allen Leistungen die gleiche Temperatur haben. Die im Vergleich zur Mikro-PL höhere Temperatur der Probe selbst bei niedriger Dichte erklärt sich dadurch, dass die mittlere Leistung des Lasers bei den zeitaufgelösten Messungen etwa um einen Faktor 2000 größer war als bei der Mikro-PL. Außerdem wurde ein anderer Kryostat verwendet, bei dem Kühlung der Probe offenbar weniger effektiv war.

Dichte-Effekte wie zum Beispiel Bandkanten-Renormalisierung können hier für die drei dünneren Filme (15,2 nm, 12,2 nm, 9,9 nm) ausgeschlossen werden, da die



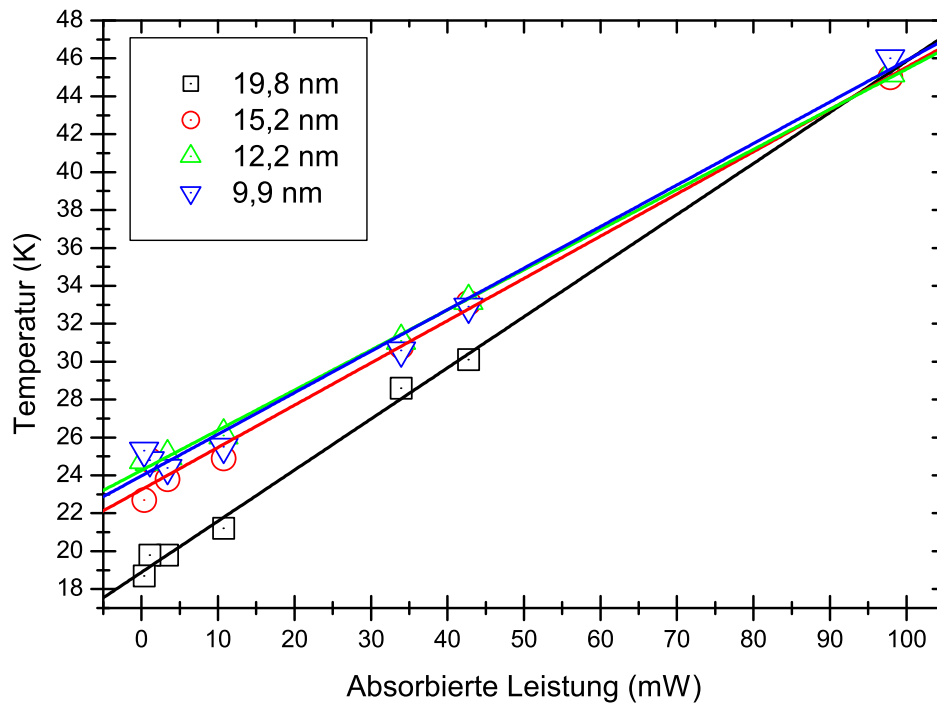


Abbildung 4.24: Temperatur der Quantenfilme aufgetragen über der absorbierten Laser-Leistung

Filme trotz unterschiedlicher Ladungsträgerdichten (siehe Tabelle 4.3) das gleiche Verhalten zeigen. Dichte-Effekte würde man am ehesten beim 19,8 nm Film erwarten, da hier die Dichten am höchsten sind. Tatsächlich zeigt dieser Film auch ein anderes Verhalten. Mit zunehmender Dichte wird aber der Unterschied zu den dünneren Filmen kleiner. Für einen Einfluss der Dichte würde man aber erwarten, dass der Unterschied mit zunehmender Dichte größer wird. Auch der *quantum-confined Stark* Effekt, hervorgerufen durch Oberflächenladungen scheidet hier als Ursache aus. Zwar würde diese Effekt mit steigender Ladungsträgerdichte durch die Abschirmung kleiner werden, allerdings führt er zu einer Rotverschiebung. Die tiefere Temperatur des 19,8 nm-Films bedeutet aber eine Blauverschiebung der Linie. Die Ursache für diese Verschiebung ist derzeit noch unklar.

Zur Bestimmung der Dynamik wurden die Transienten der Exziton- und der Biexziton-Linien des 19,8 nm und des 15,2 nm Films untersucht. Mit dem in Kapitel 3.1.2 beschriebenen Modell wurden die Anstiegs- und Abfallzeiten der Lumineszenz

bestimmt. Dazu wurden Kurven der Form:

$$I(t) = I_0 + A \left[ \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_{fall}}\right) - \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_{rise}}\right) \right] \quad (4.4)$$

an die Transienten angepasst. Dabei ist  $\tau_{rise}$  die Anstiegszeit (Relaxationszeit) und  $\tau_{fall}$  die Abfallzeit (Rekombinationszeit) der Lumineszenz [MP93]. Die so erhaltenen Zeiten sind in Abbildung 4.25 für den 19,8 nm-Film und in Abbildung 4.26 für den 15,2 nm-Film dargestellt.

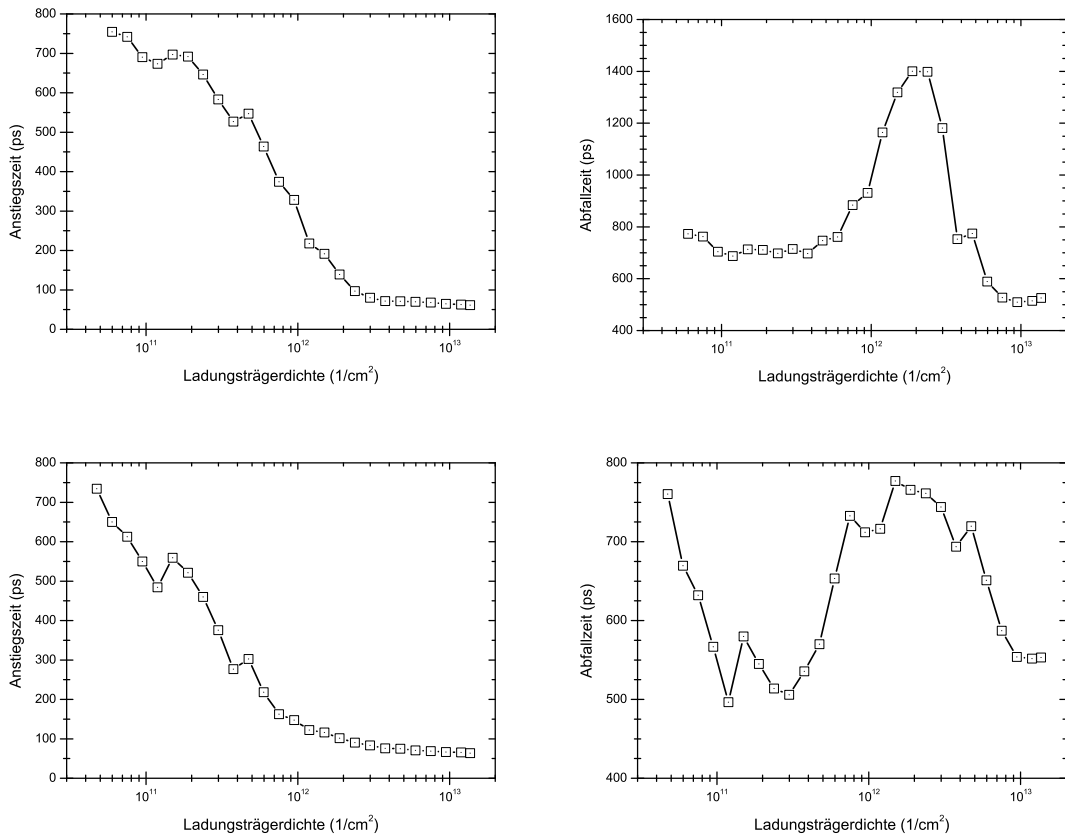


Abbildung 4.25: Anstiegs- (links) und Abfallzeiten (rechts) für die Exziton-Linie (oben) und die Biexziton-Linie (unten) des 19,8 nm Quantenfilms bei hochenergetischer Anregung

Allerdings ist die Anpassung sowohl für niedrige als auch für hohe Dichten deutlich schlechter als für mittlere Dichten. Bei niedrigen Dichten sind die Anstiegs- und Abfallzeiten nahezu gleich groß. Im Modell muss aber die Anstiegszeit immer kleiner sein als die Abfallzeit damit sich überhaupt eine Besetzung des Niveaus  $n_2$  ausbildet. Außerdem beeinflussen bei niedrigen Dichten nichtstrahlende Störstellen

(engl.: *nonradiative traps*) die Dynamik deutlich. Mit zunehmender Dichte sättigen die Störstellen, sodass ihr Einfluss kleiner wird.

Bei hohen Dichten trägt neben den Quantenfilmen auch die Rekombination heißer Ladungsträger des Substrates zum Signal bei. Dadurch wird die Dynamik durch die Überlagerung beider Prozesse bestimmt. Dies wird im Modell aber nicht berücksichtigt. Das Modell kann zwar um weitere Relaxations- und Rekombinations-Kanäle erweitert werden, dadurch steigt aber auch die Anzahl der Anpassparameter. Da jedoch bereits bei dem einfachen Modell der Algorithmus zur Anpassung zu instabilem Verhalten neigt, ist eine Erweiterung nicht praktikabel.

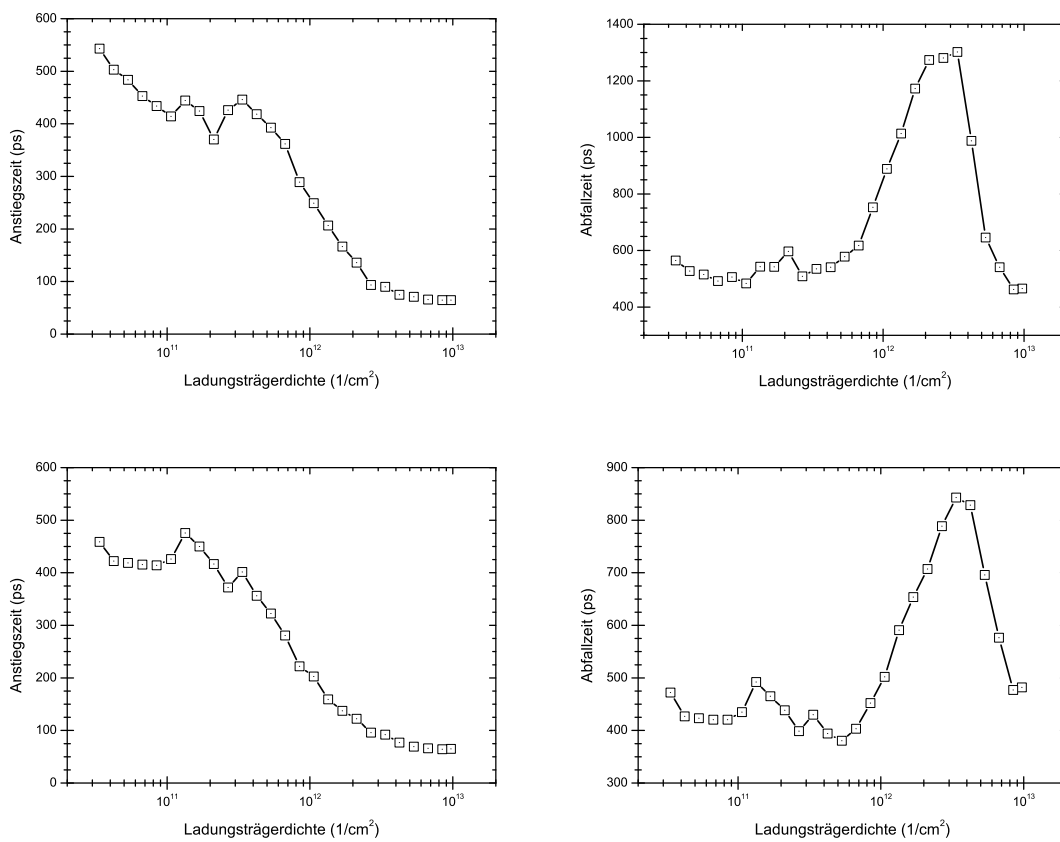


Abbildung 4.26: Anstiegs- (links) und Abfallzeiten (rechts) für die Exziton-Linie (oben) und die Biexziton-Linie (unten) des 15,2 nm Quantenfilms bei hochenergetischer Anregung

Bei allen vier Linien erkennt man eine deutliche Abnahme der Anstiegszeit mit steigender Dichte. Im Gegensatz dazu zeigen die Abfallzeiten ein deutlich anderes Verhalten. Sie variieren zunächst nur wenig mit der Dichte, steigen dann aber auf nahezu den doppelten Wert an und fallen mit weiter steigender Dichte wiederum

ab. Lediglich die Biexziton-Linie des  $19,8 \text{ nm}$  Films weicht von diesem Schema ab. Hier ist zunächst eine deutliche Abnahme der Abfallzeit zu erkennen. Auch der Anstieg bei höheren Dichten ist weniger stark ausgeprägt. Das gleiche Verhalten der Exziton-Lumineszenz wurde auch beim  $12,2 \text{ nm}$ - und  $9,9 \text{ nm}$ -Film beobachtet (siehe Abbildung 4.27). Allerdings werden sowohl die Anstiegs- als auch die Abfallzeiten mit abnehmender Filmdicke kürzer. Dies ist auf den steigenden Einfluss der Unordnung zurück zu führen.

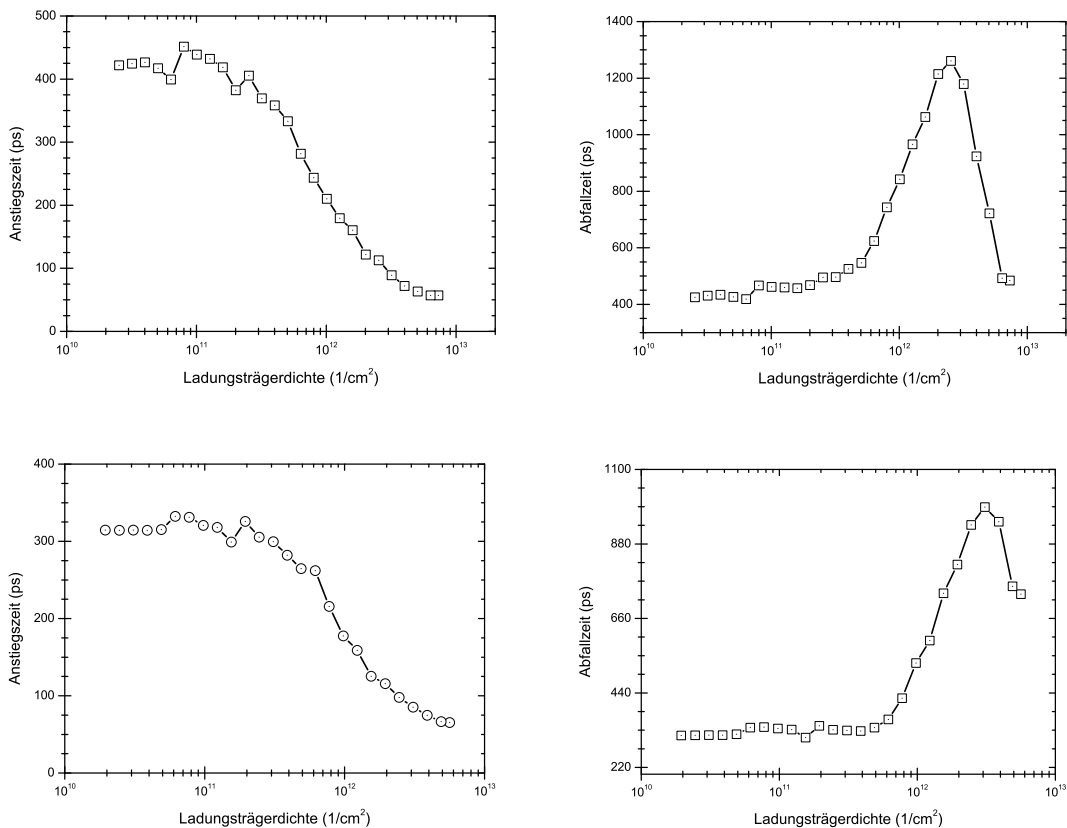


Abbildung 4.27: Anstiegs- (links) und Abfallzeiten (rechts) für die Exziton-Linie des  $12,2 \text{ nm}$  (oben) und des  $9,9 \text{ nm}$  (unten) Quantenfilms bei hochenergetischer Anregung

Da mit zunehmender Dichte die Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung an Bedeutung gewinnt, ist eine schnellere Relaxation zu erwarten [Ulb73], was zu kürzeren Anstiegszeiten führt. Dies wurde auch bereits von Damen und Mitarbeitern [Dam90] und von Eccleston und Mitarbeitern [Ecc91] beobachtet. In beiden Fällen wurde allerdings bei niedrigeren Dichten (Damen bis  $5 \cdot 10^{10} \text{ 1/cm}^2$ , Eccleston bis  $1,5 \cdot 10^{10} \text{ 1/cm}^2$ ) gemessen als in dieser Arbeit.

Im Bereich der hier vorliegenden hohen Dichten reduziert sich die Energie-Verlustrate durch polar-optische Phononen um mehr als zwei Größenordnungen [Leo88], sodass man eine deutlich langsamere Relaxation bei hohen Dichten erwarten würde. Allerdings erkennt man in Abbildung 4.23 den mit zunehmender Dichte stärker werdenden Anteil der Rekombination heißer Ladungsträger an der Lumineszenz (ab etwa  $4,7 \cdot 10^{11} \text{ 1/cm}^2$  für den  $19,8 \text{ nm}$  Film). Die Transienten bei hohen Dichten sind also eine Überlagerung der Transienten der Exziton-Lumineszenz des jeweiligen Films mit der Lumineszenz heißer Ladungsträger der dickeren Filme oder des Substrates. Besteht die Transiente aber aus einer Summe zweier in etwa gleich starker Signale mit unterschiedlicher Dynamik so wird die Anstiegszeit von dem schnelleren der beiden Signale bestimmt und die Abfallszeit von dem langsameren. Somit kann eine verlangsamte Relaxation an der Exziton-Linie durch die schnelle Dynamik der heißen Ladungsträger überdeckt werden.

Auch thermische Effekte dürfen nicht vernachlässigt werden, da sich die Probe bei hohen Dichten durch die absorbierte Leistung deutlich erwärmt (siehe Abbildung 4.24). Dies führt zu einer kürzeren Anstiegszeit [Dam90] und zu einer längeren Abfallzeit, wobei hier der Einfluss der Temperatur um so größer ist, je dicker der Quantenfilm ist [Fel87, Hil89, MP93].

Der Anstieg der Abfallzeit mit steigender Dichte kann also sowohl durch eine reduzierte Energieverlustrate als auch durch eine höhere Proben temperatur bedingt sein. Vermutlich tragen beide zur beobachteten Dynamik bei. Die Größe der einzelnen Beiträge kann aber anhand der vorliegenden Messungen nicht bestimmt werden. Zwar kann die Energieverlustrate analog zu [Leo88] aus dem Hochenergieausläufer der Lumineszenz bestimmt werden, zur Bestimmung der Temperaturabhängigkeit sind allerdings weitere Messungen nötig.

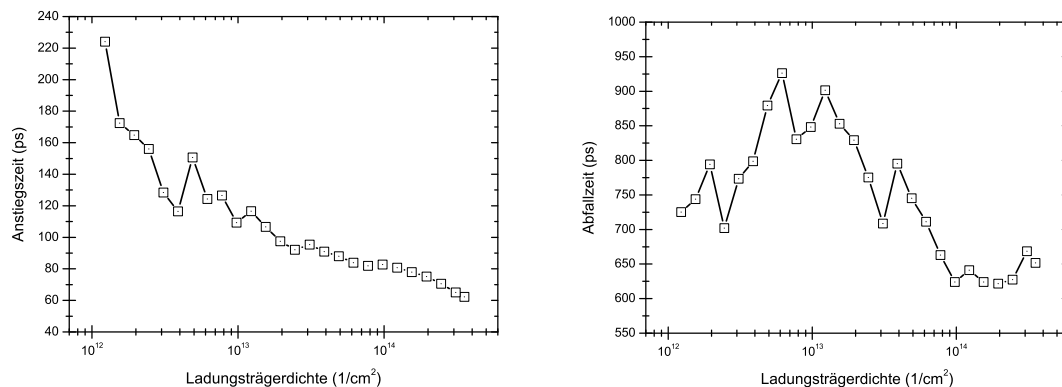


Abbildung 4.28: Anstiegs- (links) und Abfallzeiten (rechts) für die Rekombination heißer Ladungsträger bei  $1,52 \text{ eV}$

Die Abnahme der Abfallzeit bei den höchsten Dichten ist darauf zurück zu füh-

ren, dass bei diesen Dichten die Rekombination heißer Ladungsträger dominiert und die Lumineszenz der Exziton-Linie völlig verdeckt. Dadurch wird bei der Auswertung der Transienten nicht die Dynamik der Exziton-Linie sondern die der heißen Ladungsträger bestimmt. Dies sieht man auch daran, dass die Anstiegs- und Abfallzeiten sich denen annähern, die bei 1,52 eV bestimmt wurden (siehe Abbildung 4.28).

Vergleicht man die Dynamik der Biexziton-Linie mit der der Exziton-Linie, so erkennt man, dass die Anstiegszeit der Biexziton-Linie bei niedrigen Dichten etwas kürzer ist als die der Exziton-Linie. Dieser Unterschied ist bei dem 19,8 nm Film größer als beim 15,2 nm Film. Abbildung 4.29 zeigt die Transienten der Exziton- und der Biexziton-Linie des 19,8 nm Films für vier verschiedene Ladungsträgerdichten. Zum besseren Vergleich wurden die Transienten auf die maximale Intensität normiert.

Bei der höchsten Dichten ( $7,7 \cdot 10^{12} \text{ 1/cm}^2$ ) sind beide Transienten nahezu deckungsgleich, da hier die Rekombination heißer Ladungsträger des Substrates die Spektren domonieren und die Signale der Filme überdecken. Auch bei einer Dichte von  $2,7 \cdot 10^{12} \text{ 1/cm}^2$  sieht man noch einen deutlichen Einfluss der heißen Ladungsträger auf die Transienten des Filmes.

Bei den beiden niedrigeren Dichten hingegen kann man die unterschiedliche Dynamik der beiden Linien erkennen. Die Abfallzeit der Biexziton-Linie ist deutlich kürzer als die der Exziton-Linie. Theoretisch würde man erwarten, dass die Abfallzeit der Biexziton-Linie um einen Faktor 2 kürzer ist als die der Exziton-Linie [Gou79]. Experimentell wurde ein Faktor 1,7 bestimmt [Cha88]. Im vorliegenden Fall erhält man einen Faktor von 1,2 – 1,4 bei geringen Dichten, der auf 2 ansteigt für Dichten, bei denen die längsten Abfallzeiten beobachtet wurden, um für höhere Dichten auf  $\approx 1$  abzufallen. Dieser Abfall ist aber wie oben gesagt darauf zurück zu führen, dass hier nicht die Dynamik der Exzitonen und der Biexzitonen bestimmt wurde, sondern die der heißen Ladungsträger.

Auffallend ist außerdem, dass die Anstiegszeit der Biexziton-Linie bei niedrigen Dichten kürzer ist als die der Exziton-Linie. Dies deutet auf eine schnelle Biexziton-Bildung und damit auch der Exziton-Bildung innerhalb der ersten 100 ps hin. Allerdings sagt die Theorie [Kir01, Hoy03] eine Exzitonen-Bildung erst zu wesentlich späteren Zeiten voraus. Dies ist auch bei den dünneren Filmen (15,2 nm, 12,2 nm und 9,9 nm) zu beobachten.

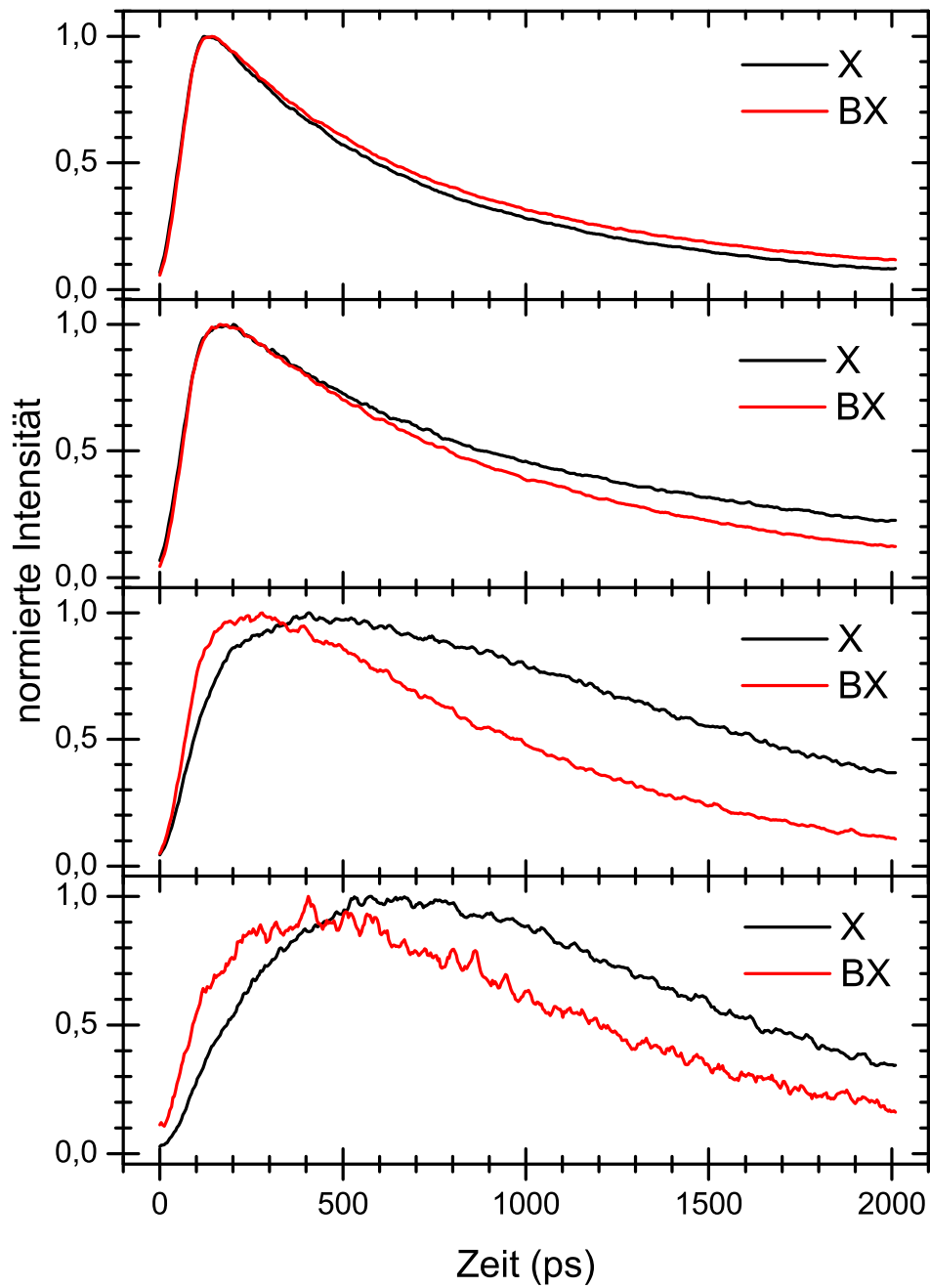


Abbildung 4.29: Transienten der Exziton( $X$ )- und Biexziton( $BX$ )-Linie des  $19,8 \text{ nm}$  Films bei unterschiedlichen Dichten (von oben nach unten:  $7,7 \cdot 10^{12} \text{ 1/cm}^2$ ,  $2,7 \cdot 10^{12} \text{ 1/cm}^2$ ,  $8,5 \cdot 10^{11} \text{ 1/cm}^2$  und  $2,7 \cdot 10^{11} \text{ 1/cm}^2$ )

## 4.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die Lumineszenz von GaAs-Quantenfilmen untersucht. Dabei wurden sowohl homogen verbreiterte als auch inhomogen verbreiterte Filme betrachtet.

Es zeigt sich, dass bei den homogenen Filmen das Auflösungsvermögen keinen Einfluss auf die Spektren hat. Im Gegensatz dazu zeigen sie eine deutliche Intensitätsabhängigkeit. Wie zu erwarten dominiert die Biexziton-Lumineszenz die Spektren bei hohen Anregungsdichten. Auffallend ist aber die deutliche Rotverschiebung der Biexziton-Linien mit steigender Dichte. Diese kann nicht auf die Rekombination heißer Biexzitonen alleine zurück geführt werden. Vielmehr ist eine deutliche Zunahme der Biexziton-Bindungsenergie mit steigender Anregungsdichte zu beobachten. Außerdem zeigt die Biexziton-Linie im Gegensatz zur Exziton-Linie eine deutliche inhomogene Verbreiterung. Die Ursache für diese beiden Effekte ist derzeit noch unklar. Bei der Untersuchung der Temperaturabhängigkeit zeigt sich, dass gerade bei niedrigen Temperaturen die Beschreibung durch eine Varshni-Kurve ungenau ist. Zwar kann eine Varshni-Kurve an die Messwerte angepasst werden, dazu müssen aber alle drei Parameter variiert werden und diese weichen dann deutlich von den Literaturwerten ab. Im Gegensatz dazu erreicht man für das Pässler-Modell, in dem nur ein Parameter angepasst wird, eine wesentlich bessere Übereinstimmung mit den Messwerten.

Bei inhomogen verbreiterten Filmen kann man sowohl bei geringer Ortsauflösung als auch bei hohen Dichten oder Temperaturen nur eine inhomogen verbreiterte Linie beobachten. Erst wenn mit hohem Auflösungsvermögen bei geringen Dichten und niedrigen Temperaturen gemessen wird, sind einzelne lokalisierte Zustände zu unterscheiden. Dabei konnte auch die Lumineszenz lokalisierter Biexzitonen beobachtet werden.

Die Autokorrelationsspektroskopie ermöglicht eine Aussage darüber, ob es in den einzelnen Spektren miteinander korrelierte Zustände gibt, sowie über deren energetischen Abstand. Sie erlaubt aber keine Aussage über die Ursache der Korrelation. Daher kann die quantenmechanische Niveauabstoßung mit der Autokorrelation alleine nicht nachgewiesen werden. Die bei  $2,75 \text{ meV}$  beobachtete Signatur lässt sich am einfachsten durch die Rekombination sowohl aus dem Grundzustand als auch aus einem angeregten Zustand, die an der gleichen Stelle lokalisiert sind, erklären, jedoch fehlt ein eindeutiger Beweis für diese Interpretation.

Die zeitaufgelösten Messungen zeigen, dass gepulste- und cw-Anregung selbst bei ähnlichen Ladungsträgerdichten nur bedingt vergleichbar sind. Deutlich wird dies vor allem an der Intensität der Biexziton-Lumineszenz, die bei cw-Anregung das Spektrum bei hohen Dichten dominiert. Die Abklingdynamik der niederenergetischen Linie zeigt das Verhalten, dass man für Biexziton-Lumineszenz erwartet. Allerdings ist es schwierig, die frühe Emission der Biexziton-Linie im Rahmen der Theorie der langsamen Exziton-Bildung in Halbleitern zu verstehen.



# 5 Ortsaufgelöste Anrege-Abfrage-Spektroskopie

Mit dem in Abschnitt 3.2.1 beschriebenen Versuchsaufbau ist die Untersuchung der räumlichen und zeitlichen Dynamik optisch generierter Ladungsträger möglich. Da die Tiefenschärfe geringer ist als die laterale Auflösung, ist es vorteilhaft, sich auf Halbleiterquantenfilme beschränken, da hier die Ladungsträger durch Barrieren an einer dreidimensionalen Bewegung gehindert werden. Außerdem sollte die Aufspaltung zwischen Leicht- und Schwerloch groß genug sein, um nur Schwerlöcher erzeugen zu können und so eine einfache Beschreibung der Messergebnisse zu erreichen.

## 5.1 Probencharakterisierung

Die untersuchte Probe besteht aus 50 9,1 nm dicken  $(Ga_{0,921}In_{0,079})As$ -Quantenfilmen, die jeweils von 8,6 nm dicken  $Ga(P_{0,206}As_{0,794})$ -Barrieren umgeben sind. Die Struktur der Probe ist in Abbildung 5.1a) schematisch dargestellt. Das Ganze ist auf einem  $GaAs$ -Substrat abgeschieden und mit einer 10 nm dicken  $GaAs$ -Schutzschicht abgedeckt. Außerdem befinden sich zwischen den unterschiedlichen ternären Schichten 1,5 nm dicke  $GaAs$ -Schichten, die die Entstehung quaternärer Schichten und somit die Verschiebung der Bandkante an den Grenzflächen verhindern.

In [Vol95] wurden die effektiven Massen von Elektron  $m_e = 0,067 m_0$  und Schwerloch  $m_{hh} = 0,25 m_0$  bestimmt, wobei für ein Exziton  $m_X = m_e + m_{hh} = 0,317 m_0$  gilt. Aus [Mad82] folgen die dielektrischen Konstanten  $\kappa_0 = 13$  und  $\kappa_\infty = 11$  sowie die Energie eines optischen Phonons  $\hbar\omega_{LO} \approx 35 meV$ . Die Dichte des Materials ist  $\rho = 5500 kg/m^3$  [Vol99a].

Die lineare Absorption der untersuchten Probe ist in Abbildung 5.2 als durchgezogene Linie dargestellt. Man erkennt die Absorption des Schwerlochexzitons bei  $\lambda = 855,5 nm$  und die des Leichtlochexzitons bei  $\lambda = 829,5 nm$ . Aufgrund der spektralen Breite des Laserpulses wurde für die resonante Anregung des Schwerlochexzitons eine Zentralwellenlänge von  $\lambda = 862 nm$  gewählt (gestrichelte Linie), so dass nur die hochenergetische Flanke zur Anregung beiträgt und keine freien Elektronen und Löcher erzeugt werden.

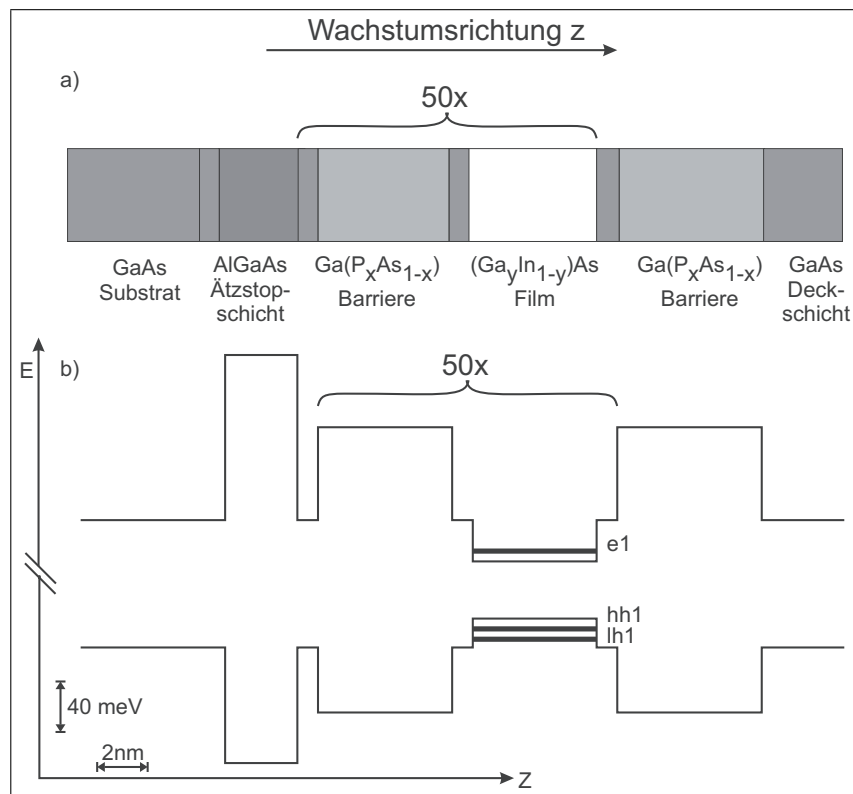


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung der  $(GaIn)As/Ga(PAs)$ -Heterostruktur mit ihrem Bandkantenverlauf und der untersten Elektron- ( $e1$ ), Schwerloch- ( $hh1$ ) und Leichtlochzustände ( $lh1$ ). (aus [Vol99a]).

## 5.2 Räumliche Ausbreitung resonant erzeugter Exzitonen

Es wurden zwei Messungen zur Bestimmung der Ausbreitungsdynamik von resonant erzeugten Schwerlochexzitonen durchgeführt. Die Anregungswellenlänge betrug in beiden Fällen  $\lambda = 862 \text{ nm}$  und die Kühlfingertemperatur des Kryostaten  $7 \text{ K}$ . Der relative Abstand des Anregestrahls zum Abfragestrahl wurde zwischen  $-3,5 \mu\text{m}$  und  $+3,5 \mu\text{m}$  in  $300 \text{ nm}$ -Schritten verfahren. Beide Messungen wurden bei leicht unterschiedlichen Ladungsträgerdichten durchgeführt. Die Leistungsdichten ( $P$ ) und die daraus resultierenden Ladungsträgerdichten ( $n$ ) in einem Film für die Anrege- ( $Pump$ -) und Abfrage- ( $Probe$ -) Pulse der beiden Messungen sind in Tabelle 5.1 aufgelistet.

Bei beiden Messungen wurden für jede der vier Anrege- und Abfragekombinationen (siehe Gleichung 3.6) pro Verzögerungszeit und Drehwinkeleinstellung drei Spektren aufgenommen und gemittelt. Dadurch können kurzfristige Schwankungen von Laser und Detektor ausgeglichen werden.

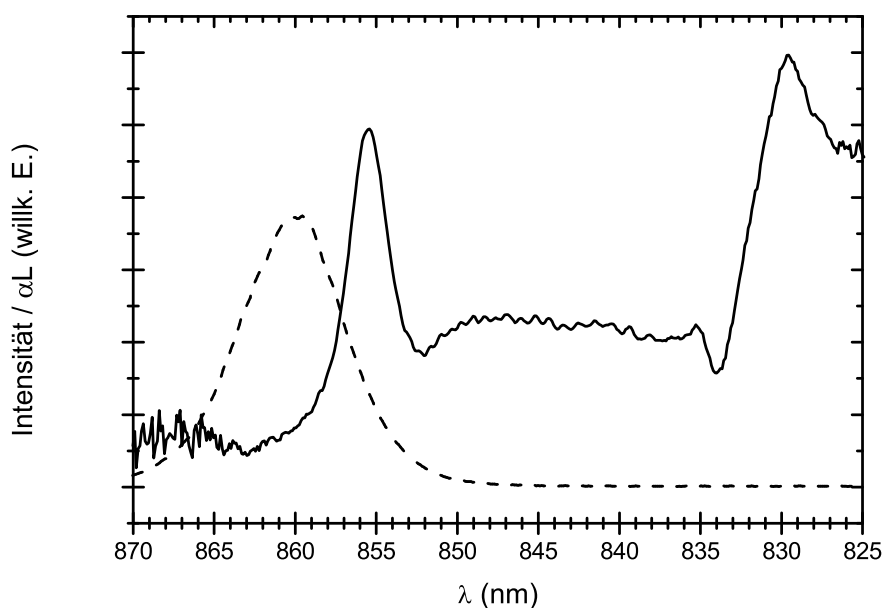


Abbildung 5.2: Lineare Absorption der  $(GaIn)As/Ga(PAs)$ -Heterostruktur (durchgezogene Linie) und normiertes Spektrum des Laserpulses bei resonanter Anregung (gestrichelte Linie) (aus [Vol99a]).

	Pump		Probe	
	$P$	$n$	$P$	$n$
Messung 1	$113 \text{ MW/cm}^2$	$2,6 \cdot 10^{11} \text{ 1/cm}^2$	$7 \text{ MW/cm}^2$	$1,6 \cdot 10^{10} \text{ 1/cm}^2$
Messung 2	$93 \text{ MW/cm}^2$	$2,1 \cdot 10^{11} \text{ 1/cm}^2$	$6 \text{ MW/cm}^2$	$1,4 \cdot 10^{10} \text{ 1/cm}^2$

Tabelle 5.1: Ladungsträgerdichten

Zusätzlich wurde bei der zweiten Messung jede Kombinationsserie dreimal wiederholt, um mittelfristige Schwankungen auszugleichen. Außerdem wurde für jede Drehwinkelseinstellung die gesamte Serie von Verzögerungszeiten dreimal durchgeführt, um auch über langfristige Schwankungen zu mitteln. Bei beiden Messungen wurde die Verzögerungszeit von  $0 \text{ ps}$  bis  $400 \text{ ps}$  variiert.

Abbildung 5.3 zeigt die zeitliche Entwicklung der Halbwertsbreite für die erste Messung. Innerhalb der ersten  $10 \text{ ps}$  scheint eine schnelle Ausbreitung stattzufinden. Tatsächlich kann man in der logarithmischen Darstellung (Kreise) in Abbildung 5.7 b) erkennen, dass die Halbwertsbreite der Ladungsträgerverteilung erst kleiner wird, bevor sie wieder zunimmt. Diese Schwankungen sind auf die wenigen Mittelungen bei der Messung zurückzuführen. Ab etwa  $50 \text{ ps}$  geht die Ausbrei-

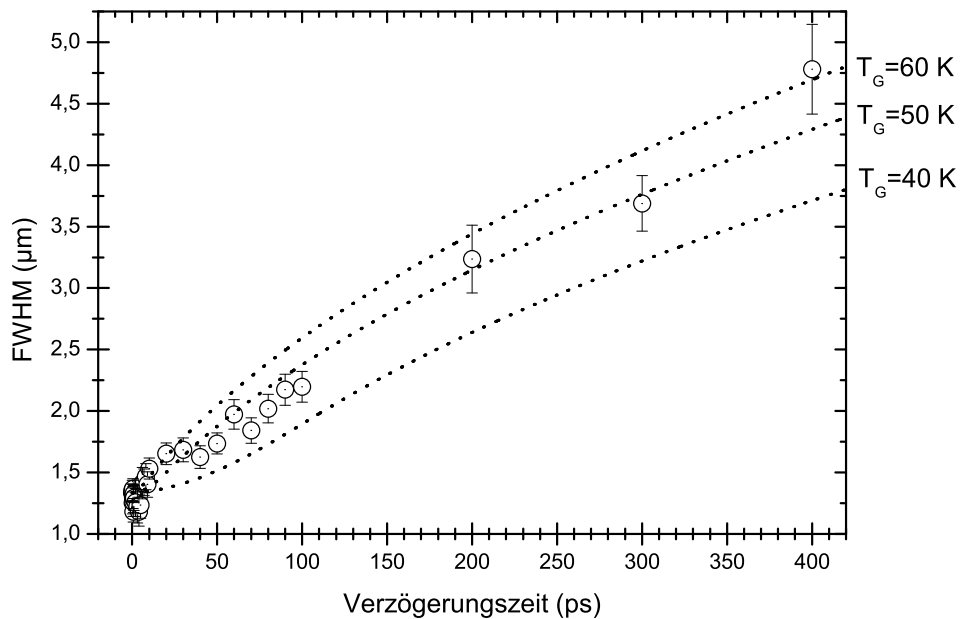


Abbildung 5.3: Halbwertsbreite der Ladungsträgerverteilungen des Schwerlohexzitons bei unterschiedlichen Verzögerungszeiten (1. Messung). Die Linien entsprechen dem Modell der Ladungsträgerdiffusion für die angegebenen Gittertemperaturen.

tung in eine konstante Diffusion über. Für große Halbwertsbreiten werden auch die Fehlerbalken relativ groß, was einerseits mit dem zu klein gewählten Bereich des Drehwinkels zu erklären ist. Hier wurden die Ausläufer der gaußförmigen Ladungsträgerverteilungen nicht mehr gemessen, sodass auch die Anpassung einer Gaußkurve fehlerbehaftet war. Andererseits wird das Signal schwächer, weil es von der Ladungsträgerdichte an dem jeweiligen Ort abhängt, welcher durch Ausbreitung und Rekombination der Ladungsträger abnimmt. Dadurch wird das Signal-Rausch-Verhältnis kleiner. Diese Fehlerquelle kann man verringern, indem über wesentlich mehr Messungen gemittelt wird.

Die Linien entsprechen dem theoretischen Modell für Gittertemperaturen  $T_G$  von 40–60 K. Die Streuzeit in diesem Temperaturbereich wurde nach [Vol99a] konstant bei 1,6 ps gelassen. Als Anfangswert der mittleren Energie der Ladungsträger wurde analog 0,2 meV gewählt. Die einzigen Parameter, die den Kurvenverlauf wesentlich beeinflussen, sind die Proben temperatur und die Halbwertsbreite der Anfangsverteilung, also bei einer Verzögerungszeit von 0 fs. Letzterer Wert ist aus den Messungen abzulesen und betrug hier 1334 nm. Bei einer Proben temperatur von 50 K entspricht die theoretische Kurve am besten der Messung. Lediglich in den ersten 20 ps breitet

sich die Ladungsträgerverteilung offensichtlich schneller aus, als es die theoretische Berechnung zulässt.

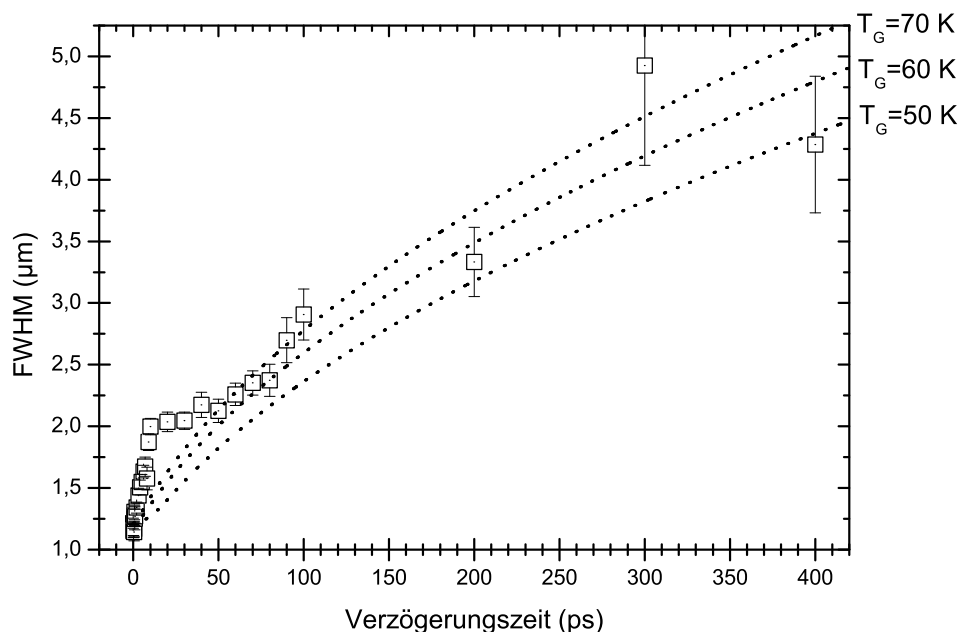


Abbildung 5.4: Halbwertsbreite der Ladungsträgerverteilungen des Schwerlohexzitons bei unterschiedlichen Verzögerungszeiten (2. Messung). Die Linien entsprechen dem Modell der Ladungsträgerdiffusion für die angegebenen Gittertemperaturen.

Die zweite Messung ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Hier erkennt man deutlich die schnelle Ladungsträgerausbreitung innerhalb der ersten  $10\text{ ps}$ . Danach verlangsamt sie sich und geht wieder ab  $50\text{ ps}$  in eine konstante Diffusion über. Die Fehlerbalken für lange Verzögerungszeiten sind sogar größer als die aus der ersten Messung. Dies ist auf die niedrigeren Anrege- und Abfrageintensitäten zurückzuführen. Sie waren gerade noch ausreichend, um überhaupt Änderungen in dem Transmissionsverhalten der Probe detektieren zu können. Für lange Verzögerungszeiten nimmt die Ladungsträgerkonzentration aber ab und erschwert so die Messung. Zusätzlich war der Bereich des Drehwinkels nicht erhöht worden, weil die Auswertung der ersten Messung zu diesem Zeitpunkt noch nicht durchgeführt worden war.

Die Linien entsprechen dem theoretischen Modell für Gittertemperaturen von  $50\text{--}70\text{ K}$ . Die Streuzeit wurde nach [Vol99a] für diesen erhöhten Temperaturbereich auf  $1,7\text{ ps}$  vergrößert und als Anfangswert der mittleren Energie der Ladungsträger wieder  $0,2\text{ meV}$  gewählt. Die Halbwertsbreite der Anfangsverteilung betrug

1215 nm. Bei einer Proben temperatur von 60 K beschreibt die theoretische Kurve die Messung im diffusiven Bereich am besten. Man erkennt aber deutlich, dass sie in den ersten 50 ps viel flacher als die Messpunkte ansteigt. Die Ausbreitung ist sogar schneller als die von hochenergetisch angeregten freien Elektron-Loch-Paaren, wie sie in [Vol99a] gemessen wurden.

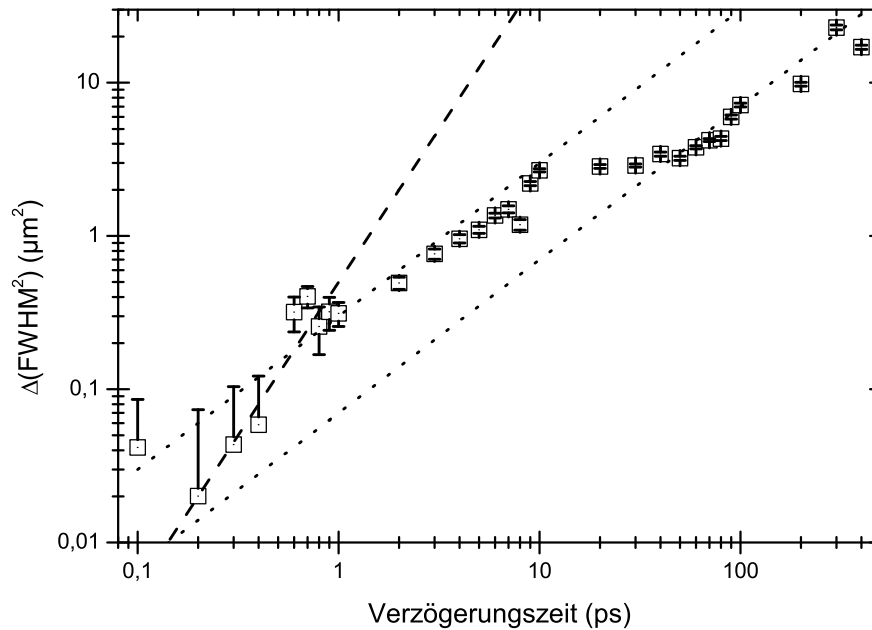


Abbildung 5.5: Änderung der quadrierten Halbwertsbreite einer resonant angeregten Ladungsträgerverteilung (2. Messung). Die gestrichelte Linie entspricht einer ballistischen Ausbreitung der Ladungsträger, die gepunkteten Linien dagegen entsprechen einer diffusiven Ausbreitung.

Die Vermutung liegt nahe, dass eine solch schnelle Ausbreitung ballistischer Natur sein muss. Um dies zu überprüfen, wird die Änderung der quadrierten Halbwertsbreite in Abbildung 5.5 doppelt logarithmisch dargestellt.

Ist die Ausbreitung ballistisch, so muss eine quadratische Abhängigkeit von der Verzögerungszeit sichtbar werden (gestrichelte Linie), bei einer diffusiven Ausbreitung eine lineare (gepunktete Linien). Die ersten Messwerte streuen so erheblich, dass die kleinste Halbwertsbreite bei einer Verzögerung von 500 fs erreicht wird. Um alle anderen Messdaten darstellen zu können, wurde die Änderung der quadrierten Halbwertsbreite zu diesem Bezugswert bestimmt. Durch diese Schwankungen ist aber kein einwandfreier Nachweis eines ballistischen Transportes innerhalb der ersten Pikosekunde möglich. Zwischen 1 – 10 ps Verzögerungszeit, dem Bereich,

in dem weiterhin eine ballistische Ausbreitung vermutet wurde, ist deutlich ein diffusiver Ladungstransport zu erkennen. Es handelt sich in diesem Zeitabschnitt also nicht um eine ballistische Ausbreitung, obwohl es in der Theorie keine Erklärung für eine solch frühe und schnelle Diffusion gibt. Bemerkenswert ist auch die scheinbar zum Stillstand kommende Ausbreitung zwischen 10–50 *ps* Verzögerungszeit, welche anschließend wieder in eine Diffusion übergeht. Für dieses Verhalten gibt es bisher ebenfalls keine Erklärung.

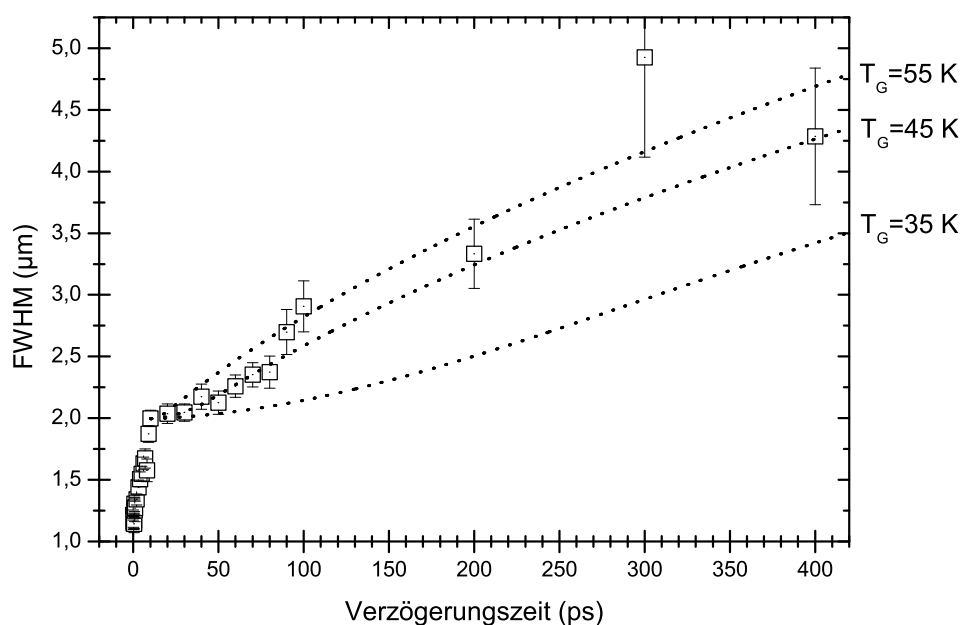


Abbildung 5.6: Halbwertsbreite der Ladungsträgerverteilungen des Schwerlohexzitons bei unterschiedlichen Verzögerungszeiten (2. Messung). Die gepunkteten Linien entsprechen dem Modell der Ladungsträgerdiffusion für verschiedene Temperaturen.

Ignoriert man die Messdaten der zweiten Messung in den ersten 10 *ps* und passt dann eine theoretische Kurve an, so erfolgt die beste Übereinstimmung mit den restlichen Messdaten bei einer Proben temperatur von 45 *K* (Abbildung 5.6). Für diesen Temperaturbereich wurde also wieder eine konstante Streuzeit von 1,6 *ps* angenommen. Beide Parameter entsprechen somit denen aus der ersten Messung. Als Halbwertsbreite der Anfangsverteilung der Ladungsträger muss dann etwa 2  $\mu\text{m}$  angenommen werden.

Auch an die ersten zehn Messpunkte kann prinzipiell eine theoretische Kurve angepasst werden, dazu muss aber eine um den Faktor 5 größere Diffusionskonstante

angenommen werden. Diese sollte sich aber nicht nach 10 *ps* plötzlich deutlich ändern. Die gemessene Ladungsträgerdynamik zu frühen Zeiten kann also nicht mit dem diskutierten Modell erklärt werden.

Zum besseren Vergleich sind beide Messungen in Abbildung 5.7 zusammen mit den angepassten theoretischen Kurven dargestellt. Zur besseren Verdeutlichung der Ladungsträgerdynamik in den ersten *ps* wurden sie auch über einer logarithmischen Zeitskala aufgetragen. Das theoretische Modell beschreibt die erste Messung (Kreise) relativ gut. Trotzdem kann man auch hier andeutungsweise eine erhöhte Ausbreitungsgeschwindigkeit zwischen 5 – 10 *ps* erkennen. Dies wird in der zweiten Messung (Quadrate) zwischen 1 – 10 *ps* ganz deutlich, wo auch die Fehlerbalken viel kleiner sind. Die Änderung der Mittelungszahl von der ersten zur zweiten Messung kann kaum für den stärkeren Anstieg der Ausbreitungsgeschwindigkeit verantwortlich sein. Die verwendeten Energierelaxationswege über Deformationspotentialstreuung, piezoelektrische Streuung und Fröhlich-Wechselwirkung beschreiben die Ausbreitungsänderung aufgrund der Temperaturerhöhung ebenfalls nicht befriedigend in den ersten 50 *ps*, wie in den Abbildungen deutlich wird.

Als einzige Ursache bleibt die Verringerung der Anregungsintensität um 18% bei der zweiten Messung übrig. Dies wirkt sich auf die Ladungsträgerdichte und somit auf die Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander aus. Weil dieser Anteil bei dem theoretischen Modell nicht berücksichtigt wurde, ist es verständlich, dass das Modell auch nicht gut mit den Messungen für Verzögerungszeiten kleiner 10 *ps* übereinstimmt.



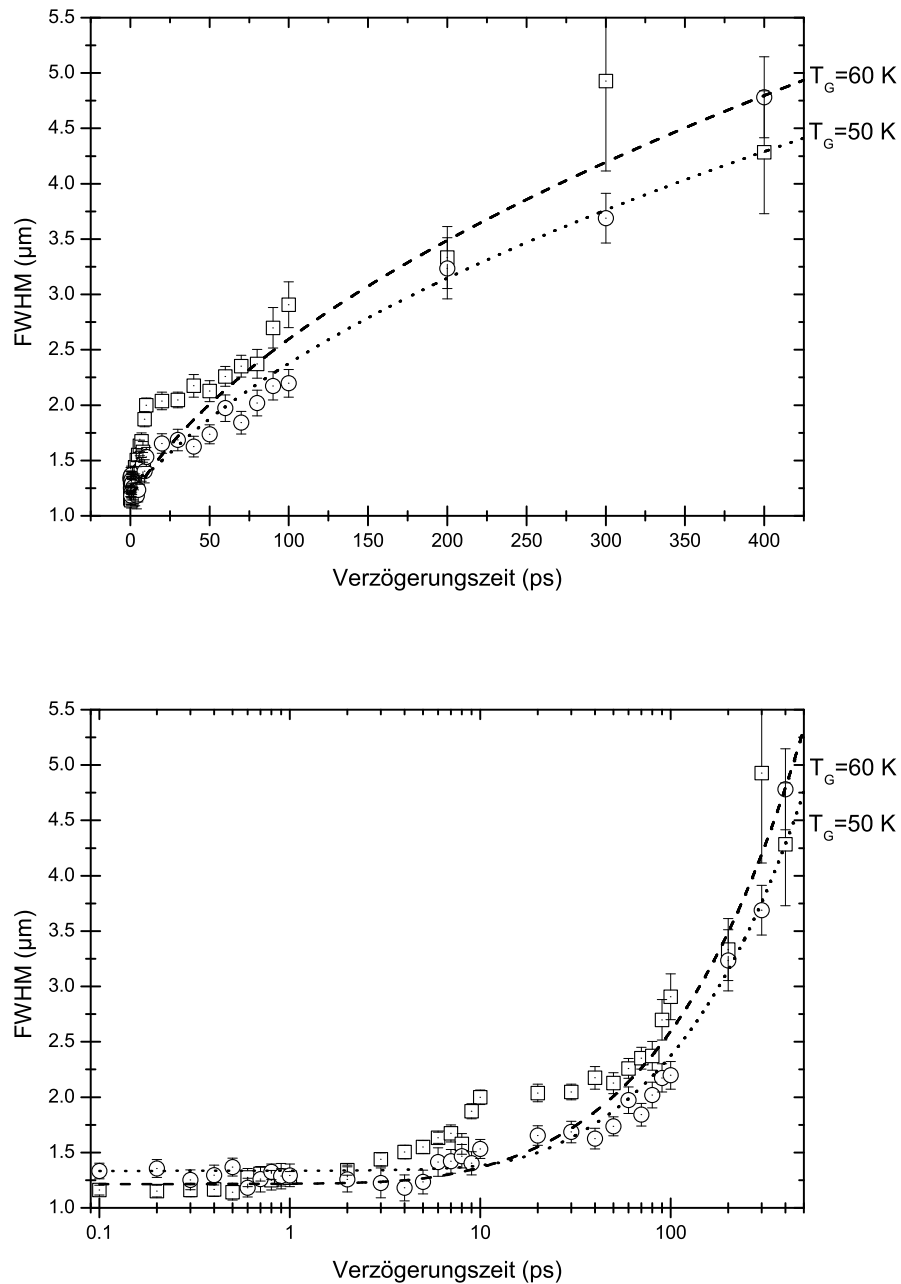


Abbildung 5.7: Lineare (a) und logarithmische (b) Darstellung der Dynamik des Schwerlochexzitons beider Messungen. Die besten Übereinstimmungen mit dem Modell der Ladungsträgerdiffusion sind für die erste Messung (Kreise) gestrichelt und für die zweite Messung (Quadrate) gepunktet dargestellt.

### 5.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Dynamik optisch generierter Ladungsträger in Halbleiter-Quantenfilmen mit einer Zeitauflösung von 100  $fs$  und einer Ortsauflösung von 1  $\mu m$  untersucht.

Es zeigt sich, dass die Ausbreitung resonant erzeugter Exzitonen durch die Diffusionsgleichung für Zeiten größer 20  $ps$  sehr gut beschrieben werden kann. Für frühe Zeiten hingegen zeigt sich eine deutliche Abweichung. Das kann daran liegen, dass die Energierelaxationsraten für eine thermische Ladungsträgerverteilung abgeleitet wurden. Diese Voraussetzung ist aber gerade für die ersten  $ps$  nicht gegeben. Hier sind weiter dichte- und temperaturabhängige Messungen nötig.

Diese konnten aber im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr durchgeführt werden, da durch den Ausfall der Klimaanlage im Labor weiter Messungen unmöglich waren.

# 6 Optische Nahfeld-Mikroskopie an $MnAs$ -Clustern

In diesem Kapitel werden die Messungen mit dem Depolarisations-Nahfeld-Mikroskop (*Depol-SNOM*) an ferromagnetischen  $MnAs$ -Clustern vorgestellt.

Im Gegensatz zu einem dielektrischen Kontrast, der nur im Nahfeld zu einer Drehung der Polarisationsenebene des Lichtes führt (siehe Kapitel 3.3), kann man bei magnetischen Materialien auch im Fernfeld eine Drehung beobachten. Dabei wird zwischen dem Faraday-Effekt in Transmission und dem magneto-optischen Kerr-Effekt (*MOKE*) in Reflexion unterschieden. Beide Effekte wurden bereits mit der optischen Nahfeld-Mikroskopie an anderen Materialsystemen untersucht [Egg98, Fum98, Pet98].

Fumagalli und Mitarbeiter [Fum98] verwenden dabei die Nahfeldsonde zur Beleuchtung der Probe und detektieren im Fernfeld. Diese Methode hat den Vorteil, dass sowohl in Transmission als auch in Reflexion gearbeitet werden kann. Dadurch kann sowohl der Faraday-Effekt, als auch der magneto-optische Kerr-Effekt gemessen werden.

Petersen und Mitarbeiter [Pet98] hingegen verwenden die Sonde sowohl zur Beleuchtung als auch zur Detektion. Dabei wird die Drehung der Polarisation mit einem modifizierten Sagnac-Interferometer bestimmt. Der Vorteil des Sagnac-Interferometers besteht darin, dass es nur für Effekte sensitiv ist, die die Zeitumkehr-Invarianz verletzen. Dadurch erreicht man eine sehr hohe Empfindlichkeit für diese Effekte ( $2 \mu\text{rad}/\sqrt{Hz}$ ) [Kap94].

Als Proben wurden bisher magneto-optische Datenträger (engl.: *magneto-optical disk, MOD*) und dünne Schichten ferromagnetischer Metalle untersucht.

## 6.1 Probencharakterisierung und Messungen

Die untersuchte Probe enthält  $MnAs$ -Cluster, die in einer  $(GaIn)As$ -Matrix eingebettet sind. Die Topographie der Probe ist in Abbildung 6.1 links dargestellt. Deutlich erkennt man die Vertiefungen (dunkelgraue Bereiche), in denen die Cluster liegen. Diese Vertiefungen sind etwa  $5 \text{ nm}$  tief und haben einen Durchmesser von etwa  $87 \text{ nm}$  (FWHM). Auf der Abbildung (Rasterbereich:  $2,56 \mu\text{m} \times 2,56 \mu\text{m}$ ) sind

14 Cluster zu erkennen.

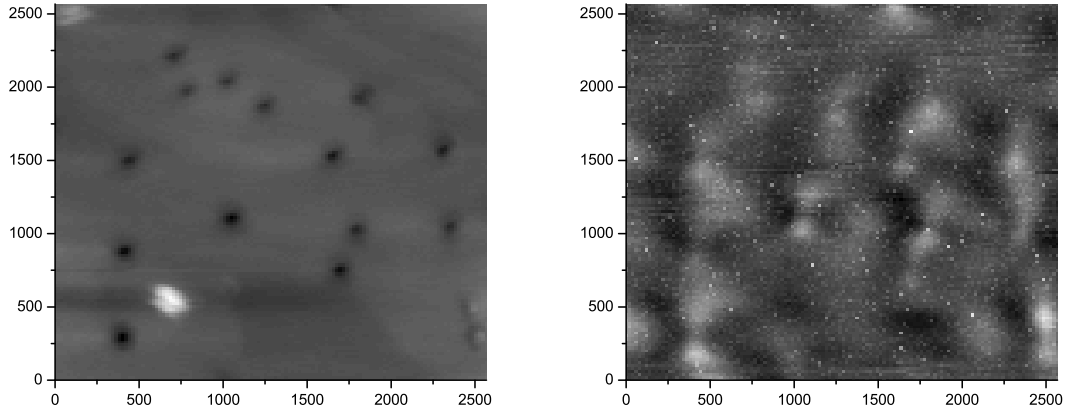


Abbildung 6.1: Topographie (links) und Depolarisations-Signal (rechts) der *MnAs*-Cluster, aufgenommen im CDM. Der Rasterbereich beträgt  $2,56 \mu\text{m} \times 2,56 \mu\text{m}$ , die Höhe der Topographie  $14 \text{ nm}$ .

Der helle Fleck in der linken unteren Ecke ist eine Verunreinigung, die auf der Probe liegt, und hat eine Höhe von etwa  $9 \text{ nm}$ , bei einer Halbwertsbreite von etwa  $148 \text{ nm}$ . Die Gesamthöhe der Topographie beträgt  $14 \text{ nm}$ , davon sind aber etwa zwei Drittel durch die Verunreinigung bedingt.

Die rechte Seite in Abbildung 6.1 zeigt das simultan aufgenommene Depol-SNOM-Bild. Deutlich erkennt man ein erhöhtes Signal im Bereich der Cluster. Da hier bei aktiver Abstandsregelung gemessen wurde, kann ein Topographie-induzierter Kontrast nicht ausgeschlossen werden. Allerdings erkennt man in der Optik kein signifikantes Signal an der Stelle, an der in der Topographie die Verunreinigung zu sehen ist. Das spricht gegen einen induzierten Kontrast.

Um diese Artefakte vollständig auszuschließen wurden weitere Messungen im „constant height mode“, bei einer mittleren Höhe von  $100 \text{ nm}$  durchgeführt. Diese sind in Abbildung 6.2 für vier unterschiedliche Einstellungen des Analysators dargestellt, von links oben nach rechts unten:  $0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $90^\circ$  und  $135^\circ$ . Dabei wird der Winkel relativ zum Polarisator angegeben, d.h. bei  $0^\circ$  stehen Analysator und Polarisator parallel, bei  $90^\circ$  senkrecht zueinander.

Vergleicht man die beiden Bilder bei  $0^\circ$  (links oben) und  $90^\circ$  (links unten), so wird der Kontrast nahezu vollständig invertiert. Im  $0^\circ$ -Bild erscheinen die Cluster dunkel und die Matrix hell, im  $90^\circ$ -Bild sind die Cluster hell und die Matrix dunkel. Allerdings sind die Cluster im  $0^\circ$ -Bild deutlicher zu erkennen, da hier das Signal um einen Faktor 50 größer ist als beim  $90^\circ$ -Bild. Hier ist aufgrund des geringen Signals das Signal-Rausch-Verhältnis deutlich schlechter. Außerdem reagiert der Aufbau bei der

90°-Stellung des Analysators wesentlich empfindlicher auf Störungen. Der Kontrast ist in beiden Fällen vergleichbar und beträgt etwa 1 : 1,4.

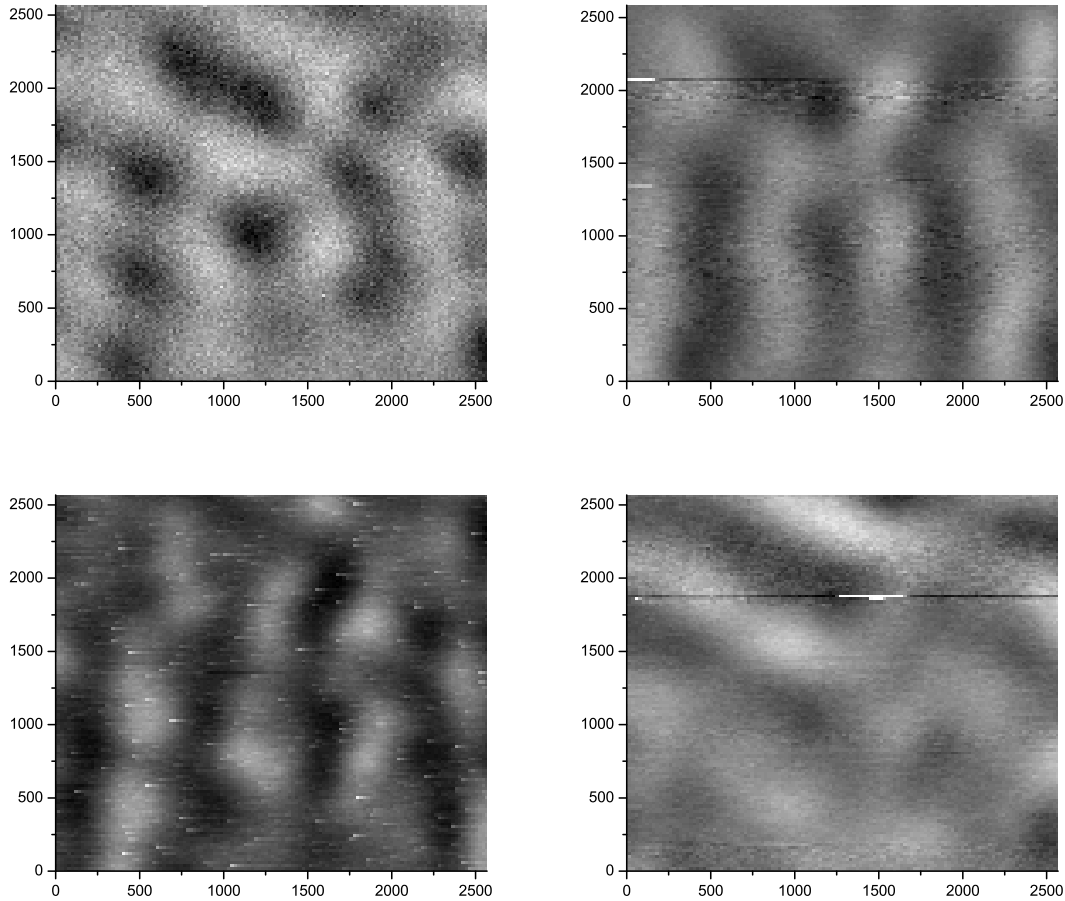


Abbildung 6.2: Depolarisations-Signal für verschiedene Analysator-Stellungen, Rasterbereich  $2,56 \mu m \times 2,56 \mu m$ , links oben:  $0^\circ$ , rechts oben:  $45^\circ$ , links unten:  $90^\circ$ , rechts unten:  $135^\circ$

Betrachtet man die beiden Messungen bei  $45^\circ$  (rechts oben) und  $135^\circ$  (rechts unten), so zeigt sich, dass im  $45^\circ$ -Bild noch alle Cluster zu erkennen sind. Der Kontrast ist allerdings deutlich geringer als im  $0^\circ$ -Bild. Im Gegensatz dazu ist in der unteren Hälfte des  $135^\circ$ -Bildes nur noch ein geringer Kontrast vorhanden. Die Cluster sind hier nicht mehr zu erkennen. In dem oberen, linken Teil der Aufnahme hingegen ist der Kontrast deutlich größer als in dem  $45^\circ$ -Bild und vergleichbar mit dem Kontrast in dem  $0^\circ$ -Bild.

Betrachtet man die Topographie der Probe (siehe Abbildung 6.1 links), so erkennt man, dass in diesem Bereich vier Cluster vergleichsweise dicht zusammen liegen,

sodass hier die lokale Clusterdichte höher ist als an den anderen Stellen. Bei der Messung wird aber immer über einen Bereich, der durch das Auflösungsvermögen gegeben ist, gemittelt. Da die Cluster kleiner sind als das Auflösungsvermögen steigt der Kontrast in der Depol-SNOM-Bilder mit steigender Clusterdichte. Dadurch sind die Bereiche mit hoher Clusterdichte auch noch in dem ansonsten kontrastarmen 135°-Bild zu erkennen.

Um das Drehvermögen einzelner Cluster genauer zu untersuchen wurde die Faser Spitze über einem Cluster positioniert, und dann das Signal für verschiedene Stellungen des Analysators aufgezeichnet. Dieses Verfahren wurde für mehrere Cluster wiederholt. Zum Vergleich wurden auch mehrere Messungen über der Matrix durchgeführt. Ein Beispiel für die so erhaltenen Messwerte für einen Cluster (Kreise) und die Vergleichswerte für die Matrix (Quadrate) sind in Abbildung 6.3 als Symbole aufgetragen. Die Linien sind angepasste  $\cos^2$ -Kurven.

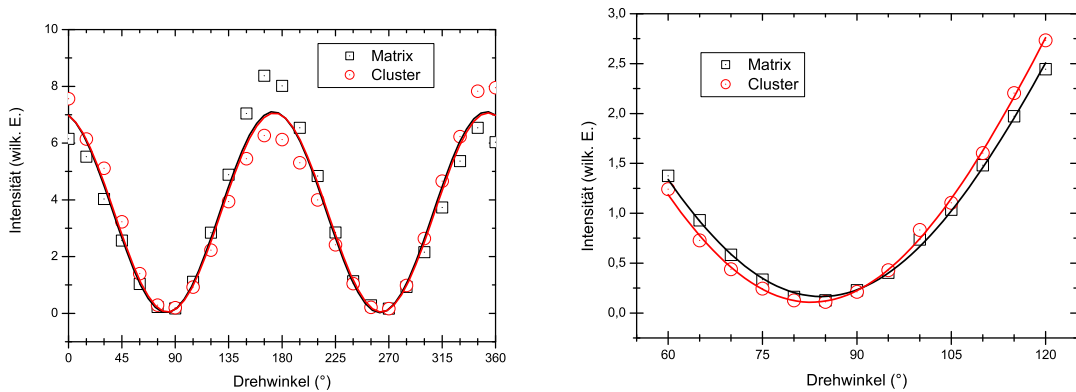


Abbildung 6.3: Signal-Intensität (Symbole) aufgetragen gegen den Drehwinkel des Analysators zusammen mit angepassten  $\cos^2$ -Kurven

Bei der in Abbildung 6.3 links gezeigten Messung wurden der Drehwinkel des Analysators von  $0^\circ$  bis  $360^\circ$  in  $15^\circ$  Schritten variiert. Der Polarisationsgrad beträgt in beiden Fällen etwa  $50 : 1$ . Auffallend ist die Asymmetrie der Kurven. Sowohl für die Matrix als auch für den Cluster unterscheiden sich die beiden Maxima bei  $0^\circ$  und  $180^\circ$  erheblich. Während für die Matrix das Maximum bei  $180^\circ$  deutlich größer ist als bei  $0^\circ$ , ist es für den Cluster genau umgekehrt. Vermutlich handelt es sich dabei aber um einen Artefakt, wobei allerdings eine Asymmetrie im Aufbau als Ursache ausgeschlossen werden kann, da in diesem Fall beide Kurven das gleiche Verhalten zeigen müssten. Außerdem ist die Kurve für den Cluster gegenüber der Matrix zu *größeren* Winkeln verschoben.

Um diese Verschiebung genauer zu bestimmen, wurde für den gleichen Cluster und die gleiche Stelle der Matrix das erste Minimum bei  $90^\circ$  genauer vermessen.

Abbildung 6.3 rechts zeigt die Werte die im Bereich von  $60^\circ$  bis  $120^\circ$  in  $5^\circ$ -Schritten gemessen wurden. Obwohl an den gleichen Probenpositionen gemessen wurde wie vorher, ist hier die Kurve für den Cluster gegenüber der Matrix deutlich zu *kleineren* Winkeln verschoben. Dies widerspricht aber der ersten Messung. Die Ursache für das unterschiedliche Verhalten der beiden Messungen sind langsame Driften im Aufbau.

Betrachtet man nämlich die Messungen für mehrere Cluster und mehrere Matrix-Positionen miteinander, so zeigt sich kein klares Verhalten. Die aus den Anpassungen bestimmten Winkel für die Minima streuen in beiden Fällen stark. Eine eindeutige Bestimmung des Drehvermögens eines einzelnen Clusters ist dadurch nicht möglich.

## 6.2 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden Messungen an ferromagnetischen Strukturen mit einem optischen Nahfeld-Mikroskop vorgestellt.

Dazu wurde ein Depol-SNOM verwendet um erstmals das Drehvermögen einzelner ferromagnetischer *MaAs*-Cluster zu untersuchen. Im Gegensatz zu einem dielektrischen Probenkontrast, der mit senkrecht zum Polarisator stehendem Analysator zu beobachten ist, ist es bei ferromagnetischen Proben vorteilhafter, den Analysator parallel zum Polarisator zu stellen. Obwohl dabei auch die Fernfeld-Reflexe zum Signal beitragen, sind in dieser Einstellung die Cluster deutlicher zu erkennen, da die Drehung der Polarisation durch die Magnetisierung ein Fernfeldeffekt ist. Im Gegensatz dazu ist die Drehung durch einen dielektrischen Kontrast ein reiner Nahfeldeffekt.

Das Drehvermögen eines einzelnen Clusters konnte mit dem derzeitigen Aufbau noch nicht quantitativ bestimmt werden, es ist aber prinzipiell möglich. Zur Steigerung des Signal-Rausch-Verhältnisses ist eine Erweiterung um eine Lock-In-Detektion nötig.





# 7 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die optischen Eigenschaften von verschiedenen Halbleiterheterostrukturen auf kleinen Längenskalen untersucht. Dazu wurden drei unterschiedliche Methoden der ortsaufgelösten Spektroskopie angewandt, für die jeweils eine eigenständige Messapparatur entwickelt und aufgebaut wurde.

Zur ortsaufgelösten Messung der Photolumineszenz (*PL*) wurden ein Mikro-Photolumineszenz-Messplatz aufgebaut. Dabei wurde eine Ortsauflösung von  $0,833\lambda$  erreicht, die durch den Einsatz einer Festkörperimmersionslinse auf  $0,26\lambda$  gesteigert werden konnte. Mit diesem Aufbau wurde der Einfluss der Unordnung auf die optischen Eigenschaften von *GaAs*-Quantenfilme untersucht. Variiert wurden das Auflösungsvermögen, die Probertemperatur und die Anregungsdichte. Es zeigen sich deutliche Unterschiede zwischen homogenen und inhomogen verbreiterten Filmen.

Bei homogenen Filmen hat das Auflösungsvermögen keinen Einfluss auf die Spektren. Die Temperaturabhängigkeit der Lage der Lumineszenz kann gut durch das Pässler-Modell beschrieben werden. Dieses Modell liefert bessere Ergebnisse als das Modell von Varshni, leider wird letzteres sehr viel häufiger benutzt.

Bei der Dichteabhängigkeit hingegen zeigt sich ein wesentlich komplexeres Verhalten. Bei niedrigen Anregungsdichten ist zunächst nur die PL bei der exzitonischen Resonanz detektierbar. Diese Exziton-Linie kann durch eine Lorentz-Kurve beschrieben werden. Ihre Intensität steigt nahezu linear mit der Anregungsdichte und sättigt bei hohen Anregungsdichten. Die energetische Lage ist unabhängig von der Anregungsdichte, die Breite nimmt aufgrund des dichteabhängigen Dephasierens zu.

Mit zunehmender Anregungsdichte wird eine zweite Linie auf der Niederenergie-seite sichtbar. Diese Linie zeigt ein deutlich anderes Verhalten. Sie ist zusätzlich inhomogen verbreitert und lässt sich nur durch eine Kombination von Gauß- und Lorentz-Kurven beschreiben. Die Intensität wächst in etwa quadratisch mit der Anregungsdichte, zeigt kein Sättigungsverhalten und dominiert bei hohen Anregungsdichten das Lumineszenz-Spektrum vollständig. Sie zeigt außerdem mit steigender Anregungsdichte eine deutliche Rotverschiebung. Das fehlende Sättigungsverhalten schließt störstellengebundene Exzitonen als Quelle dieser Linie aus.

Für mittlere Anregungsdichten entspricht der energetische Abstand der beiden Linien der mittels kohärenter Anregungsspektroskopie bestimmten Biexziton-Bindungsenergie. Dies legt die Interpretation der niederenergetischen Linie als Biexziton-

Lumineszenz nahe. Allerdings steigt der Abstand beider Linie mit steigender Anregungsdichte auf den anderthalbfachen Wert an. Das würde bedeuten, dass im Gegensatz zu theoretischen Erwartungen die Biexziton-Bindungsenergie mit steigender Anregungsdichte zunimmt. Eine Bestätigung für diese zunehmende Bindungsenergie durch andere Messmethoden wie zum Beispiel die kohärente Anregungsspektroskopie steht allerdings noch aus. Auch eine andere mögliche physikalische Ursache für eine solche Verschiebung der Biexzitonrekombination zu niedrigeren Energie ist bisher nicht bekannt.

Bei inhomogenen Quantenfilmen ist im Gegensatz zu homogenen Filmen ein deutlicher Einfluss der Ortsauflösung erkennbar. Bei geringer Ortsauflösung mittelt die Messung über einen großen Bereich der Probe, sodass nur eine inhomogen verbreiterte Linie sichtbar ist. Mit steigender Ortsauflösung wird das detektierte Probenvolumen kleiner. Die durch den Einsatz der Festkörper-Immersionlinse erreichbare Ortsauflösung ist ausreichend, um bei niedrigen Anregungsdichten einzelne lokalisierte Zustände innerhalb der inhomogenen Verbreiterung sichtbar zu machen. Eine Auswertung der Intensitätsabhängigkeit erlaubt eine Zuordnung der einzelnen Linien zu lokalisierten Exzitonen und Biexzitonen. Diese Interpretation der einzelnen Zustände wird durch den Vergleich der Bindungsenergie mit der, die bei der kohärenten Anregungsspektroskopie erhalten wurde, gestützt.

Die Autokorrelations-Spektroskopie ist eine Methode, die von Runge und Zimmermann vorgeschlagen wurde, um die quantenmechanische Niveau-Abstoßung in inhomogenen Quantenfilmen nachzuweisen. Dazu wird die Energie-Autokorrelation einzelner Lumineszenz-Spektren berechnet und über mehrere Autokorrelationen gemittelt. Wenn es zwischen den Signaturen in den einzelnen Spektren eine Korrelation gibt, führt dies zu einem Signal in dem Autokorrelations-Spektrum. Eine mögliche Ursache für eine Korrelation ist die Niveau-Abstoßung. Allerdings können auch andere Effekte, wie Biexzitonen-Lumineszenz oder anisotrope Monolagen-Inseln, zu einer Korrelation führen. Die Autokorrelations-Spektroskopie alleine erlaubt nur eine Aussage darüber, ob es korrelierte Zustände gibt, und falls ja, über deren energetischen Abstand. Eine eindeutige Identifikation der Ursache ist aber nur im Vergleich mit anderen Messmethoden, die auf die *gleiche* Probe angewandt werden, möglich. Anisotrope Monolagen-Inseln sollten mittels polarisationsaufgelöster Messung nachweisbar sein. Für die Niveau-Abstoßung hingegen existiert derzeit keine direkte Nachweismethode. Obwohl mehrere Autoren Hinweise auf eine Niveau-Abstoßung gefunden haben, steht der eindeutige Nachweis noch aus.

Das Neue in dieser Arbeit ist, dass Autokorrelationsspektren mit einer wesentlich effizienteren experimentellen Methode als bisher gemessen werden konnten. Bei den Messungen am 4,5 nm Film wurde eine Signatur in der Autokorrelation bei 2,75 meV gefunden, also bei ähnlichen Energien, wie sie bereits in anderen Arbeiten veröffentlicht wurden. Da bei der Autokorrelation über eine Fläche von etwa 52  $\mu\text{m}^2$  gemittelt wurde, kann hier eine Aufspaltung durch Monolagen-Insel ausge-

---

geschlossen werden. Die Fläche ist, wegen der neuen Messmethode, wesentlich größer als die Fläche, die bisher mit der Nahfeld-Mikroskopie vermessen wurde, weshalb diese bisher unwidersprochene Interpretation hier ausgeschlossen werden kann. Die Signatur kann am einfachsten durch die Rekombination sowohl aus dem Grundzustand als auch aus einem angeregten Zustand, die an der gleichen Stelle lokalisiert sind, erklärt werden. Allerdings kann eine Niveauabstoßung als Ursache nicht völlig ausgeschlossen werden.

Bei keiner der durchgeführten Messungen konnte eine Signatur bei der Biexziton-Bindungsenergie gefunden werden. Die Ursache hierfür ist vermutlich der mit zunehmender Dichte ansteigende Untergrund.

Zusätzlich zu den orts aufgelösten Messungen wurde die Lumineszenz der homogenen Filme auch zeitaufgelöst gemessen. Dabei haben die beiden Linien eine unterschiedliche Dynamik. Die niederenergetische Linie zeigt, wie für Biexzitonen zu erwarten, eine kürzere Abfallzeit. Es wird aber ein schnellerer Anstieg der Photolumineszenz als bei der Exziton-Linie beobachtet, was dadurch erklärt werden könnte, dass Biexzitonen auch mit größerem  $k$ -Wert rekombinieren können, ein Abkühlen für eine Rekombination also nicht notwendig ist. In jedem Fall ist aber eine schnelle Bildung von Exzitonen Voraussetzung für die Rekombination von Biexzitonen. Hier besteht noch Klärungsbedarf beim Vergleich mit der Theorie.

Eine weitere Möglichkeit zur Untersuchung der räumlich eng begrenzter Phänomene bietet die orts aufgelöste Anrege-Abfrage-Spektroskopie. Sie erlaubt die Untersuchung der raumzeitlichen Dynamik optisch generierter Ladungsträger mit einer Zeitauflösung von 100  $fs$  und einer Ortsauflösung von 1  $\mu m$ . Dabei konnten Verschiebungen von etwa 40  $nm$  nachgewiesen werden. Der Schwerpunkt der Ladungsträgerverteilung lässt sich sogar auf 2  $nm$  genau bestimmen. Eine weitere Steigerung der Ortsauflösung ist durch den Einsatz einer Festkörper-Immersionlinse möglich.

Es zeigt sich, dass die Ausbreitung resonant erzeugter Exzitonen erst für Zeiten größer 20  $ps$  durch die Diffusionsgleichung beschrieben werden kann. Für frühere Zeiten hingegen zeigt sich eine deutliche schnellere Ausbreitung, die mit dem bestehenden Modell nicht befriedigend erklärt werden kann. Weiterführende Untersuchungen dieses Phänomens können zur Zeit aufgrund einer defekten Klimaanlage nicht durchgeführt werden. Die Apparatur eignet sich aber grundsätzlich zum zeitaufgelösten Studium von Spinströmen [Hüb03].

Mit der optische Nahfeld-Mikroskopie wurden erstmals ferromagnetische  $MnAs$ -Cluster untersucht. Dabei konnte das Drehvermögen einzelner Cluster qualitativ nachgewiesen werden. Für eine quantitative Untersuchung ist allerdings eine Verbesserung des Aufbaus nötig. Dies kann beispielsweise durch eine Lock-In-Detektion geschehen. Eine wesentlich höhere Empfindlichkeit bezüglich des Drehvermögens lässt sich durch eine Integration eines Sagnac-Interferometers in den bestehenden Aufbau erreichen. Auch eine gezielte Ausrichtung der Magnetisierung der Cluster

durch externe Magnetfelder ist möglich. Dadurch eröffnet sich ein weites Feld interessanter Experimente an ferromagnetischen Nanostrukturen.

Mittels der in dieser Dissertation realisierten Methoden wurden grundlegende physikalische Eigenschaften von Halbleiterheterostrukturen optisch untersucht. Hierzu wurden mikroskopische Techniken sowohl im Nah- als auch im Fernfeldbereich angewandt und mit hoher Zeitauflösung bis hinunter zu 100 *fs* kombiniert. Die realisierten Aufbauten erlauben sowohl eine umfassende Probencharakterisierung auf einer Längenskala von Bruchteilen einer Wellenlänge als auch die Untersuchung weitergehender Eigenschaften, wie optisches Drehvermögen an neuartigen ferromagnetischen Nanostrukturen einerseits oder ballistischen Ladungsträgertransport andererseits, werden also auch in Zukunft sicher wertvolle experimentelle Ergebnisse liefern können.

# Literaturverzeichnis

- [Abb73] E. ABBE. Beiträge zur Theorie des Mikroskopes und der mikroskopischen Wahrnehmung. *Arch. mikroskop. Anatom.*, **9**: 413, 1873.
- [Ash01] N. W. ASHCROFT und N. D. MERMIN. *Festkörperphysik*. Oldenbourg, München, 2001.
- [Bha97] P. BHATTACHARYA. *Semiconductor Optoelectronic Devices*. Prentice-Hall, Upper Saddle River, New Jersey, 2 Auflage, 1997.
- [Bru94a] K. BRUNNER, G. ABSTREITER, G. BÖHM, G. TRÄNKLE und G. WEIMANN. Sharp-Line Photoluminescence and Two-Photon Absorption of Zero-Dimensional Biexcitons in a GaAs/AlGaAs Structure. *Phys. Rev. Lett.*, **73**(8): 1138, 1994.
- [Bru94b] K. BRUNNER, G. ABSTREITER, G. BÖHM, G. TRÄNKLE und G. WEIMANN. Sharp-line photoluminescence of excitons localized at GaAs/AlGaAs quantum well inhomogeneities. *Appl. Phys. Lett.*, **64**(24): 3320, 1994.
- [Cha88] S. CHARBONNEAU, T. STEINER, M. L. W. THEWALT, E. S. KOTELES, J. Y. CHI und B. ELMAN. Optical investigation of biexcitons and bound excitons in GaAs quantum wells. *Phys. Rev. B*, **38**(5): 3583, 1988.
- [Cin88] R. CINGOLANI, Y. CHEN und K. PLOOG. Biexciton formation in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As multiple quantum wells: An optical investigation. *Phys. Rev. B*, **38**(18): 13478, 1988.
- [Cor96] T. R. CORLE und G. S. KINO. *Confocal Scanning Optical Microscopy and Related Imaging Systems*. Academic Press, San Diego, 1996.
- [Cro02] A. CROTTINI, R. IDRISSEI KAITOUNI, J. STAEHLI, B. DEVEAUD, X. L. WANG und M. OGURA. Level Repulsion of Localised Excitons Observed in Near-Field Photoluminescence Spectra. *phys. stat. sol. (a)*, **190**(3): 631, 2002.

- [Dam90] T. C. DAMEN, J. SHAH, D. Y. OBERLI, D. S. CHEMLA, J. E. CUNNINGHAM und J. M. KUO. Dynamics of exciton formation and relaxation in *GaAs* quantum wells. *Phys. Rev. B*, **42**(12): 7434, 1990.
- [EA93] M. EL ALLALI, C. B. SØRENSEN, E. VEJE und P. TIDEMAND-PETERSSON. Experimental determination of the *GaAs* and *Ga<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>As* band-gap energy dependence on temperature and aluminum mole fraction in the direct band-gap region. *Phys. Rev. B*, **48**(7): 4398, 1993.
- [Ecc91] R. ECCLESTON, R. STROBEL, W. W. RÜHLE, J. KUHL, B. F. FEUERBACHER und K. PLOOG. Exciton dynamics in a *GaAs* quantum well. *Phys. Rev. B*, **44**(3): 1395, 1991.
- [Egg98] G. EGGERS, A. ROSENBERGER, A. MÜNNEMANN, G. GÜNTHERODT und P. FUMAGALLI. Scanning near-field magneto-optic microscopy using illuminated fiber tips. *Ultramicroscopy*, **71**(1-4): 249, 1998.
- [Eut99] A. EUTENEUER. *Exzitonen und Biexzitonen in ungeordneten Halbleiter-Quantenfilmen*. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 1999.
- [Fel87] J. FELDMANN, G. PETER, E. O. GÖBEL, P. DAWSON, K. MOORE, C. FOXON und R. J. ELLIOTT. Linewidth Dependence of Radiative Exciton Lifetimes in Quantum Wells. *Phys. Rev. Lett.*, **59**(20): 2337, 1987.
- [Fel03] A. FELTRIN, R. IDRISSE KAITOUNI, A. CROTTINI, J. L. STAEHLI, B. DEVEAUD, V. SAVONA, X. L. WANG und M. OGURA. Exciton relaxation and level repulsion in quantum wires. *phys. stat. sol. (c)*, **0**(5): 1417, 2003.
- [Fin03] E. FINGER. *Vielteilchenkorrelationen und Unordnung in Halbleiterquantenfilmen*. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2003.
- [Fre98a] G. V. FREYMANN, T. SCHIMMEL und M. WEGENER. Computer simulations: Subwavelength resolution with an apertureless SNOM. *Appl. Phys. A*, **66**(Sup. 1): S939, 1998.
- [Fre98b] G. V. FREYMANN, T. SCHIMMEL, M. WEGENER, B. HANEWINKEL, A. KNORR und S. W. KOCH. Computer Simulations on NSOM: Can Subwavelength Resolution be Obtained Using Uncoated Fiber Probes? *Appl. Phys. Lett.*, **73**(9): 170, 1998.
- [Fre99] G. V. FREYMANN, C. ADELMANN, G. SCHEIBER, T. SCHIMMEL und M. WEGENER. The depolarization near-field scanning optical microscope: comparison of experiment and theory. *Journal of Microscopy*, **194**(Pt. 2/3): 491, 1999.

- [Fre00] G. v. FREYMAN, E. KURTZ, C. KLINGSHIRN und M. WEGENER. Statistical analysis of near-field photoluminescence spektra of single ultrathin layers of *CdSe/ZnSe*. *Appl. Phys. Lett.*, **77**(3): 394, 2000.
- [Fre02] G. v. FREYMAN, U. NEUBERTH, M. DEUBEL, M. WEGENER, G. KHITROVA und H. M. GIBBS. Level repulsion in nanophotoluminescence spectra from single *GaAs* quantum wells. *Phys. Rev. B*, **65**(20): 205327, 2002.
- [Fum98] P. FUMAGALLI, A. ROSENBERGER, G. EGGERS, A. MÜNNEMANN, N. HELD und G. GÜNTHERODT. Quantitative determination of the local Kerr rotation by scanning near-field magneto-optic microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, **72**(22): 2803, 1998.
- [Göb90a] E. O. GÖBEL. Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors. In *Festkörperprobleme - Advances in Solid State Physics*, Band 30. Vieweg, 1990.
- [Göb90b] E. O. GÖBEL und K. PLOOG. Fabrication and Optical Properties of Semiconductor Quantum Wells and Superlattices. *Prog. Quant. Electr.*, **14**: 289, 1990.
- [Ger77] C. GERTHSEN, H. O. KNESER und H. VOGEL. *Physik*. Springer, Berlin, 13 Auflage, 1977.
- [Goo68] J. W. GOODMAN. *Introduction to Fourier Optics*. McGraw-Hill, New York, 1968.
- [Gou79] P. L. GOURLEY und J. P. WOLFE. Thermodynamics of excitonic molecules in silicon. *Phys. Rev. B*, **20**(8): 3319, 1979.
- [Gri92] E. GRILLI, M. GUZZI, R. ZAMBONI und L. PAVESI. High-precision determination of the temperature dependence of the fundamental energy gap in gallium arsenide. *Phys. Rev. B*, **45**(4): 1638, 1992.
- [Gur98] M. GURIOLI, P. BORRI, M. COLOCCI, M. GULIA, F. ROSSI, E. MOLINARI, P. E. SELBMANN und P. LUGLI. Exciton formation and relaxation in *GaAs* epilayers. *Phys. Rev. B*, **58**(20): R13403, 1998.
- [Har02] T. HARTMANN, M. LAMPALZER, P. J. KLAR, W. STOLZ, W. HEIMBRODT, H.-A. KRUG VON NIDDA, A. LOIDL und L. SVISTOV. Ferromagnetic resonance studies of *(Ga, Mn)As* with *MnAs* clusters. *Physica E*, **13**(2-4): 572, 2002.
- [Hau90] H. HAUG und S. W. KOCH. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. World Scientific, Singapore, 1990.

- [Hüb03] J. HÜBNER. *Spineffekte von optisch erzeugten Ladungsträgern in Halbleitern*. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2003.
- [Hil89] H. HILLMER, A. FORCHEL, M. HANSMANN, S. MOROHASHI, E. LOPEZ, H. P. MEIER und K. PLOOG. Optical investigations on the mobility of two-dimensional excitons in  $GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs$  quantum wells. *Phys. Rev. B*, **39**(15): 10901, 1989.
- [HN03] S.-O. HWANG-NOLD. *Ortsaufgelöste Spektroskopie an GaAs-Quantenfilmen*. Diplomarbeit, Philipps-Universität Marburg, 2003.
- [Hoy03] W. HOYER, M. KIRA und S. W. KOCH. Influence of Coulomb and phonon interaction on the exciton formation dynamics in semiconductor heterostructures. *Phys. Rev. B*, **67**(15): 155113, 2003.
- [Iba99] H. IBACH und H. LÜTH. *Festkörperphysik*. Springer, Berlin, 5 Auflage, 1999.
- [Int01] F. INTONTI, V. EMILIANI, C. LIENAU, T. ELSAESSER, V. SAVONA, E. RUNGE, R. ZIMMERMANN, R. NÖTZEL und K. H. PLOOG. Quantum Mechanical Repulsion of Exciton Levels in a Disordered Quantum Well. *Phys. Rev. Lett.*, **87**(7): 076801, 2001.
- [Int02] F. INTONTI, V. EMILIANI, C. LIENAU, T. ELSAESSER, V. SAVONA, E. RUNGE, R. ZIMMERMANN, R. NÖTZEL und K. H. PLOOG. Quantum mechanical repulsion of exciton levels in a disordered quantum well evidenced by near-field spectroscopy. *Physica E*, **13**(2-4): 178, 2002.
- [Kap94] A. KAPITULNIK, J. S. DODGE und M. M. FEJER. High-resolution magneto-optic measurements with a Sagnac interferometer. *J. Appl. Phys.*, **75**(10): 6872, 1994.
- [Kel02] L. KELDYSH. Biexcitons at High Densities. *phys. stat. sol. (b)*, **234**(1): 17, 2002.
- [Kim93] D. W. KIM, Y. A. LEEM, S. D. YOO, S. D. WOO, D. H. LEE und J. C. WOO. Measurement of the exciton binding energy in a narrow  $GaAs - Al_xGa_{1-x}As$  quantum well by photoluminescence excitation spectroscopy. *Phys. Rev. B*, **47**(4): 2042, 1993.
- [Kim94] J. C. KIM, D. R. WAKE und J. P. WOLFE. Thermodynamics of biexcitons in a GaAs quantum well. *Phys. Rev. B*, **50**(20): 15099, 1994.
- [Kir98] M. KIRA, F. JAHNKE und S. W. KOCH. Microscopic Theory of Excitonic Signatures in Semiconductor Photoluminescence. *Phys. Rev. Lett.*, **81**(15): 3263, 1998.



- [Kir01] M. KIRA, W. HOYER, T. STROUCKEN und S. W. KOCH. Exciton Formation in Semiconductors and Influence of Photonic Environment. *Phys. Rev. Lett.*, **87**(17): 176401, 2001.
- [Kit89] C. KITTEL. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg, München, 1989.
- [Ko00] H. J. KO, Y. F. CHEN, Z. ZHU, T. YAO, I. KOBAYASHI und H. UCHIKI. Photoluminescence properties of  $ZnO$  epilayers grown on  $CaF_2(111)$  by plasma assisted molecular beam epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, **76**(14): 1905, 2000.
- [Kov03] J. Z. KOVACS. *Raumzeitliche Dynamik von optischen Anregungen in Halbleitern*. Diplomarbeit, Philipps-Universität Marburg, 2003.
- [Lau93] W. LAUTERBORN, T. KURZ und M. WIESENFELDT. *Kohärente Optik*. Springer, Berlin, D, 1993.
- [Leo88] K. LEO, W. W. RÜHLE und K. PLOOG. Hot-carrier energy-loss rates in  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  quantum wells. *Phys. Rev. B*, **38**(3): 1947, 1988.
- [Leu00] M. LEUSCHNER. *Optische Nahfeldmikroskopie mit geätzten Fasersonden*. Diplomarbeit, Philipps-Universität Marburg, 2000.
- [Lip98] M. LIPPITZ. *Entwicklung und Einsatz eines optischen Nahfeldmikroskopes*. Diplomarbeit, Philipps-Universität Marburg, 1998.
- [Mad82] O. MADELUNG, M. SCHULZ und H. WEISS (Herausgeber). *Landolt-Börnstein: Neue Serie*, Band III/17a. Springer, Berlin, 1982.
- [Man90] S. M. MANSFIELD und G. S. KINO. Solid immersion microscope. *Appl. Phys. Lett.*, **57**(24): 2615, 1990.
- [Mei99] T. MEIER und S. W. KOCH. Exciton versus unbound electron-hole pairs and their influence on exciton bleaching: A model study. *Phys. Rev. B*, **59**(20): 13202, 1999.
- [MP93] J. MARTINEZ-PASTOR, A. VINATTIERI, L. CARRARESI, M. COLOCCI, P. ROUSSIGNOL und G. WEIMANN. Temperature dependence of exciton lifetimes in  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  single quantum wells. *Phys. Rev. B*, **47**(16): 10456, 1993.
- [Naz03] A. M. NAZMUL, S. SUGAHARA und M. TANAKA. Ferromagnetism and high Curie temperature in semiconductor heterostructures with  $Mn$   $\delta$ -doped  $GaAs$  and  $p$ -type selective doping. *Phys. Rev. B*, **67**(24): 241308, 2003.

- [Nol00] W. NOLTING. *Grundkurs Theoretische Physik*, Band 5.1. Vieweg, Braunschweig, 4 Auflage, 2000.
- [Oth98] A. OTHONOS. Probing ultrafast carrier and phonon dynamics in semiconductors. *J. Appl. Phys.*, **83**(4): 1789, 1998.
- [Pet98] B. L. PETERSEN, A. BAUER, G. MEYER, T. CRECELIUS und G. KAINDL. Kerr-rotation imaging in scanning near-field optical microscopy using a modified Sagnac interferometer. *Appl. Phys. Lett.*, **73**(4): 538, 1998.
- [Pey93] N. PEYGHAMBARIAN, S. W. KOCH und A. MYSYROWICZ. *Introduction to Semiconductor Optics*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1993.
- [Phi92] R. T. PHILLIPS, D. J. LOVERING und G. J. DENTON. Biexciton creations and recombination in a GaAs quantum well. *Phys. Rev. B*, **45**(8): 4308, 1992.
- [Phi96] R. T. PHILIPS, G. C. NIXON, T. FUJITA, M. Y. SIMMONS und D. A. RITCHIE. Excitonic Trions in Undoped GaAs Quantum Wells. *Solid State Commun.*, **98**(4): 287, 1996.
- [Päs97] R. PÄSSLER und G. OELGART. Appropriate analytical description of the temperature dependence of exciton peak positions in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As multiple quantum wells and the  $\Gamma_{8v} - \Gamma_{6c}$  gap of GaAs. *J. Appl. Phys.*, **82**(5): 2611, 1997.
- [Päs99] R. PÄSSLER. Parameter Sets Due to Fittings of the Temperature Dependencies of Fundamental Bandgaps in Semiconductors. *phys. stat. sol. (b)*, **216**(2): 975, 1999.
- [Ros02] F. ROSSI und T. KUHN. Theory of ultrafast phenomena in photoexcited semiconductors. *Rev. Mod. Phys.*, **74**(3): 895, 2002.
- [Run98] E. RUNGE und R. ZIMMERMANN. Level repulsion in excitonic spectra of disordered systems and local relaxation kinetics. *Ann. Phys. (Leipzig)*, **7**(5/6): 417, 1998.
- [Sch00] M. SCHÜTTLER. *Optische Nahfeldmikroskopie*. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2000.
- [Ste97] F. STEININGER. *Theorie raum-zeitlicher Dynamik lokalisierter optischer Anregungen in Halbleitern*. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 1997.

- [Ulb73] R. ULBRICH. Energy Relaxation of Photoexcited Hot Electrons in GaAs. *Phys. Rev.* **B**, **8**(12): 5719, 1973.
- [Vig92] J. M. VIGOUREUX und D. COURJON. Detection of nonradiative fields in light of the Heisenberg uncertainty principle and the Rayleigh criterion. *Appl. Opt.*, **31**(16): 3170, 1992.
- [Vol95] M. VOLK, S. LUTGEN, T. MARSCHNER, W. STOLZ, E. O. GÖBEL, P. C. M. CHRISTIANEN und J. C. MAAN. Carrier effective masses in symmetrically strained (GaIn)As/Ga(PAs) multiple-quantum-well structures. *Phys. Rev.* **B**, **52**(15): 11096, 1995.
- [Vol99a] M. VOLLMER. *Ortsaufgelöste ultraschnelle Ladungsträgerdynamik in Halbleiterquantenfilmen*. Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 1999.
- [Vol99b] M. VOLLMER, H. GIESSEN, W. STOLZ, W. W. RÜHLE, L. GHISLAIN und V. ELINGS. Ultrafast nonlinear subwavelength solid immersion spectroscopy at T=8 K. *Appl. Phys. Lett.*, **74**(13): 1791, 1999.
- [Vur01] I. VURGAFTMAN, J. R. MEYER und L. R. RAM-MOHAN. Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys. *J. Appl. Phys.*, **89**(11): 5815, 2001.
- [Yu01] P. Y. YU und M. CARDONA. *Fundamentals of Semiconductors*. Springer, Berlin, 3 Auflage, 2001.



# Wissenschaftlicher Werdegang

10/1990—09/1995	Studium der Physik an der Technischen Hochschule Darmstadt
10/1995—04/2000	Studium der Physik an der Philipps-Universität Marburg mit dem Abschluss als Diplom-Physiker. Das Thema der Diplomarbeit ist: „Optische Nahfeldmikroskopie mit geätzten Faser-sonden“
Ab 05/2000	Promotion am Fachbereich Physik der Philipps-Universität Marburg.

