# Magnetooptische Untersuchungen an Halbleitersystemen mit reduzierter Dimensionalität

Von der Universität Bayreuth zur Erlangung des Grades eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.) genehmigte Abhandlung

von

### Jens Fürst

geboren am 13. Januar 1976 in Marktredwitz

1.	Gutachter:	Prof. Dr. H. Pascher
2.	Gutachter:	Prof. Dr. A. Seilmeier

Tag der Einreichung:	03.05.2004
Tag des Kolloquiums:	19.07.2004

## Inhaltsverzeichnis

Т	Ein	Einleitung							
<b>2</b>	Gru	indlage	en zu den untersuchten Halbleiterstrukturen	4					
2.1 Das Materialsystem der III-V Halbleiter									
	2.2	2.2 Das Materialsystem der IV-VI Halbleiter							
		2.2.1	Eigenschaften von PbTe und PbSe	7					
		2.2.2	Eigenschaften von EuTe	12					
		2.2.3	Eigenschaften von $Pb_{1-x}Eu_xTe$	13					
	2.3	Strukt	urierte Halbleiter	14					
		2.3.1	Zweidimensionale Systeme	16					
		2.3.2	Nulldimensionale Systeme	17					
		2.3.3	Entstehung von Quantenpunkten	18					
			2.3.3.1 InAs Quantenpunkte	20					
			2.3.3.2 PbSe Quantenpunkte	21					
	2.4	Bragg	- Spiegel und vertikale Resonatorstrukturen	25					
3	Gru	indlage	en der experimentellen Methoden	32					
3	<b>Gru</b> 3.1	<b>ındlag</b> Photo	en der experimentellen Methoden	<b>32</b> 32					
3	<b>Gru</b> 3.1 3.2	<b>ındlage</b> Photo Optise	en der experimentellen Methoden lumineszenz	<b>32</b> 32 36					
3	<b>Gru</b> 3.1 3.2	ndlage Photo Optise 3.2.1	en der experimentellen Methoden lumineszenz	<b>32</b> 32 36					
3	<b>Gru</b> 3.1 3.2	Photo Optiso 3.2.1	en der experimentellen Methoden lumineszenz	<b>32</b> 32 36 39					
3	<b>Gr</b> u 3.1 3.2	Photo Optiso 3.2.1 3.2.2	en der experimentellen Methoden lumineszenz	<ul> <li>32</li> <li>32</li> <li>36</li> <li>39</li> <li>42</li> </ul>					
3	Gru 3.1 3.2	Photo Optiso 3.2.1 3.2.2 3.2.3	en der experimentellen Methoden lumineszenz	<ul> <li>32</li> <li>32</li> <li>36</li> <li>39</li> <li>42</li> <li>42</li> </ul>					
3	Gru 3.1 3.2	Photo Optise 3.2.1 3.2.2 3.2.3 3.2.4	en der experimentellen Methoden lumineszenz	<ul> <li>32</li> <li>32</li> <li>36</li> <li>39</li> <li>42</li> <li>42</li> <li>46</li> </ul>					
3	Gru 3.1 3.2 3.3	Photo Optise 3.2.1 3.2.2 3.2.3 3.2.4 Magne	en der experimentellen Methoden lumineszenz	<ul> <li>32</li> <li>32</li> <li>36</li> <li>39</li> <li>42</li> <li>42</li> <li>46</li> <li>49</li> </ul>					
3	Gru 3.1 3.2 3.3 3.4	Photo Optise 3.2.1 3.2.2 3.2.3 3.2.4 Magne Kohär	en der experimentellen Methoden lumineszenz	<ul> <li>32</li> <li>32</li> <li>36</li> <li>39</li> <li>42</li> <li>42</li> <li>46</li> <li>49</li> <li>51</li> </ul>					
3	Gru 3.1 3.2 3.3 3.4 Exp	Photo Optise 3.2.1 3.2.2 3.2.3 3.2.4 Magne Kohär	en der experimentellen Methoden lumineszenz	<ul> <li>32</li> <li>32</li> <li>36</li> <li>39</li> <li>42</li> <li>42</li> <li>46</li> <li>49</li> <li>51</li> <li>55</li> </ul>					
3	Gru 3.1 3.2 3.3 3.4 Exp 4.1	Photo Optise 3.2.1 3.2.2 3.2.3 3.2.4 Magne Kohär Derime Photo	en der experimentellen Methoden lumineszenz	<ul> <li>32</li> <li>32</li> <li>36</li> <li>39</li> <li>42</li> <li>42</li> <li>46</li> <li>49</li> <li>51</li> <li>55</li> <li>55</li> </ul>					

		4.1.2 Vorwärtsgeometrie $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 5$	6
		4.1.3 Pumpstrahlungsquellen	7
		$4.1.3.1  \text{Laserdioden}  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  5$	7
		4.1.3.2 Nd:YAG Laser $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 5$	8
		4.1.3.3 Ramanzelle $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 5$	8
		$4.1.3.4  \text{CO- Laser}  \ldots  \ldots  \ldots  \ldots  \ldots  \ldots  \ldots  6$	0
	4.2	Hanle-Effekt	1
	4.3	Optisch detektierte Kernspinresonanz	3
	4.4	Magnetotransmissionsmessung	5
	4.5	Kohärente Ramanspektroskopie	7
<b>5</b>	Exp	perimentelle Resultate und deren Deutung:	
	InA	s Quantenpunkte 7	0
	5.1	Aufbau der untersuchten InAs Quantenpunktproben	0
		5.1.1 Probenserie A - InAs Quantenpunkte in $In_{0.12}Ga_{0.88}As$ 7	0
		5.1.2 Probenserie B - InGaAs Quantenpunkte in GaAs 7	1
		5.1.3 Probenserie C - InAs Quantenpunkte in $Al_x Ga_{1-x} As$ 7	2
	5.2	Photolumineszenz	3
	5.3	Hanle-Effekt an InAs Quantenpunkten	7
		5.3.1 Probenserie A - InAs Quantenpunkte in $Al_{0.12}Ga_{0.88}As$ 7	8
		5.3.2 Probenserie B - InGaAs Quantenpunkte in GaAs 8	7
		5.3.3 Probenserie C - InAs Quantenpunkte in $Al_x Ga_{1-x} As$ 9	1
	5.4	ODNMR Messungen an InAs Quantenpunkten in AlAs Matrix 9	7
	5.5	Zusammenfassung der Resultate an InAs Quantenpunkten 9	9
6	Exp	perimentelle Resultate und deren Deutung:	
	PbS	Se- Quantenpunkte und vertikal emittierende Resonatorstruk-	
	ture	en 10	1
	6.1	Untersuchung des Materialsystems $PbSe_xTe_{1-x}$	2
	6.2	Vergleich von vertikal emittierenden Laserstrukturen mit null-, zwei-	
		und dreidimensionalen Systemen in der aktiven Zone $\ .\ .\ .\ .\ .$ . 11	0
	6.3	Vertikal emittierende Laserstrukturen im kontinuierlichen Betrieb $~$ . 12	1
	6.4	Gepulste und kontinuierliche Emission aus VCSEL Strukturen $\ .\ .\ .\ 13$	1
	6.5	Vertikal emittierende Laserstrukturen im Magnetfeld	5

7	Zusammenfassung	144
8	Abstract	147
Li	teraturverzeichnis	149

\_\_\_\_\_

### 1 Einleitung

Eine der wichtigsten Motivationen zur Entwicklung der Quantenmechanik war es, die Rätsel, welche mit der Deutung atomarer Spektren verbunden waren, zu lüften. Niels Bohr enträtselte diese Mysterien durch sein Postulat, daß das Elektron nur auf bestimmten Umlaufbahnen mit diskreten Energien um den Atomkern kreisen kann ohne, wie von der klassischen Elektrodynamik gefordert, Energie abzustrahlen. Vor etwa 10 Jahren gelang es Dank der rasanten Entwicklung in der Halbleitertechnologie erstmals derart kleine Strukturen herzustellen, daß sich in ihnen statt Energiebändern ein diskretes Energiespektrum ergibt, das auch experimentell zugänglich ist. Die Probenqualität nimmt seither von Jahr zu Jahr zu und offenbart eine Fülle von neuen physikalischen Beobachtungen an diesen künstlichen Atomen.

Solche künstlichen Atome, im weiteren Verlauf als Quantenpunkte bezeichnet, sind kleine Objekte mit einer Kantenlänge von typischerweise 100 *nm* innerhalb eines halbleitenden Materials, welche eine gewisse Zahl von Ladungsträgern enthalten können. Im Atom werden die Elektronen durch die Coulombwechselwirkung mit dem positiv geladenen Kern gehalten. In einem Quantenpunkt erfolgt die Bindung im Allgemeinen durch einen Potentialtopf, der durch unterschiedliche Energielücken von Quantenpunkt- und Einbettmaterial verursacht wird. In diesem Potential nehmen die Elektronen den energetisch niedrigsten Zustand ein. Damit läßt sich ein Quantenpunkt als winziges Labor betrachten, in dem sich sowohl quantenmechanische Effekte als auch Wechselwirkungen der Ladungsträger untereinander untersuchen lassen.

Der Abstand der Atome in einem Halbleiterkristall beträgt typischerweise 0.3 - 0.4 nm. Die Ladungsträger in einem Quantenpunkt befinden sich in einem Objekt von ca. 100 nm Durchmesser. Damit enthält ein Quantenpunkt eine Vielzahl von realen Atomen. Die Quantentheorie der Festkörper erklärt, warum ein Teil der Ladungsträger nur durch die Potentialbarriere des Quantenpunktes beeinflußt und nicht von einzelnen Atomen gebunden wird. Danach verhalten sich die Ladungsträger wie freie Teilchen, aber mit unterschiedlichen Massen [1]. Beispielsweise scheinen die Elektronen in dem Halbleiter GaAs nur 7 % der Masse eines freien Elektrons zu besitzen.

In der klassischen Halbleiterphysik lassen sich die beobachteten Phänomene durch die kollektive Bewegung einer großen Zahl von Elektronen erklären. Da die erzeugten Strukturen allerdings immer kleiner werden, ist diese Betrachtung in zunehmendem Maße nicht mehr gültig. In der Tat ist man heute in der Lage, elektronische Bauteile herzustellen, deren Eigenschaften auf der Bewegung einzelner Elektronen beruhen und dies sogar bei Raumtemperatur [2]. Die Herstellung von Bauteilen dieser kleinen Größenordnung mit bestimmten reproduzierbaren elektronischen Eigenschaften wird in Zukunft eine immense technologische Herausforderung darstellen.

In der vorliegenden Arbeit wird die spektroskopische Untersuchung von Quantenpunkten im Mittelpunkt stehen. Dabei wurden sowohl InAs als auch PbSe Quantenpunkte mit Hilfe geeigneter magnetooptischer Verfahren vermessen. Die Motivation zur Untersuchung von Quantenpunkten liegt z.B. in ihrer möglichen Verwendung als Speicherzellen eines Quantencomputers ("qubit"). Eine weitere Möglichkeit besteht darin, die elektrische Ladung als Informationsträger in herkömmlichen Rechnern durch Spins zu ersetzen. Dabei ist eine möglichst lange Spinlebenszeit der Elektronen wünschenswert. Als Basis für die Auswahl geeigneter Materialien wurden in dieser Arbeit die Spinlebensdauern der Elektronen in InAs und InGaAs Quantenpunkten mit Hilfe des Hanle- Effektes untersucht.

Aus der Untersuchung von PbSe Quantenpunkten, die zur Erhöhung der spektroskopischen Empfindlichkeit in Mikroresonatoren eingebracht waren, ergab sich ein anwendungsnahes Projekt, nämlich die Untersuchung des Emissionsverhaltens vertikal emittierender Laserstrukturen, basierend auf dem Materialsystem der IV-VI Halbleiter. Aus der Weiterentwicklung dieser Art von Strahlungsquellen erhofft man sich eine vertikal emittierende kohärente Lichtquelle für den mittleren infraroten Spektralbereich zu schaffen.

Zum besseren Verständnis der untersuchten Phänomene gibt Kapitel 2 eine Einführung in die Materialsysteme der III-V und IV-VI Halbleiter. Als typische Vertreter der IV-VI Halbleiter werden PbTe, PbSe, EuTe und PbEuTe in eigenen Kapiteln beschrieben. Weiterhin findet sich hier die Erklärung zur Entstehung von niedrigdimensionalen Strukturen bis hin zum InAs bzw. PbSe Quantenpunkt. Am Ende von Kapitel 2 wird eine Einführung in die Thematik der Bragg- Spiegel und vertikalen Resonatorstrukturen gegeben.

In Kapitel 3 werden die theoretischen Grundlagen der experimentellen Untersu-

 $chungsmethoden\ kurz\ zusammengefaßt.$ 

Kapitel 4 präsentiert die experimentellen Aufbauten.

Die Resultate und Deutungen der Messungen an InAs Quantenpunkten werden in Kapitel 5 beschrieben.

Kapitel 6 zeigt die erhaltenen Ergebnisse an PbSe Quantenpunkten und vertikalen Resonatorstrukturen.

#### 2 Grundlagen zu den untersuchten Halbleiterstrukturen

#### 2.1 Das Materialsystem der III-V Halbleiter

An dieser Stelle sollen die grundlegenden Eigenschaften der III-V Halbleiter, die zum Verständnis der folgenden Kapitel nötig sind, zusammengefasst werden.

GaAs, InAs, InGaAs und AlGaAs mit einem Aluminiumgehalt von weniger als 45% besitzen eine direkte Energielücke am  $\Gamma$ - Punkt der Brillouinzone. Zur Beschreibung der Transporteigenschaften und optischen Eigenschaften bei Photonenenergien in der Nähe der Energielücke genügt es meist, vier Bänder, welche in erster Näherung parabolisch angenommen werden können, zu betrachten. Das Leitungsband (abgekürzt: cb) ist mit dem Gesamtdrehimpuls j = 1/2 s- artig und ohne Magnetfeld zweifach entartet. Dagegen ist das Valenzband (abgekürzt: vb) p- artig. Für den Bahndrehimpuls l = 1 erhählt man j = 1/2 und j = 3/2. Das Band mit j = 1/2 ist durch die Spin- Bahn Wechselwirkung gegenüber denen mit j = 3/2 um den Energiebetrag  $\Delta$  abgesenkt ("split- of" Valenzband, abgekürzt: so). Zu j = 3/2 gibt es



Abbildung 2.1: Bandstruktur eines strukturierten III-V Halbleiters.

die Bänder mit  $m_j = \pm 1/2$  (leichte Löcher, abgekürzt: lh) und  $m_j = \pm 3/2$  (schwere Löcher, abgekürzt: hh). Im dreidimensionalen Kristall sind die Bänder der leichten und schweren Löcher bei  $\vec{k} = 0$  entartet. Diese Entartung kann durch Quantisierungseffekte in strukturierten Materialien aufgehoben werden (siehe Abb. 2.1). Die Entartung der Zustände mit  $m_j = \pm 1/2$  bzw.  $m_j = \pm 3/2$  wird durch ein Magnetfeld aufgehoben.

In dieser Arbeit wurden ausnahmslos strukturierte III-V Halbleiterproben, insbesondere Quantenpunkte untersucht (eine ausführliche Beschreibung findet sich in Kapitel 2.3.3.1). Bei dem Wachstum solch strukturierter Halbleiter werden während der Herstellung verschiedene Halbleitermaterialien auf ein Substrat aufgewachsen. Aufgrund der unterschiedlichen Energielücken der Materialien entstehen je nach Geometrie der Srukturen wahlweise Quantentröge, Quantendrähte oder Quantenpunkte. In einem Quantentrog ist die freie Bewegung der Ladungsträger in eine, in Quantendrähten in zwei und in Quantenpunkten in drei Raumrichtungen eingeschränkt. Dabei entstehen quantisierte Energieniveaus, wenn die Breite der entstandenen Struktur in der Größenordnung der de- Broglie- Wellenlänge der freien Ladungsträger liegt. In die Berechnung dieser quantisierten Niveaus geht die effek-



Abbildung 2.2: (a) Bandstruktur von GaAs und (b) InAs (aus [3]).

tive Masse der Ladungsträger ein. Damit sind die Energien für leichte und schwere Löcher aufgrund ihrer unterschiedlichen effektiven Massen verschieden. Deswegen wird deren energetische Entartung am  $\Gamma$ - Punkt der Brillouinzone aufgehoben, wie in Abb. 2.1 zu sehen ist. Der energetische Abstand, von lh und hh wird wie in der Abbildung gezeigt mit  $\delta$  bezeichnet. Der wohl bekannteste Vertreter der III-V Halbleiter ist GaAs, dessen Bandstruktur in Abb. 2.2 (a) gezeigt wird. Die direkte Energielücke am  $\Gamma$ - Punkt der Brillouinzone beträgt 1.52 eV bei einer Temperatur von 4.2 K.

Die in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkte bestehen aus InAs, dessen fundamentale direkte Energielücke bei  $4.2 \ K \ 0.42 \ eV$  beträgt. Abbildung 2.2 (b) zeigt die Bandstruktur dieses Halbleiters. Die an den InAs Quantenpunkten beobachtete Photolumineszenz liegt bei 1.8 K je nach Probe zwischen 0.8 eV und 1.3 eV. Damit befindet sich der kleinste energetische Abstand der quantisierten Zustände in Leitungs- und Valenzband zwischen den Bandlücken von GaAs und InAs.

#### 2.2 Das Materialsystem der IV-VI Halbleiter

Die untersuchten Halbleiterproben bestehen aus den IV-VI Verbindungen PbSe, PbTe, den ternären Legierungen PbSe<sub>x</sub>Te<sub>1-x</sub> und Pb<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>Te, sowie dem seltenen Erd- Chalkogenid EuTe. Bis zum heutigen Tag sind diese Materialien, verglichen mit III-V und II-VI Halbleitern weniger gut bekannt. PbTe und PbSe sind, zusammen mit PbS die wichtigsten Vertreter der Bleisalze oder Bleichalkogenide. Die Energielücke dieser IV-VI Halbleiter liegt bei Raumtemperatur zwischen 278 und 410 meV, weshalb sie auch als Halbleiter mit kleiner Energielücke ("narrow gap semiconductor") bekannt sind. Aus diesem Grund sind sie für technologische Anwendungen im mittleren Infraroten gefragt. Von wissenschaftlicher Seite gesehen sind die Bleichalkogenide aufgrund der folgenden Charakteristika sehr interessant: Das Valenzbandmaximum und das Leitungsbandminimum befinden sich am L-

Das Valenzbandmaximum und das Leitungsbandminimum befinden sich am L-Punkt der Brillouinzone, während die direkte Energielücke in III-V und II-VI Halbleitern am Γ-Punkt liegt.

Für die Energielücke gilt:  $E_g(PbS) > E_g(PbTe) > E_g(PbSe)$ . Dies ist ungewöhnlich, da in II-VI und III-V Halbleitern die Energielücke monoton mit der Ordnungszahl des Anions abnimmt.

Die Energielücke zeigt einen negativen Druckkoeffizienten, d.h. sie nimmt im Gegensatz zu III-V und II-VI Halbleitern mit steigendem Druck ab.

Die Energielücke  $E_g(x)$  eines Mischkristalls der Form  $A_{1-x}B_x$  wird durch die Gleichung  $E_g(x) = (1 - x)E_g(A) + xE_g(B) - bx(1 - x)$  beschrieben. Dabei bezeichnet  $E_g(A)$  bzw.  $E_g(B)$  die Energielücken der reinen Volumenhalbleiter und b den optischen Biegekoeffizienten. Für alle Halbleiter mit Zinkblendestruktur und direkter Energielücke ist b > 0, aber für das System  $PbSe_xTe_{1-x}$  ist b negativ.

Eine weitere Besonderheit der Bleisalze ist ihre hohe Dielektrizitätskonstante [4], speziell die statische Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_r(0)$ . Für PbTe erhält man bei einer Temperatur von 4 K einen Wert für  $\epsilon_r(0)$  von 1350 und für PbSe von 280. Als Folge dieser hohen Dielektrizitätskonstanten wird die Streuung von Ladungsträgern an ionisierten Störstellen effektiv abgeschirmt [5]. So liegt die Ladungsträgerbeweglichkeit in PbTe bei tiefen Temperaturen in der Größenordnung von  $10^6 \ cm^2/Vs$  [6]. Die IV-VI Halbleiter sind aufgrund dieses effektiven Abschirmmechanismus gegen Defekte, die beim Herstellungsprozess unabdingbar sind, relativ unempfindlich [5]. Weiterhin ist die Exzitonenbindungsenergie, welche indirekt proportional zur Quadratwurzel von  $\epsilon_r(0)$  ist, selbst bei niedrigen Temperaturen klein, verglichen mit der thermischen Energie  $k_BT$ . Im Gegensatz zu anderen Halbleitern spielen hiermit Exzitonen keine entscheidende Rolle. Eine weitere Konsequenz des hohen Wertes von  $\epsilon_r(0)$  ist, daß selbst bei tiefen Temperaturen oder hohen Magnetfeldern kein Ausfrieren von Ladungsträgern beobachtbar ist [7].

Wegen der hohen dielektrischen Konstante  $\epsilon_{\infty}$  ist der Brechungsindex der IV-VI Halbleiter höher als für andere Halbleiter [8, 9]. Als Folge der starken Zunahme der Energielücke mit steigender Temperatur nimmt der Brechungsindex mit fallender Temperatur zu.

#### 2.2.1 Eigenschaften von PbTe und PbSe

Die Bleichalkogenide kristallisieren in der kubischen Kochsalzstruktur (NaCl-Struktur). Als ein wesentliches Charakteristikum besitzen sie eine direkte Energielücke an den L- Punkten der Brillouinzone. Da vier äquivalente < 111 >- Kristallrichtungen und damit vier äquivalente Bandextrema an den L- Punkten existieren, zählen die Bleisalze zu den Vieltalhalbleitern. Die Fermiflächen (die Flächen konstanter Energie) des Leitungs- und Valenzbandes an diesen Punkten sind in guter Näherung prolate Rotationsellipsoide mit den Hauptachsen in < 111 >- Richtungen. Abbildung 2.3 zeigt die berechnete Bandstruktur der Bleisalze nach [10]. Publikationen zur genauen Berechnung der elektronischen Bandstruktur in der Umgebung des L-Punktes und der im Magnetfeld auftretenden Landau- und Spinniveaus finden sich von Michell und Wallis [11], Bernick und Kleinmann [12], Dimmock [13], Adler *et* 



Abbildung 2.3: Berechnete Bandstruktur der Bleisalze nach [10].

al. [14], Burkhard *et al.* [15] und Bauer *et al.* [16]. In all diesen Arbeiten kommt zur Berechnung der Bandstruktur ein  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  - Modell unter Einbeziehung der sechs Bänder nahe der Energielücke zum Einsatz. Alle anderen Bänder sind, wie in Abb. 2.3 zu erkennen ist, energetisch weit entfernt und werden deshalb vernachlässigt. Wie bereits erwähnt, ist die Energielücke der Bleisalze sehr klein. Damit spielt die Wechselwirkung der Bänder untereinander eine entscheidende Rolle und wird für das unterste Leitungsband und das oberste Valenzband exakt in der Berechnung berücksichtigt. Die Wechselwirkung der vier Fernbänder wird durch Störungsrechnung bis zur Ordnung  $\vec{k}^2$  Rechnung getragen. Die stationäre Schrödingergleichung für ein Elektron im Halbleiter unter Einbeziehung eines externen Magnetfeldes, repräsentiert durch das Vektorpotential  $\vec{A}$ , lautet:

$$\left(\frac{1}{2m_0}\left(\vec{p} + e\vec{A}\right)^2 + V_0(\vec{r}) + \hat{H}_{LS}\right)\Psi = E\Psi \quad .$$
(2.1)

Dabei bezeichnen  $V_0(\vec{r})$  das gitterperiodische Potential des Kristalls und  $\hat{H}_{LS}$  die Spin- Bahn- Wechselwirkung. Die anderen Symbole werden wie üblich verwendet. Unter Verwendung der  $\vec{k} \cdot \vec{p}$  - Theorie nach Michell und Wallis [11] erhält man mit Gl. 2.1 einen Hamiltonoperator der als 4x4-Matrix darstellbar ist. Die Eigenwerte dieser Matrix beschreiben die Bandstruktur nahe der Bandlücke am L- Punkt der Brillouinzone unter Berücksichtigung des Einflusses eines Magnetfeldes. Eine ausführlichere Darstellung dieser Rechnung findet man beispielsweise in [16]. In das soeben beschriebene Modell gehen folgende 11 Parameter ein. Diese unterteilen sich in **3 Nahbandparameter**  $E_q$  Energielücke

 $P_{\parallel}, P_{\perp}$  Interbandmatrix elemente der Zweibandwechselwirkung parallel und senkrecht zur [111]- Richtung

#### sowie 8 Fernbandparameter

- $m_{l,t}^{\pm}$  Fernbandbeiträge zu den effektiven Massen in Leitungs- (-) und Valenzband (+) jeweils parallel (l) und senkrecht (t) zur [111]- Richtung
- $g_{l,t}^{\pm}$  Fernbandbeiträge zu den effektiven g-Faktoren in Leitungs- (-) und Valenzband (+) jeweils parallel (l) und senkrecht (t) zur [111]- Richtung.

Die soeben beschriebenen Parameter kann man durch Anpassungsrechnungen an experimentell ermittelte Werte der Spinaufspaltung und der Interbandübergangsenergien im Magnetfeld erhalten. Für PbTe und PbSe wurden die Daten zur Spinaufspaltung mittels kohärenter Ramanstreuung und die Interbandenergien aus Magnetotransmissionsexperimenten bestimmt, wie in [17, 18] beschrieben wird. Die erhaltenen Resultate für PbTe und PbSe bei einer Temperatur von 1.8 K sind in Tab. 2.1 zusammengefaßt.

Tabelle 2.1: Bandparameter für PbTe und PbSe bei einer Temperatur von 1.8 K nach [17, 18].

	$E_g$	$\frac{2P_{\perp}^2}{m_0}$	$\frac{2P_{\parallel}^2}{m_0}$	$\frac{m_t^+}{m_0}$	$\frac{m_l^+}{m_0}$	$\frac{m_t^-}{m_0}$	$\frac{m_l^-}{m_0}$	$g_t^+$	$g_l^+$	$g_t^-$	$g_l^-$
	(meV)	(eV)	(eV)								
PbTe	189.7	6.02	0.52	-0.1	-0.92	0.06	0.51	4.4	-2.6	-1.4	1.7
	$\pm 0.2$	$\pm 0.05$	$\pm 0.02$	$\pm 0.2$	$\pm 0.09$	$\pm 0.2$	$\pm 0.06$	$\pm 0.2$	$\pm 0.1$	$\pm 0.2$	$\pm 0.2$
PbSe	146.3	3.6	1.98	-0.29	-0.37	0.27	0.95	5.4	7.3	-4.0	-8.1
	$\pm 0.3$	$\pm 0.1$	$\pm 0.08$	$\pm 0.05$	$\pm 0.09$	$\pm 0.05$	$\pm 0.13$	$\pm 1$	$\pm 1$	$\pm 1$	$\pm 1$

Im Allgemeinen erfolgt die Berechnung der Energieeigenwerte des Hamiltonoperators numerisch. Für den Fall von verschwindendem Magnetfeld B = 0 erhält man durch analytisches Diagonalisieren des Hamiltonoperators nach [19] die implizite Gleichung

$$\left(\frac{E_g}{2} + \frac{\hbar^2 k_t^2}{2m_t^-} + \frac{\hbar^2 k_l^2}{2m_l^-} - E(\vec{k})\right) \left(-\frac{E_g}{2} + \frac{\hbar^2 k_t^2}{2m_t^+} + \frac{\hbar^2 k_l^2}{2m_l^+} - E(\vec{k})\right) = \frac{\hbar^2}{m^2} \left(P_t^2 k_t^2 + P_l^2 k_l^2\right)$$
(2.2)

für die Energieeigenwerte  $E(\vec{k})$ .  $k_l$  bezeichnet hierbei die Komponente des  $\vec{k}$ - Vektors in Richtung der Hauptachse eines Ellipsoids konstanter Energie am *L*- Punkt und  $k_t$  die dazu senkrechte Komponente. Zur Veranschaulichung zeigt Abb. 2.4 die erste



Abbildung 2.4: Erste Brillouinzone der Bleisalze. Mit eingezeichnet sind die Flächen konstanter Energie an den *L*- Punkten (aus [5]).

Brillouinzone der Bleisalze mit den Fermiflächen an den *L*- Punkten. Für die effektiven Bandkantenmassen des obersten Valenzbandes und des untersten Leitungsbandes erhält man in parabolischer Näherung nach Gl. 2.2:

$$\frac{m_0}{m_{t,l}^{+,-}} = \pm \frac{2P_{\perp,\parallel}^2}{m_0 E_g} + \frac{m_0}{m_{t,l}^{-,+}} \quad . \tag{2.3}$$

Hierbei bezeichnet das Vorzeichen + das Leitungsband und – das Valenzband. Somit lassen sich die Bandkantenmassen von PbSe und PbTe berechnen und man erhält die in Tab. 2.2 angegebenen Größen. Wie zu erkennen ist, sind die Unterschiede zwischen den Werten des Valenz- und Leitungsbands relativ gering und werden durch die Beiträge der Fernbänder bestimmt. Zu bemerken ist, daß die Anisotropie, gegeben durch den Quotienten von longitudinaler zu transversaler Masse, bei PbTe deutlich größer als bei PbSe ist. Weiterhin ist für PbTe der Beitrag der Fernbänder zu den Massen mit etwa 20% relativ groß, während die g- Faktoren praktisch nur durch die Zweiband- Wechselwirkung bestimmt werden. In PbSe ist dies umgekehrt.

	$\frac{m_t^+}{m_0}$	$\frac{m_l^+}{m_0}$	$\frac{m_t^-}{m_0}$	$\frac{m_l^-}{m_0}$
PbTe	0.021	0.213	-0.024	-0.263
PbSe	0.035	0.064	-0.036	-0.062

Tabelle 2.2: Bandkantenwerte der effektiven Massen für PbTe und PbSe.

Sämtliche in dieser Arbeit untersuchten IV-VI Strukturen sind auf (111)- orientiertes BaF<sub>2</sub> Substrat aufgewachsen. Die Gitterkonstante von BaF<sub>2</sub> ist mit 0.62 nm jener der Bleisalze sehr ähnlich, was Verspannungen zwischen den Materialien klein hält. Weiterhin ist BaF<sub>2</sub> elektrisch isolierend und in einem spektralen Bereich von 150 nm bis 15  $\mu$ m optisch transparent. Aufgrund der Orientierung des Substrates ist in den Übergitter- und Quantentopfstrukturen die effektive Masse längs der [111]-Richtung zur Berechnung der Quantisierungsenergien wichtig. Anhand von Abb. 2.4 erkennt man, daß eines der vier Täler mit der großen Halbachse parallel zur Wachstumsrichtung orientiert ist. Man nennt dieses Tal 0<sup>0</sup>- Tal oder auch gerades Tal bzw. [111]- Tal. Die Hauptachsen der drei anderen Täler bilden mit der Wachstumsrichtung einen Winkel von 70.53<sup>0</sup>. Diese Täler nennt man 70<sup>0</sup>- Täler, schräge Täler oder < 111 >- Täler. Damit sind je zwei Arten von Elektronen und Löchern für die Bewegung in Wachstumsrichtung zu betrachten, deren effektive Massen sich durch Projektion auf die [111]- Richtung ergeben. Man erhält

$$m_{0^0} = m_l \quad \text{und} \quad m_{70.53^0} = \frac{9m_l m_t}{8m_l + m_t} \quad .$$
 (2.4)

Für die Temperaturabhängigkeit der Energielücke im Bereich von 0 bis 300 K erhält man nach [20] für PbSe

$$E_g(T) = 125 + \sqrt{400 + 0.256 \cdot T(K)^2} \quad meV \tag{2.5}$$

und für PbTe

$$E_g(T) = 171.1 + \sqrt{12.8^2 + 0.19 \cdot (T(K) + 20)^2} \quad meV \quad . \tag{2.6}$$

Wie aus den Gln. 2.5 und 2.6 zu erkennen ist, nimmt die Energielücke mit steigender Temperatur zu. Dieser positive Temperaturkoeffizient steht im Gegensatz zu der mit steigender Temperatur kleiner werdenden Energielücke der bekannten II-VI, III-V und Gruppe IV Halbleiter und gehört zu den Besonderheiten der Bleisalze.

#### 2.2.2 Eigenschaften von EuTe

Wie PbTe, PbSe und EuSe kristallisiert auch EuTe in der Kochsalzstruktur. Die Bindung von EuTe ist von stark ionischem Eu<sup>2+</sup>Te<sup>2-</sup> Charakter. Allgemein gelten die Eu- Monochalkogenide EuX (X = Te, Se, O, S) als typische Modellsubstanzen für das klassische Heisenbergmodell der Austauschwechselwirkung zwischen lokalisierten magnetischen Momenten. In EuX stammen diese magnetischen Momente von der halbgefüllten Eu<sup>2+</sup> 4f Schale mit einem Gesamtspin von  $\frac{7}{2}$ . Aufgrund des unterschiedlichen Vorzeichens der Austauschwechselwirkung mit den nächsten und übernächsten Nachbarn (Austauschintegrale  $J_1$  bzw.  $J_2$ ) und des dominanten negativen Wertes von  $J_2$  ist EuTe ein Antiferromagnet vom Typ II (AFII). Abbildung 2.5 zeigt die magnetische AFII Struktur von EuTe, wobei nur die interessierenden Eu<sup>2+</sup>- Ionen eingezeichnet sind. Man erkennt ferromagnetische Ordnung innerhalb



Abbildung 2.5: Antiferromagnetische Ordnung der Eu<sup>2+</sup>- Ionen in EuTe (Antiferromagnet Typ II, MnO). Die Te<sup>2–</sup>- Ionen sind nicht gezeigt (aus [5]).

von (111)- Ebenen, wobei die magnetischen Momente von zwei benachbarten Ebenen entgegengesetzt gerichtet sind. Diese antiferromagnetische Ordnung verschwindet oberhalb der Néel- Temperatur von  $T_N = 9.7 K$ . Die fundamentale Energielücke von 2.25 eV ist durch den energetischen Abstand der stark lokalisierten 4f- Niveaus zu den bandartig verbreiterten, unbesetzten 5d- Zuständen gegeben. Eine ausführlichere Übersicht über die elektronischen und magnetischen Eigenschaften von EuTe geben u.a. die Artikel von Wachter [21] und Schoenes [22].

#### 2.2.3 Eigenschaften von $Pb_{1-x}Eu_xTe$

Dieses Kapitel beschreibt kurz die wichtigsten Eigenschaften von  $Pb_{1-x}Eu_xTe$ , das als Einbettmaterial für die hier untersuchten PbSe Quantenpunkte dient und somit die optischen Eigenschaften der Proben beeinflußt. Eine ausführliche Darstellung findet sich in [23]. Aufgrund der paramagnetischen  $Eu^{2+}$ - Ionen handelt es sich bei  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  um einen verdünnt magnetischen Halbleiter ("diluted magnetic semiconductor"), in welchem die freien Ladungsträger mit den lokalisierten magnetischen Momenten des  $Eu^{2+}$ - Ions wechselwirken [24]. Die Energielücke dieses Mischkristalls kann durch Veränderung der Eu- Konzentration in einem weiten Bereich von 0.19 eV(PbTe bei 4 K) bis 2.25 eV (EuTe) variiert werden. Wie PbTe und EuTe kristallisiert das Mischkristallsystem in der Kochsalzstruktur. Die Gitterfehlanpassung von PbTe und EuTe beträgt 2.4 %.

Die Abhängigkeit der Energielücke von der Eu- Konzentration läßt sich in drei Bereiche mit verschiedenen Interbandübergängen einteilen (nach [23]):

 <u>PbTe artiger Bereich für 0 < x ≤ 0.06</u>: Wie in reinem PbTe findet der Bandzu- Band Übergang am L- Punkt der Brillouinzone statt. Für die Energielücke bei 1.8 K gilt:

$$E_g(x)[meV] = 190 + 4480 \cdot x \quad . \tag{2.7}$$

2. Der Übergangsbereich für  $0.06 < x \le 0.6$ : Für Eu-Konzentrationen von mehr als der kritischen Eu-Konzentration von  $x_c = 0.06$  befinden sich die stark lokalisierten Eu 4f Niveaus energetisch oberhalb des PbTe- artigen Valenzbandes. Deshalb wird die Energielücke durch lokalisierte Eu 4f Niveaus und das PbTeartige Leitungsband gebildet.

$$E_g(x)[meV] = 340 + 2030 \cdot x \quad . \tag{2.8}$$

3. <u>EuTe- artiger Bereich für x > 0.8</u>: Hier findet der Übergang von den lokalisierten Eu 4f Niveaus zu dem EuTe- artigen 5d Leitungsband, wie in reinem EuTe statt.

Für die Gitterkonstante a von  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  in Abhängigkeit von der Eu-Konzentration x liefert eine Anpassungsrechnung an die experimentellen Daten aus [25]:

$$a(x) = \left(6.14151 + \sqrt{0.002197 + \frac{x}{32}}\right) \text{\AA} \quad . \tag{2.9}$$

In den hier untersuchten Proben liegt die Eu- Konzentration stets unterhalb von 10 %. Für die Temperaturabhängigkeit der Energielücke von  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  und x < 0.1 wurde nach [25]

$$E_g(x,T) = (189.7 + 0.48 \cdot T(K)^2 \cdot \frac{1 - 7.56x}{T(K) + 29} + x \cdot 4480) \quad meV$$
(2.10)

ermittelt. Für  $x \leq 0.06$  bleibt die Symmetrie der Energiebänder des semimagnetischen Halbleiters  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  gegenüber der des binären PbTe unverändert. Die Bandstruktur wird aufgrund der Austauschwechselwirkung zwischen den freien Ladungsträgern und den magnetischen Momenten des Eu- Ions modifiziert. Für die Berechnung muß der oben diskutierte Hamiltonoperator aus Gl. 2.1 um den Term

$$H_{exch} = \sum_{\vec{R}_i} J(\vec{r} - \vec{R}_i) \cdot \vec{\sigma} \cdot \vec{S}_i$$
(2.11)

ergänzt werden [16].  $\vec{\sigma}$  beschreibt den Spin eines Ladungsträgers des Leitungs- oder Valenzbandes an der Position  $\vec{r}$ ,  $\vec{S_i}$  den Spin des Ions an der Position  $\vec{R_i}$  und J steht für das Austauschintegral. Hiermit läßt sich das für nichtmagnetische IV-VI Halbleiter vorgestellte theoretische Modell auf deren semimagnetische Derivate ausdehnen. Zu den 11 Bandparametern für das nichtmagnetische Material kommen 6 weitere hinzu. Vier geben die Austauschparameter an und 2 berücksichtigen die schwache anti- ferromagnetische Kopplung der magnetischen Ionen untereinander.

#### 2.3 Strukturierte Halbleiter

Viele der modernen (opto- ) elektronischen Halbleiter- Bauelemente wären ohne die Kombination von unterschiedlichen Materialien undenkbar. Die entscheidende Größe bei der Kombination von beispielsweise zwei Halbleitern ist die Anordnung der Energiebänder relativ zueinander ("band- offsets"). So werden die Energieniveaus in einem Übergitter maßgeblich von den aus der Übergitterperiodizität erzeugten Minibändern beeinflußt. In Quantentrögen, Quantendrähten und Quantenpunkten wird der Einschluß der Ladungsträger durch die Bandkantendiskontinuität bestimmt. Als quantitatives Maß zur Charakterisierung der Bandkantendiskontinuität dient die Größe  $D_{C,V}$ . An der Grenzfläche zweier Materialien A und B definiert man

$$D_{C,V} = \frac{\Delta E_{C,V}}{\Delta E_g} = \frac{E_{C,V}(B) - E_{C,V}(A)}{E_g(B) - E_g(A)} \quad , \tag{2.12}$$

wobei  $E_V$  bzw.  $E_C$  die entsprechenden Energien der Valenzbandoberkante bzw. der Leitungsbandunterkante, und  $E_g$  die Energielücke des jeweiligen Materials sind. Damit lassen sich die in Abb. 2.6 gezeigten Bandanordnungen unterscheiden. Bei einer



Abbildung 2.6: Schematische Darstellung der drei möglichen Bandanordnungen (aus [26]).

Anordnung nach dem Typ I sind die Leitungsbandminima und die Valenzbandmaxima räumlich an der selben Stelle, was direkte optische Übergänge im Ortsraum begünstigt. Damit wäre eine Bandanordnung vom Typ I für optische Komponenten (z.B. Halbleiterlaser) wünschenswert. Liegen die Extrema der Bänder in Material Bunterhalb von denen in Material A, so entsteht eine Anordnung vom Typ I'. Bei diesem Typ existiert noch ein gemeinsamer Bandlückenbereich, doch die Energielücke ist indirekt im Ortsraum. Bei Typ II befindet sich die Leitungsbandkante eines Materials unterhalb der Valenzbandkante des anderen.

Abweichend von dem in Abb. 2.6 idealisiert angenommenen Verhalten kann es vorkommen, daß der Übergang zwischen den Materialien nicht abrupt stattfindet. An den Grenzflächen treten im Allgemeinen mehr oder weniger stark ausgeprägte Bandverbiegungen und Fehlstellen auf. Diese Fehlstellen werden durch Diffusion und die Unterschiede der Gitterkonstanten beider Komponenten bestimmt. Besitzen beide Materialien die gleiche Gitterkonstante, so ist ein defekt- und spannungsfreies Wachstum bis zu beliebigen Schichtdicken möglich. Sind die Gitterkonstanten verschieden, so wird das eine Material verspannt auf dem anderen wachsen ("pseudomorphes Wachstum") bis es ab einer kritischen Schichtdicke durch Bildung von Gitterversetzungen relaxiert. Eine weitere Möglichkeit zur Reduzierung der Spannungsenergie ist die Bildung von dreidimensionalen Strukturen, welche in Kapitel 2.3.3 beschrieben wird.

#### 2.3.1 Zweidimensionale Systeme

Wie oben aufgezeigt wurde, kommt es an der Kontaktstelle zweier Halbleiter meist zu Verbiegungen der Bandkanten. Dies kann dazu führen, daß sich dort ein zweidimensionales Elektronen- oder Löchergas innerhalb eines Dreieckspotentials ausbildet. Eine weitere Möglichkeit zur Erzeugung zweidimensionaler Systeme besteht darin, zwei Halbleiter A und B mit unterschiedlicher Energielücke in der Schichtfolge ABABA... aufeinander zu wachsen. Dabei bilden sich sogenannte Vielfach-Quantentöpfe oder Übergitterstrukturen, in denen aufgrund der Potentialdifferenzen eine freie Bewegung in Wachstumsrichtung eingeschränkt ist. Damit bleibt die Bewegung quasi- zweidimensional in den Schichten senkrecht zur Wachstumsrichtung beschränkt.

Zur theoretischen Behandlung solcher Heterostrukturen existieren mehrere Verfahren. Um die elektronischen Zustände in Quantentöpfen und Übergittern zu berechnen, hat sich die "envelope function approximation (EFA)" bewährt [27, 28]. Diese Theorie fand durch Kriechbaum *et al.* [29, 30] ihre Erweiterung auf das Materialsystem der IV-VI Halbleiter. Um die EFA Theorie auf Heterostrukturen anwenden zu können, werden in den jeweiligen Bereichen die Einhüllenden der Wellenfunktionen bestimmt. Die Wellenfunktionen ergeben sich aus der Schrödingergleichung mit dem effektiven Hamiltonoperator der  $\vec{k} \cdot \vec{p}$ - Theorie, wie in Kapitel 2.2.1 beschrieben wurde. Mit Hilfe der Bedingung des stetigen Anschlusses der Wellenfunktionen und des Wahrscheinlichkeitsstroms an den Grenzflächen, lassen sich die erlaubten elektronischen Zustände in Heterostrukturen berechnen. Voraussetzung dieser Methode ist allerdings, daß die Übergitterperiode groß ist gegenüber der Gitterkonstanten des Kristallgitters. Aus diesem Grund lassen sich sehr kurzperiodische Übergitterstrukturen nur unzureichend beschreiben [31]. Mit dem soeben beschriebenen Verfahren wurden die Energieniveaus von  $PbSe/Pb_{1-x}Mn_xSe$  und  $PbTe/Pb_{1-x}Eu_xTe$  Heterostrukturen im Magnetfeld untersucht. Für  $PbTe/Pb_{1-x}Eu_xTe$  wurde ein  $D_C$  von +0.5 ermittelt [32]. Dies bedeutet eine Typ I Anordnung mit symmetrischer Aufteilung des Bandlücken- Energieunterschieds auf Leitungs- und Valenzband. Für die in dieser Arbeit untersuchten PbSe Quantenpunkte in  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  Matrix (siehe Kapitel 2.3.3.2) wäre die Bandanordnung für das System  $PbSe/Pb_{1-x}Eu_xTe$  interessant. Nach theoretischen Überlegungen von Wei und Zunger [10] und aus Messungen der Bandkantenenergien relativ zu einem Cr<sup>2+</sup>- Störstellenniveau [33] ergibt sich für das System PbSe/PbTe eine Typ I' Bandanordnung, wobei die PbTe- Bandkanten unter denen von PbSe liegen. Diese Resultate beziehen sich allerdings auf unverspannte Kristalle. In dem hier untersuchten System  $PbSe/Pb_{1-x}Eu_xTe$  spielt die Verspannung eine entscheidende Rolle, da diese zu Energieverschiebungen der Bänder am L- Punkt führt. Das System  $PbSe/Pb_{1-x}Eu_xTe$  wird in [34] ausführlich untersucht, wobei die für PbSe Quantenpunkte erhaltenen Resultate in Kapitel 2.3.3.2 zusammengefasst sind.

#### 2.3.2 Nulldimensionale Systeme

Wird die Bewegung der Ladungsträger in allen drei Raumrichtungen eingeschränkt, so spricht man von nulldimensionalen Systemen. Solche nulldimensionalen Systeme lassen sich auf unterschiedliche Art und Weise erzeugen.

Wie bereits im vorhergehenden Kapitel erklärt wurde, lassen sich zweidimensionale Systeme an der Grenzfläche zweier Halbleitermaterialien oder durch das Wachstum von Quantentrogstrukturen erzeugen. Die Reduzierung von zwei- auf nulldimensionale Systeme erfolgt in diesem Fall durch Anlegen eines Magnetfeldes senkrecht zur Ebene der freien Bewegung. Dadurch werden die Ladungsträger auf Kreisbahnen gezwungen, womit die freie Bewegung der Teilchen in x- und y- Richtung gekoppelt wird. Die entstehenden Landauniveaus bilden ein nulldimensionales System. Diese Methode des Ladungsträgereinschlusses findet sich beispielsweise bei Proben zur Messung des Quanten- Hall- Effektes wieder.

Eine weitere Methode nulldimensionale Strukturen ohne die Verwendung eines Mag-

netfeldes herzustellen, ist das Wachstum von Nanopartikeln, den sogenannten Quantenpunkten. In diesen Systemen wird die freie Bewegung der Ladungsträger in die drei Raumrichtungen durch Potentialbarrieren verhindert. Da der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit auf der Untersuchung von Quantenpunkten liegt, wird im folgenden Kapitel der Herstellungsprozess dieser Strukturen allgemein erläutert. Im Anschluß daran werden speziell die hier verwendeten InAs und PbSe Quantenpunkte vorgestellt.

#### 2.3.3 Entstehung von Quantenpunkten

Eine Möglichkeit zur Herstellung von Quantenpunkten ist das sogenannte "selbstorganisierte Wachstum". Das prinzipielle Vorgehen soll an dieser Stelle kurz erläutert werden. Auf ein Substrat wird mit Hilfe von Molekularstrahlepitaxie (MBE) das gewünschte Puffermaterial aufgebracht. Da die Gitterkonstanten des Substrates und des Puffermaterials im allgemeinen nicht gleich sind, wird die erste Monolage verspannt mit der Gitterkonstanten des Substrates aufwachsen. Diese Verspannung setzt sich über mehrere Monolagen fort, bis es bei der kritischen Schichtdicke  $d_{krit}$  zu spontanen Versetzungen kommt und das Puffermaterial relaxiert. Die Dicke der Pufferschicht ist daher meist größer als diese kritische Schichtdicke. Auf dieses relaxierte Material wächst man Schichtweise das Material auf, aus dem die Nanostrukturen bestehen sollen. Wiederum kommt es aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten zu Verspannungen zwischen dem aufgebrachten Material und der Pufferschicht. Neben der Bildung von Versetzungen gibt es ab der kritischen Schichtdicke eine weitere Option die Spannungsenergie zu reduzieren: das selbstorganisierte Wachstum dreidimensionaler Strukturen. Dabei ist es energetisch günstiger, anstatt von Versetzungslinien, dreidimensionale Strukturen, wie beispielsweise Pyramiden zu bilden. Der Endzustand ist durch ein Minimum in der Helmholtz Freien Energie Fbestimmt. Diese Wachstumsmethode tritt bei einer Vielzahl von Materialsystemen auf, wie Ge auf Si(100) [35], In(Ga)As auf GaAs(001) [36] oder PbSe auf PbTe(111) [37]. Abbildung 2.7 zeigt die drei Klassen, in die sich selbstorganisiertes Wachstum einteilen läßt.

• Bei dem Frank- van der Merwe Typ bleiben die verspannten Schichten eben, und es wächst Schicht auf Schicht. Die aufgebrachten Atome sind stärker an das Substrat gebunden als untereinander (z.B.  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  auf PbTe).



Abbildung 2.7: Skizze der drei möglichen Wachstumsmethoden: Frank- van der Merwe (FvdM), Volmer- Weber (VW) und Stranski-Krastanow (SK) Wachstum (nach [38]).

- Volmer und Weber beschrieben das Wachstum von Inseln auf dem Substrat ohne Bildung einer Benetzungsschicht. Dieses Wachstum ist zu beobachten, wenn die Bindung der aufgebrachten Atome untereinander viel stärker ist als die Bindung zum Substrat (z.B. PbTe auf BaF<sub>2</sub>).
- Eine Mischung aus dem Frank- van der Merwe und Volmer- Weber Typ wurde von Stranski- Krastanow beschrieben. Dabei bilden sich aus dem aufgebrachten Material die Nanostrukturen, und es bleibt eine Benetzungsschicht auf dem Substrat zurück (z.B. InAs auf GaAs).

Bei der hier beschriebenen Selbstorganisation kann eine periodische Struktur entstehen, deren Periodizität größer ist als die Gitterkonstante *a* der Materialien. Die entstandenen Strukturen werden mit Hilfe von Füllmaterial bedeckt, wobei es wieder zu Verspannungen kommt. Ist die Dicke der Füllschicht so groß, daß sich die Verspannung über Versetzungen abbauen kann, so kann die nächste Schicht aus Nanostrukturen unbeeinflußt von der darunterliegenden aufgewachsen werden. Andernfalls wird die neu wachsende Lage an Quantenpunkten über die Verspannungen mit der darunterliegenden korreliert, und es ist eine dreidimensionale Ordnung aller Quantenpunkte möglich. Die in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunktstrukturen folgen alle dem Stranski- Krastanow Typ und hinterlassen nach Bildung der dreidimensionalen Nanostrukturen eine dünne Benetzungsschicht.

#### 2.3.3.1 InAs Quantenpunkte

Zu den wohl bekanntesten Vertretern von Quantenpunkten gehören InAs Quantenpunkte in einer GaAs Matrix. Aufgrund der direkten Energielücke dieses Systems ist es besonders gut für opto- elektronische Anwendungen wie Quantenpunktlaser oder als Lichtquelle für einzelne Photonen geeignet. Weiterhin könnten einzelne dieser Quantenpunkte als Speicherzellen eines Quantencomputers zum Einsatz kommen, wie bereits in der Einleitung erwähnt wurde. Wegen dieser Vielfalt von denkbaren Anwendungen ist das Interesse an dem System InAs/GaAs ungebrochen.

Zur Herstellung von InAs Quantenpunkten wird InAs auf ein GaAs Substrat aufgebracht. Aufgrund der Verspannungen der aufgebrachten Schichten bilden sich selbstorganisierte InAs Quantenpunkte nach der im vorhergehenden Kapitel beschriebenen Stranski- Krastanow Methode. Die entstehenden dreidimensionalen Strukturen lassen sich in zwei Klassen unterteilen. Zum Einen entstehen vierseitige Pyramiden mit einer typischen Höhe von 6 nm und einer Basislänge von 10 nm. Zum Anderen bilden sich größere multifacettenartige Strukturen, welche als Dome bezeichnet werden. Überwächst man die erhaltenen Strukturen mit 1 ML InAs, so nimmt die Zahl der Dome ab, bis schließlich alle Quantenpunkte die Form einer vierseitigen Pyramide besitzen. Durch optimierte Wachstumsbedingungen lassen sich InAs Quantenpunkte mit einer sehr schmalen Größenverteilung vom  $\pm 8\%$  erzeugen, welche lateral geordnet sind.

Die elektronischen Eigenschaften des Systems InAs/GaAs wurden eingehend von Karrai *et al.* [39] untersucht. Dabei zeigte sich, daß sich der elektronische Bandverlauf innerhalb eines InAs Quantenpunktes durch ein Bandmodell mit effektiven Massen beschreiben läßt. Abbildung 2.8 zeigt das erhaltene Resultat. Da Quantenpunkte oft als künstliche Atome bezeichnet werden, wurden die quantisierten Niveaus innerhalb des Valenz- bzw. Leitungsbandes des Quantenpunktes entsprechend der Nomenklatur der Atomphysik mit s, p und d bezeichnet. Die erlaubten Übergänge zwischen diesen Niveaus sind mit Pfeilen angedeutet. In der Arbeit von Karrai *et al.* wurde die Austauschwechselwirkung zwischen s und p Zuständen zu



Abbildung 2.8: Schematische Darstellung des Potentialverlaufes eines InAs Quantenpunktes in einer GaAs Matrix nach [40]. In Anlehnung an die Nomenklatur der Atomphysik wurden die Niveaus als s, p und d bezeichnet. Weiterhin sind die erlaubten elektrischen Dipolübergänge zwischen den Niveaus eingezeichnet.

1.8 meV bestimmt, wohingegen die Austauschwechselwirkung zwischen Elektron und Loch 0.21 meV beträgt.

Im Hinblick darauf, Quantenpunkte als qubits in Quantencomputern einzusetzen, wurden in der vorliegenden Arbeit die Spinlebensdauern der Elektronen in InAs und InGaAs Quantenpunkten mit Hilfe des Hanle- Effektes untersucht. Die erhaltenen Resultate werden in Kapitel 5.3 diskutiert.

#### 2.3.3.2 PbSe Quantenpunkte

Im Jahre 1998 gelang es Springholz *et al.* [41] erstmals selbstordnende PbSe Quantenpunkt- Übergitter mittels MBE herzustellen. Dazu werden mehrere Monolagen PbSe auf Pb<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>Te aufgewachsen. Aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten erhält man eine Gitterfehlanpassung von -5.4%, und es bilden sich Quantenpunkte nach dem Stranski- Krastanow Wachstum. Die zugverspannten Inseln besitzen die Form einer Pyramide mit dreieckiger Grundfläche, wie sich aus der Kraftmikroskopaufnahme in Abb. 2.9 (A) erkennen läßt. Die Pyramiden zeigen (100)- orientierte Seitenflächen, die parallel zu den  $< \overline{110} >$ - Richtungen verlaufen. Das Verhältnis von Basislänge zu Pyramidenhöhe beträgt  $d/h = \sqrt{2}/3 = 2.12$ .



Abbildung 2.9: (A) Kraftmikroskopaufnahme der pyramidenförmigen PbSe Quantenpunkte auf (111) PbTe. (B) zeigt eine Kraftmikroskopaufnahme einer einzelnen Lage PbSe Quantenpunkte auf  $Pb_{1-x}Eu_xTe$ , während (C) die letzte Lage eines  $PbSe/Pb_{1-x}Eu_xTe$  Quantenpunktsupergitters mit 60 Perioden wiedergibt. Die Einsätze zeigen jeweils die zweidimensionale Fouriertransformation der Kraftmikroskopaufnahmen und lassen für (C) die hexagonale, laterale Anordnung der Inseln erkennen (aus [41]).

Für ein Quantenpunktübergitter von abwechselnd 5 ML PbSe und 30 bis 70 nm $Pb_{1-x}Eu_xTe$  Abstandsschicht ergibt sich ein ideales Inselwachstum mit nahezu identischen Quantenpunkten. Dabei zeigt sich, daß die nach jeder Lage Quantenpunkte aufgebrachte Pufferschicht perfekt eben ist. Dies ist nicht selbstverständlich, da bereits ein geringer Eu-Anteil von 6 % zu facettenartigem Wachstum der  $Pb_{1-x}Eu_xTe$ Schichten führen kann. Der Eu- Gehalt (x = 5 - 10%) der Abstandsschichten wird dabei so gewählt, daß die Zugspannung in den PbSe Schichten durch die Kompressionsspannung der Abstandsschicht exakt kompensiert wird. Die Zahl der Perioden eines solchen "spannungssymmetrisierten" Supergitters ist damit beliebig groß. Es sei angemerkt, daß perfekte Spannungssymmetrisierung nur durch eine PbTe Pufferschicht möglich wäre. Allerdings absorbiert PbTe die emittierte Strahlung aus den PbSe Quantenpunkten. Deshalb wurde  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  als Puffermaterial verwendet. Abbildung 2.9 (C) zeigt die letzte PbSe Quantenpunktlage eines Supergitters mit 60 Perioden. Im Vergleich dazu ist in Abb. 2.9 (B) das Bild einer einzelnen Quantenpunktschicht gezeigt. Die Verteilung der Quantenpunkte auf der einzelnen Schicht ist zufällig mit einem mittleren Abstand der Punkte von 61 nm. Für das Supergitter beobachtet man mit zunehmender Zahl der Perioden N größer werdende Regionen, in denen die Quantenpunkte perfekt hexagonal angeordnet sind. Für eine Periodenzahl von N > 30 erhält man nahezu perfektes hexagonales Wachstum, welches lediglich durch Punktdefekte (fehlende oder an Zwischenpositionen befindliche Quantenpunkte) oder zusätzliche Reihen von Inseln gestört ist (Abb. 2.9 (C)). Die Zunahme der lateralen Ordnung wird durch die zweidimensionale Fouriertransformation der Kraftmikroskopaufnahmen gestützt. Die erhaltenen Resultate sind als Einsätze in den Abb. 2.9 (B) und (C) zu sehen. Für die einzelne Quantenpunktschicht erhält man einen breiten und diffusen Ring, wohingegen für das Supergitter sechs Seitenmaxima erscheinen. Diese sind ein klarer Hinweis für die hexagonale Ordnung. Im Übergitter wird die Anordnung und Ausrichtung jeder neu wachsenden Quantenpunktschicht durch die darunterliegende, von  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  bedeckte Schicht mittels elastischer Wechselwirkung bestimmt. Zusätzlich zur lateralen Ordnung der Quantenpunkte beobachtet man im Supergitter eine geringere Größenverteilung der einzelnen Punkte von  $\pm 7\%$ . Mit Hilfe von kraft- und elektronenmikroskopischen Untersuchungen an Übergittern mit 30 Perioden, bestehend aus je 5 Monolagen PbSe und  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  Schichten unterschiedlicher Dicke  $d_{SL}$ , wurde das Ordnungsverhalten in Abhängigkeit von dem vertikalen Abstand der Quantenpunkte untersucht [42]. Anhand der Größe von  $d_{SL}$  lassen sich drei Bereiche unterscheiden:

- <u>Bereich I ( $d_{SL} < 390$ Å)</u>: In diesem Bereich beträgt die Flächendichte der Quantenpunkte etwa 100  $\mu m^{-2}$ . Der laterale Abstand *L* der vertikal übereinander angeordneten Quantenpunkte ändert sich nur sehr langsam mit  $d_{SL}$ und es gilt näherungsweise  $L \approx (0.6 \cdot d_{SL} + 1080$ Å). Lateral besteht eine lokale hexagonale Ordnung. Die Größe der Quantenpunkte ist im Mittel 180 Å in der Höhe und 700 Å in der Breite, wobei die Spitze der Dreieckspyramide gekappt ist.
- Bereich II (390Å  $\leq d_{SL} \leq 570$ Å): Hier beobachtet man ein gänzlich anders Verhalten. Es bildet sich lateral ein perfektes hexagonales 2D- Gitter, wobei die Punktgröße abnimmt und entsprechend die Punktdichte auf ca. 250  $\mu m^{-2}$ ansteigt. Vertikal sind die Quantenpunkte von einer Schicht zur nächsten um 39° gegen die Wachstumsrichtung versetzt, und es entsteht eine Schichtfolge der Form ABCABC... Damit ist man in der Lage, kubisch flächenzentrierte

(fcc) PbSe- Quantenpunktgitter herzustellen, die entlang der Wachstumsrichtung ([111]- Richtung) um 18 % gestaucht wurden. Der laterale Abstand Lbeträgt  $L = d_{SL} \cdot \sqrt{3} \cdot tan(39^{\circ})$ . Die mittlere Größe sowie die Abstände der Quantenpunkte sind über das gesamte Übergitter hinweg konstant. Somit bilden sich außergewöhnlich homogene 3D- Quantenpunkt- Übergitter mit einer schmalen Größenverteilung von minimal  $\pm 7\%$ . Diese Weise der Anordnung ist einmalig bei den IV-VI Halbleitern.

• <u>Bereich III ( $d_{SL} > 570$ Å)</u>: Für diesen Fall ist weder eine laterale noch eine vertikale Ordnung zu beobachten. Der mittlere laterale Abstand beträgt 460 Å und hängt nicht von der Periodendicke ab. Die Punktdichte steigt auf 550  $\mu m^{-2}$ .

Durch die starke Zunahme der Energielücke von  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  mit steigendem Eu-Gehalt und der größeren Energielücke von PbTe verglichen mit PbSe (siehe Kapitel



Abbildung 2.10: Bandanordnung für verspannte  $PbSe/Pb_{1-x}Eu_xTe$ Quantenpunkte. Die Bandkantendiskontinuitäten und quantisierten Energieniveaus im Leitungsband sind eingezeichnet. Weiterhin sind die drei möglichen Übergänge angedeutet (nach [34]).

2.2) erreicht man eine starke Quantisierung und damit einen starken Einschluss der freien Ladungsträger in den PbSe Quantenpunkten, welche zusätzlich eine schmale Größenverteilung besitzen. Somit sind die hier erwähnten Quantenpunktübergitter für opto- elektronische Anwendungen sehr interessant. Bis heute existieren nur zwei Arbeiten, die sich mit den optischen Eigenschaften von PbSe Quantenpunkten beschäftigen [34, 5]. Eine erste Abschätzung der quantisierten Energieniveaus findet sich in der Dissertation von M. Aigle [34]. Zur Berechnung der Energieniveaus wurde das folgende Modell zu Grunde gelegt:

Die pyramidenförmigen Quantenpunkte der Höhe h werden durch Kugeln mit dem Radius  $r = 0.5 \cdot h$  sphärisch angenähert. Weiterhin wird die Verspannung in den Pyramiden durch eine mittlere isotrope Verspannung abgeschätzt und die Verschiebung von Leitungs- und Valenzband mit Hilfe von Deformationspotentialen berechnet. Die Bänder werden in der parabolischen Näherung beschrieben und die anisotropen Massen sphärisch gemittelt. Die Benetzungsschicht wird als zweidimensionaler Quantentopf beschrieben. Das Ergebnis dieser Berechnung zeigt Abb. 2.10. Die Bandanordnung zwischen PbSe und Pb<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>Te ist demnach vom Typ I'. Damit sind drei optische Übergänge mit den Energien 285, 448.4 und 457.4 meV zu erwarten.

#### 2.4 Bragg- Spiegel und vertikale Resonatorstrukturen

Bragg- Spiegel sind Multilagenstrukturen, wobei jede Lage aus alternierenden Paaren von zwei dielektrischen Materialien mit verschiedenen Brechungsindizes besteht. Durch eine solche Anordnung lassen sich, bei gegebener Zielwellenlänge  $\lambda_T$ , Spiegel mit einer Reflexionsrate von 0 bis annähernd 100% erreichen. Im Gegensatz zu metallischen Spiegeln zeigen Bragg- Spiegel eine sehr kleine Absorption, da die Reflexion bei Multischichtsystemen durch Mehrfachinterferenzen erzeugt wird. Diese kleinen Absorptionsverluste sowie die Möglichkeit die Spiegel für unterschiedlichste Wellenlängen auszulegen, machen sie für optische und opto- elektronische Bauelemente sehr interessant. Während Kombinationen von dielektrischen Schichten mit verschwindender Reflexion als Antireflexionsschichten vielfältig zum Einsatz kommen (Schlagwort "Entspiegelung"), werden dielektrische Spiegel mit hoher Reflexion hauptsächlich in Laseranwendungen eingesetzt.

Um Bragg- Spiegel mit hohen Reflexionsraten herstellen zu können, benötigt man

neben hochreinen dielektrischen Materialien zur Vermeidung von Absorption, ebenfalls sehr glatte Ober- und Grenzflächen um Lichtstreuung zu verhindern. Weiterhin ist die Kontrolle der Schichtdicken äußerst wichtig, um den Spiegel für die Zielwellenlänge zu optimieren. Um die höchst mögliche Kristallqualität und Reinheit zu erhalten, wurden die hier untersuchten Proben mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) gewachsen. Die damit erhaltenen Bragg- Spiegel sind so hochwertig, daß sie in opto- elektronische Bauelemente integriert werden können. So kann beispielsweise der elektronisch aktive Teil eines Bauelements auf einen Spiegel aufgewachsen werden oder sogar zwischen zwei Spiegeln positioniert werden. Vertikale Resonatoren mit einem Spiegelabstand in der Größenordnung der Wellenlänge des Lichts nennt man "Mikroresonatoren". Da in dieser Arbeit ausschließlich IV-VI Mikroresonatoren untersucht wurden, beschränkt sich die Behandlung von Bragg- Spiegeln ebenfalls auf dieses Materialsystem.

Die hohe Reflexionsrate der Bragg- Spiegel wird durch konstruktive Interferenz der an den aufeinander folgenden Schichten reflektierten elektromagnetischen Wellen erzeugt. Um konstruktive Interferenz zu erhalten, müssen die Grenzflächen zwischen den Schichten parallel und deren Abstand, je nach Brechungsindex des umgebenden Materials, ein gerad- oder ungeradzahliges Vielfaches eines Viertels der optischen Wellenlänge  $\lambda$  sein. In der Praxis verwendet man Schichtfolgen aus abwechselnd zwei Materialien mit verschiedenen Brechungsindizes  $n_1$  und  $n_2$  mit jeweils einer Dicke von einem Viertel der Zielwellenlänge  $\lambda_T$  (" $\lambda/4$ - Schicht"). Damit läßt sich der Spiegel durch den Brechungsindexunterschied  $n_1/n_2$  und die Zahl N der  $\lambda/4$ - Paare charakterisieren. Die Reflexionsrate R eines Bragg- Spiegels mit N  $\lambda/4$  Schichtpaaren läßt sich bei senkrechtem Lichteinfall und bei der Zielwellenlänge  $\lambda_T$  nach

$$R = \left(\frac{1 - n_t/n_i(n_1/n_2)^{2N}}{1 + n_t/n_i(n_1/n_2)^{2N}}\right)^2$$
(2.13)

berechnen. Dabei bezeichnen  $n_i$  und  $n_t$  die Brechungsindizes der Medien vor und nach dem Spiegel. Wie man aus Gl. 2.13 erkennt, konvergiert die Reflexionsrate Rmit steigender Schichtzahl N schnell gegen 1. Dieser Anstieg geht umso schneller, je größer der Brechungsindexunterschied  $n_1/n_2$  ist. Während oben genannte Gleichung nur den maximalen Wert der Reflexionsrate R bei der Zielwellenlänge  $\lambda_T$  angibt, soll im folgenden kurz auf die sogenannte "Transfermatrixmethode" eingegangen werden. Diese erlaubt es, sowohl die Transmission als auch die Reflexion eines gegebenen dielektrischen Schichtsystems als Funktion der Wellenlänge zu berechnen. Die Methode stellt die Verbindung zwischen den elektrischen Feldern des einfallenden Lichts  $E_I$ , des reflektierten Lichts  $E_R$  und des transmittierten Lichts  $E_T$  mit Hilfe einer Transfermatrix S dar:

$$\begin{pmatrix} E_I \\ E_R \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_T \\ 0 \end{pmatrix} \quad . \tag{2.14}$$

Hierbei ist die Transfermatrix S das Produkt einer Serie von Matrizen  $M_{ij}$  und  $D_j$  $(S = M_{01}D_1M_{12}D_2...D_NM_{NS})$ , wobei  $M_{ij}$  die Reflexion und Transmission an einer einzigen Grenzfläche zwischen zwei Materialien mit den Inizes i und j beschreibt:

$$M_{ij} = \frac{1}{t_{ij}} \begin{pmatrix} 1 & r_{ij} \\ r_{ij} & 1 \end{pmatrix} \quad . \tag{2.15}$$

Matrix D liefert die Phasenverschiebung in dem Material mit dem Index j

$$D_j = \begin{pmatrix} e^{-i\Delta\Phi_j} & 0\\ 0 & e^{+i\Delta\Phi_j} \end{pmatrix}, \quad \text{mit} \quad \Delta\Phi_j = \frac{2\pi n_j}{\lambda} \cos(\Theta_j d_j)$$
(2.16)

der elektromagnetischen Welle nach Durchlaufen einer Schicht der Dicke  $d_j$ . Weiterhin bezeichnet  $\Theta_j$  den Einfallswinkel. In der Matrix  $M_{ij}$  sind die winkelabhängigen Fresnelschen Gleichungen für die beiden Polarisationen parallel und senkrecht zur Schichtoberfläche enthalten:

$$t_{ij}^{\perp(\parallel)} = \frac{2n_i \cos\Theta_i}{n_{i(j)} \cos\Theta_i + n_{j(i)} \cos\Theta_j} \quad , \tag{2.17}$$

$$r_{ij}^{\perp(\parallel)} = \frac{n_{i(j)}\cos\Theta_i - n_{j(i)}\cos\Theta_j}{n_{i(j)}\cos\Theta_i + n_{j(i)}\cos\Theta_j} \quad .$$

$$(2.18)$$

Damit ergibt sich die Transmission T und die Reflexion R der gesamten Struktur zu:

$$T = \frac{Re(n_t)}{Re(n_i)} |1/S_{11}|^2 \quad , \quad R = |S_{21}/S_{11}|^2 \quad . \tag{2.19}$$

Mit Gl. 2.19 hat man eine Methode zur Berechnung der Dispersion von Reflexion  $R(\lambda)$  und Transmission  $T(\lambda)$  einer beliebigen Folge dielektrischer Schichten an der Hand. Die im folgenden dargestellten Resultate wurden durch numerisches Berechnen der Transfermatrix  $S(\lambda)$  erhalten. Abbildung 2.11 zeigt das Ergebnis einer solchen Rechnung für einen Bragg- Spiegel mit 4 Schichtpaaren. Dabei wurde für



Abbildung 2.11: (a) Berechnete Reflexionsspektren eines Bragg-Spiegels mit 4  $\lambda/4$  Schichtpaaren und einer Zielwellenlänge von 1  $\mu m$ . Dabei ist der kleinere Brechungsindex  $n_1 = 1.4$  entsprechend BaF<sub>2</sub>. Für den höheren Brechungsindex wurde zu Vergleichszwecken  $n_2 = 2$ , 3 und 4 gewählt.

(b) Reflexionsspektrum für einen Interferenzspiegel mit 5 Schichtpaaren und zusätzlichen Phasenverschiebungsschichten. Die Berechnung wurde für  $n_1 = 5.5$  und  $n_2 = 2.3$  und Zielwellenlängen von 3 und 6  $\mu m$  durchgeführt. Beide Abbildungen wurden [43] entnommen.

das Material mit dem kleineren Brechungsindex  $n_1 = 1.4$  angenommen, was dem von BaF<sub>2</sub> entspricht. Für das zweite, stärker brechende Material wurden die Werte  $n_2 = 2, 3$  und 4 verwendet. Man erkennt in Abb. 2.11 (a) daß sich für alle drei Werte von  $n_2$  bei der Zielwellenlänge von 1  $\mu m$  ein eindeutiges Stopband (hohe Reflexion in einem Wellenlängenbereich) ergibt. Wie man es nach Gl. 2.13 erwartet, nimmt mit steigendem Brechungsindexunterschied, d.h. zunehmendem  $n_2$ , die maximal erreichbare Reflexionsrate zu. Zusätzlich wird die Breite des Stopbandes deutlich größer, wobei außerhalb Fabry- Perot Interferenzen zu sehen sind. Bragg- Spiegel lassen sich ebenfalls mit mehreren Stopbändern bzw. für mehrere Zielwellenlängen erzeugen. Möchte man beispielsweise einen Spiegel mit den beiden Zielwellenlängen  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  erhalten, so ist die Dicke jeder Schicht zu  $d_i = \lambda_0/n_i$  mit  $\lambda_0 = 2\lambda_1\lambda_2/(\lambda_1 + \lambda_2)$ zu wählen. Zudem sind an geeigneter Stelle weitere  $\lambda/4$ - Schichten einzufügen, um die Phase des reflektierten Lichtes um 180° zu drehen. Der Abstand dieser zusätzlichen Schichten sollte  $\Delta \lambda = 2\lambda_1\lambda_2/(\lambda_1 - \lambda_2)$  betragen. In Abb. 2.11 (b) ist die Reflexion für einen Bragg- Spiegel mit den beiden Zielwellenlängen  $\lambda_1 = 3 \ \mu m$  und  $\lambda_2 = 6 \ \mu m$  gezeigt. Die Brechungsindizes betragen  $n_1 = 5.5$  und  $n_2 = 2.3$  und sind denen von PbTe für Material 1 und denen von EuTe für Material 2 sehr nahe. Um zwei eindeutige Stopbänder zu erhalten wurden zur Berechnung 5 PbTe/EuTe Schichtpaare verwendet. Zur Phasenverschiebung ist, wie oben erwähnt, nach jedem Schichtpaar eine EuTe Schicht eingebracht. Als Deckschicht diente eine  $\lambda/4$ - PbTe Schicht. Solche Spiegel mit zwei Zielwellenlängen können entweder dazu verwendet werden, Resonatoren für zweifarbige lichtemittierende Geräte herzustellen oder um ein sehr breites Stopband zu erzeugen falls  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  nahe beieinander liegen.

Bei der Wahl der Materialien für Bragg- Spiegel hat man mehrere Faktoren zu beachten. Zum Einen muß das verwendete Material transparent für die Zielwellenlänge sein. Zum Anderen sollten die Materialien beim Aufeinanderwachsen ein zweidimensionales Schicht- auf- Schicht Wachstum zeigen, um ebene Grenzflächen zu erhalten. Der Brechungsindexunterschied der Schichtmaterialien sollte groß sein, um die Zahl der Schichtpaare möglichst klein zu halten und um ein breites Stopband ( $\lambda/\Delta\lambda$ klein) zu erhalten. Wenn der Bragg- Spiegel z.B. in einem Laser zur Anwendung kommt, ist auch darauf zu achten, daß die thermischen Expansionskoeffizienten und die Gitterkonstanten des Spiegelmaterials, des aktiven Materials und des Substrates in etwa übereinstimmen. Abbildung 2.12 zeigt auf der Ordinate die Brechungsindizes für einige binäre Verbindungen bei einer Wellenlänge von 1  $\mu m$  und auf der Abszisse die Gitterkonstanten. Wie man erkennt, sind die Gitterkonstanten der auf Aluminium und Gallium basierenden  $A_{III}B_V$ - Verbindungen wie Arsenide, Antimonide und Phosphide nahezu identisch, was annähernd spannungsfreie Vielschichtstrukturen ermöglicht. Da weiterhin viele Halbleiterbauelemente auf diesem Materialsystem beruhen, wird der größte Teil an Interferenzspiegeln aus  $A_{III}B_V$ - Verbindungen hergestellt. Jedoch besitzt dieses Materialsystem auch einen entscheidenden Nachteil: der Brechungsindexunterschied aller III-V Schichtkombinationen ist mit 15% relativ gering. Deshalb ist eine große Zahl an Schichtpaaren (ca. 20 - 30) nötig, um Reflexionskoeffizienten oberhalb von 98% zu erhalten.

In dieser Arbeit werden Bragg- Spiegel basierend auf dem Materialsystem  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  mit Eu- Konzentrationen zwischen 0 und 1 als Resonatorspiegel angewendet. Die Gitterkonstante dieser ternären Verbindung variiert zwischen 6.46 Å



Abbildung 2.12: Brechungsindex für einige binäre Verbindungen bei einer Wellenlänge von 1  $\mu m$  als Funktion der Gitterkonstanten (aus [44]).

(x = 0) und 6.6 Å (x = 1) [45]. Die Energielücke  $E_g$  ist sehr stark von der Temperatur und dem Eu- Gehalt abhängig. So ist für x = 0  $E_g = 190$  meV und für x = 1  $E_g = 2.25 \ eV(!)$  [23]. Wie  $E_g$  zeigt auch der Brechungsindex n eine starke Variation mit x. Beispielsweise sinkt n bei einer Wellenlänge von 5  $\mu m$  und Raumtemperatur von 5.4 für x = 0 auf 2.3 für x = 1 [46]. Dieser starke Unterschied im Brechungsindex führt dazu, daß im Vergleich zu oben diskutierten Bragg- Spiegeln vom Typ  $A_{III}B_V$  eine wesentlich niedrigere Zahl von Spiegelpaaren verwendet werden muß, um Reflexionsraten von über 99 % zu erreichen. Bei einigen, in späteren Kapiteln beschriebenen vertikal emittierenden Laserproben benötigte man zum Erreichen dieser Reflexionsrate lediglich 5 Schichtpaare.

Die untersuchten Proben wurden mittels MBE auf (111) orientiertes BaF<sub>2</sub> gewachsen. Typische Wachstumsraten sind dabei für PbTe 2  $\mu m/h$  und für EuTe 0.77  $\mu m/h$ . Um eine sehr hohe Probenqualität gewährleisten zu können, sollte der Eu- Gehalt der Pb<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>Te  $\lambda/4$ - Schichten unter 10% gehalten werden. Dadurch ist die Gitterfehlanpassung relativ gering. Abbildung 2.13 zeigt eine Elektronenmikroskopaufnahme (SEM - scanning electron micrograph) eines solchen Bragg-Spiegels, bestehend aus 20 Perioden  $Pb_{0.94}Eu_{0.06}Te/Pb_{0.99}Eu_{0.01}Te$ . Durch selektives Ätzen wurden die Schichten sichtbar gemacht. Jene mit geringerem Eu- Gehalt wurden tiefer geätzt und erscheinen damit dunkler. Mit dieser Art von Spiegeln ist es möglich


Abbildung 2.13: SEM Aufnahme eines Bragg-Spiegels bestehend aus 20 Perioden  $Pb_{0.94}Eu_{0.06}Te/Pb_{0.99}Eu_{0.01}Te$  (entnommen aus [43]).

Mikroresonatoren für das mittlere Infrarote mit sehr hoher Finesse zu erzeugen. Besitzt eine Resonatorstruktur eine Resonanz bei der Wellenlänge  $\lambda_r$  mit einer Breite von  $\Delta\lambda_r$ , so bezeichnet man den Quotienten aus  $\lambda_r/\Delta\lambda_r$  als Finesse. Für einen Resonator bestehend aus GaAs/AlAs beträgt die höchste bekannte Finesse bei einer Wellenlänge von 930 nm 1470 [47]. Im Gegensatz dazu erreicht ein Resonator mit auf Pb<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>Te basierenden Spiegeln Finessen bis zu 2980! Damit ist klar ersichtlich, daß Laserstrukturen aus diesem Materialsystem ein großes Leistungspotential beinhalten.

# 3 Grundlagen der experimentellen Methoden

# 3.1 Photolumineszenz

Allgemein versteht man unter der Lumineszenz eines Halbleiters die Eigenschaft der Lichtemission nach energetischer Anregung von außen. Bei der Photolumineszenz erfolgt die Anregung durch Bestrahlung mit Licht, das eine Quantenenergie größer als die fundamentale Energielücke besitzen muß. Dadurch werden Elektron-Loch- Paare erzeugt, d.h. Elektronen werden durch Absorption eines Photons vom Valenz- ins Leitungsband gehoben. Die auf diese Weise erzeugten Elektron- Loch-Paare relaxieren sehr schnell aus energetisch höhergelegenen Bandzuständen zu den Bandkanten. Damit stellt sich eine quasi- Gleichgewichtsverteilung ein, d.h. eine Fermiverteilung der Elektronen und Löcher mit den dazugehörigen getrennten quasi-Ferminiveaus. Aus diesem Zustand erfolgt die Rekombination der Elektron- Loch-Paare unter Emission eines Photons entsprechender Energie. Erfolgt die Rekombination vor der Einstellung des quasi- Gleichgewichts, spricht man von sogenannter "heißer Lumineszenz".

Bei Halbleitern mit direkter Energielücke lassen sich im wesentlichen folgende Rekombinationsprozesse, wie in Abb. 3.1 gezeigt, unterscheiden.



Abbildung 3.1: Übergänge in Halbleitern.

a) Unter Interbandübergängen versteht man die direkte Rekombination von Elektronen des Leitungsbandes mit Löchern des Valenzbandes.

- b) Donator- Valenzband Übergänge
- c) Donator- Akzeptor Paarrekombination
- d) Leitungsband- Akzeptor Übergang
- e) Rekombination von freien Exzitonen oder von solchen, die an Störstellen gebunden sind.

Weiterhin existieren nichtstrahlende Prozesse, die zur Energieabgabe führen können. Zu den wichtigsten nichtstrahlenden Prozessen gehören der Energietransfer an das Kristallgitter und die damit verbundene Umwandlung in Wärme, sowie die erneute Anregung elektronischer Zustände, der sogenannte Auger- Effekt.

Nach Anregung der Halbleiterprobe mit Photonen der entsprechenden Energie läßt sich die Emission mit Hilfe eines Spektrometers spektral untersuchen und man erhält erste Informationen über die Bandstruktur des Halbleiters. Abbildung 3.2 zeigt ein



Abbildung 3.2: Photolumineszenzspektrum einer p- dotierten GaAs- AlGaAs Heterostruktur.

typisches Photolumineszenzspektrum einer p- dotierten GaAs- AlGaAs Heterostruktur bei einer Temperatur von 1.8 K. Die Anregung erfolgte dabei durch die Strahlung einer Laserdiode (780 nm, 1.59 eV) mit einer Leistung von 17 mW. Das Maximum der beobachteten spontanen Emission liegt bei 817 nm.

Da die in dieser Arbeit untersuchten vertikal emittierenden IV-VI Laserstrukturen stimulierte Emission zeigten, werden an dieser Stelle die Raten von stimulierter und spontaner Photolumineszenz diskutiert. Zur Beschreibung genügt es, die direkten Interbandübergänge zu berücksichtigen, da, wie bereits im vorhergehenden Kapitel erwähnt wurde, die Exzitonen bei den Bleisalzen für gewöhnlich keine Rolle spielen. Die für Interbandübergänge erhaltene Linienform der spontanen Lumineszenz ergibt sich aus dem Produkt der kombinierten Zustandsdichte der Bänder und der Ladungsträgerverteilung, die für schwach dotierte Materialien und geringe Anregungsleistungen als Boltzmannverteilung angenähert werden kann. Nach [48] ergibt sich eine Intensitätsverteilung von

$$I_{PL}(\hbar\omega) \propto \begin{cases} (\hbar\omega - E_g)^{1/2} \exp[-(\hbar\omega - E_g)/(k_B T)] & \text{für } \hbar\omega > E_g \\ 0 & \text{sonst.} \end{cases}$$
(3.1)

Aus dieser Gleichung läßt sich erkennen, daß sich das Intensitätsmaximum der Photolumineszenz nicht bei der Energielücke  $E_g$  des Halbleiters befindet, sondern bei  $\hbar\omega = E_g + (1/2)k_bT$ . Das hier zitierte Modell zur Beschreibung der Linienform erlaubt es, die Bandlücke aus dem niederergetischen Ende des Lumineszenzspektrums näherungsweise zu bestimmten. Speziell bei stark dotierten Halbleitern und hohen Anregungsleistungen ist jedoch eine genauere Betrachtung notwendig. Dabei ist die Boltzmannverteilung durch die Fermiverteilung der Ladungsträger zu ersetzen. Neben der in Gl. 3.1 beschriebenen spontanen Photolumineszenz ist ebenfalls stimulierte Emission zu erwarten. Weiterhin können Vielteilcheneffekte auftreten und die effektive Ladungsträgertemperatur kann von der Temperatur des Kristallgitters abweichen. Zur exakten Bestimmung der Energielücke aus Photolumineszenzmessungen sind daher in der Regel Anpassungsrechnungen nötig. Aus diesem Grund wird zur genauen Messung der Bandlückenenergie oft anderen Methoden der Vorzug gegeben.

Die Elektron- Loch- Rekombinationsrate  $r(E = \hbar \omega)dE$  im Energieintervall dE setzt sich im Allgemeinen aus der spontanten Emission  $r_{spon}(E)dE$  und den induzierten Prozessen der stimulierten Emission und der Absorption zusammen. Dabei ist die spontane Emission unabhänging vom vorhandenen Lichtfeld, wohingegen die Übergangsraten der induzierten Prozesse proportinal zur Anzahl der vorhandenen Photonen im Energiebereich dE sind. Nach Fermis Goldener Regel sind die Raten für Interbandübergänge zwischen Leitungs- und Valenzband durch das Übergansmatrixelement M, die Zustandsdichte D(E) und die Besetzung von Leitungs- und Valenzband bestimmt (Verteilungsfunktionen:  $f_c$  bzw.  $f_v$ ). Damit ergibt sich:

$$r_{spon}(E) = C \cdot f_c(E_c) \cdot (1 - f_v(E_v)) \tag{3.2}$$

$$r_{stim}(E) = C \cdot (f_c(E_c) - f_v(E_v))$$
 , (3.3)

wobei  $C \propto |M|^2 D(E)$  ist und  $r_{stim}$  beide induzierten Prozesse enthält und durch die Intensität des vorhandenen Lichtfeldes in der entsprechenden Mode dividiert ist. Bei Verwendung der Bolzmann- Statistik führt die Rate der spontanen Emission wieder zu dem Ergebnis aus Gl. 3.1. Mit Hilfe der Quasi- Ferminiveaus  $E_{F,c}$ für das Leitungsband und entsprechend  $E_{F,v}$  für das Valenzband erhält man durch Quotientenbildung beider Gln. 3.2 und 3.3 den folgenden Zusammenhang

$$r_{stim}(E) = r_{spon}(E) \left(1 - e^{\frac{E - (E_{F,c} - E_{F,v})}{k_B T}}\right)$$
 (3.4)

zwischen stimulierter und spontaner Emissionsrate. Für das thermische Gleichgewicht, in dem  $E_{F,c} = E_{F,v}$  gilt, ist nach Gl. 3.3  $r_{stim}(E) = 0$ . Liegt jedoch im Falle von  $E_{F,c} - E_{F,v} > E > E_g$  Besetzungsinversion vor, so überwiegt die stimulierte Emission die Absorption, d.h.  $r_{stim}(E) > 0$ . Die Rate der stimulierten Emission  $r_{stim}$  ist nach [49] mit dem Absorptionskoeffizienten  $\alpha_0(E)$  des intrinsischen Materials über

$$r_{stim}(E) = -\frac{n^2 E^2}{\pi^2 c^2 \hbar^3} \alpha_0(E)$$
(3.5)

verknüpft. Die Beziehung zwischen spontaner Emissionrate und  $\alpha_0(E)$  wird von Gl. 3.4 hergestellt.

Aus den soeben beschriebenen Übergangsraten erhält man die Linienformen der Photolumineszenz. So gilt für die spontane Lumineszenz näherungsweise:

$$I_{spon}(E) \propto r_{spon}(E)$$
 . (3.6)

Nach [50] gilt für die Intensität der stimulierten Emission:

$$I_{stim}(E) \propto \frac{r_{spon}(E)}{r_{stim}(E)} \left( e^{g(I_{ex},E)\cdot L} - 1 \right) \quad . \tag{3.7}$$

Dabei ist  $g(I_{ex}, E) = C(I_{ex}) \cdot r_{stim}(E)$  der Gewinn pro Längeneinheit und L die Länge der Strecke, auf der die Verstärkung stattfindet.  $g(I_{ex}, E)$  ist proportional zur Rate der stimulierten Emission und steigt mit der Intensität der Anregung  $I_{ex}$ . Für den Fall niedriger Anregung ist sowohl  $r_{stim}$  als auch der Gewinn g negativ und die beobachtete Lumineszenz ist ausschließlich spontanenen Ursprungs. Bei Durchlaufen der Strecke L innerhalb der Probe wird diese gedämpft und nicht verstärkt. Für den Fall hinreichend hoher Anregung wird  $C(I_{ex})$  groß und  $r_{stim} > 0$ . Daraus ergibt sich daß g positiv ist, und die beobachtete Lumineszenz enthält damit Beiträge spontaner und stimulierter Übergänge. Das Verhältnis von  $I_{stim}/I_{spon}$  nimmt über die Strecke L exponentiell zu und der stimulierte Anteil wächst über den spontanen. Dieses Verhalten entspricht einem Laser ohne Resonator, wobei die emittierte Strahlung "Superstrahlung" genannt wird.

# 3.2 Optische Spinorientierung

Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit der optischen Spinorientierung in III-V Halbleitern. Ein allgemeiner Überblick über diesen Halbleitertyp wurde bereits in Kapitel 2.1 gegeben.

Durch Absorption eines Photons mit der Energie  $E > E_g$  (vgl. Abb. 2.1) wird ein Elektron im Leitungsband und ein Loch im Valenzband erzeugt. Diese Interbandabsorption gehorcht nicht nur der Energieerhaltung, sondern ebenfalls den Auswahlregeln der Drehimpulserhaltung. Dies bedeutet, daß die Änderung des Gesamtdrehimpulses von Elektron und Loch genau so groß ist, wie der Drehimpuls des absorbierten Photons. Die Projektion des Drehimpulses eines Photons auf die Richtung des Wellenvektors  $\vec{k}$  ist für rechts- oder linkszirkular polarisiertes Licht +1 oder -1. Dieser Drehimpuls wird bei Absorption bzw. Emission entsprechend den Auswahlregeln auf Elektron und Loch aufgeteilt, was zu einer Ausrichtung der Spins führt. Aufgrund verschiedener Relaxationsprozesse kommt es während der Lebensdauer der Ladungsträger zu einer Abnahme der erzeugten Orientierung der Ladungsträger. Im Allgemeinen ist die Spinlebenszeit von Löchern in n- dotierten Materialien in zwei- und dreidimensionalen Systemen viel kürzer als für Elektronen in p- dotierten Halbleitern [51]. Aus diesem Grund läßt sich meist nur eine Polarisation des Elektronenspinsystems beobachten.

Das eingestrahlte Licht in unserem Experiment ist nahezu 100% zirkular polarisiert, was auf oben beschriebene Weise zu einer Polarisation des Elektronensystems führt. Dieses als "optisches Pumpen" bezeichnete Prinzip wurde erstmals von Kastler [52] im Jahre 1950 vorgeschlagen. Ist zum Zeitpunkt der strahlenden Rekombination noch eine Orientierung des Elektronenspinsystems vorhanden, so wird das Photolumineszenzlicht eine Polarisation aufweisen [53]. Damit ist dessen zirkularer Polarisationsgrad P

$$P = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}}$$
(3.8)

ein Abbild der Spinorientierung des Elektronensystems.  $I_{\sigma^+}$  und  $I_{\sigma^-}$  stellen dabei die Intensitäten von rechts- bzw. linkszirkular polarisiertem Licht dar.

Der Mechanismus des optischen Pumpens soll anhand von Abb. 3.3 diskutiert werden. Die Abbildung zeigt einen schematischen Ausschnitt aus der Bandstruk-



Abbildung 3.3: Oben: Anregung von Elektronen mit rechtszirkular polarisiertem Licht aus hh- und lh- Valenzband ins Leitungsband. Die Zahlen an den Pfeilen geben die relativen Übergangswahrscheinlichkeiten an. Unten: Emission von rechts- (durchgezogene Pfeile) und linkszirkular (gestrichelte Pfeile) polarisiertem Licht mit den entsprechenden relativen Wahrscheinlichkeiten.

tur eines III-V Halbleiters am Γ- Punkt der Brillouinzone, gemäß Abb. 2.1. Zur besseren Übersicht sind lediglich schweres (hh) und leichtes Lochband (lh) sowie das unterste Leitungsband (cb) skizziert. Auf die Darstellung des splitt- of Bandes wurde verzichtet, da hier nur der Fall von Anregungsenergien  $E_{Photon} < E_g + \Delta$ betrachtet werden soll. Für Energien  $E_{Photon} > E_g + \Delta$  ist nach [54] keine Spinpola-

risation der Elektronen zu erwarten. Da es sich bei den in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunktproben um Halbleiter mit reduzierter Dimensionalität handelt, sind in Abb. 3.3 die Bänder der schweren und leichten Löcher aufgespalten, wie in Kapitel 2.1 erklärt wurde. Die obere Skizze in Abb. 3.3 zeigt, wie rechtszirkular polarisiertes Licht absorbiert wird. Dabei verhalten sich die Ubergangswahrscheinlichkeiten von hh  $\rightarrow$  cb zu lh  $\rightarrow$  cb wie 3 zu 1. Wegen der Auswahlregel  $\Delta m_i = +1$  für die Absorption von rechtszirkular polarisiertem Licht sind nur die Übergänge von  $m_j = -3/2 \rightarrow m_j = -1/2$  bzw.  $m_j = -1/2 \rightarrow m_j = +1/2$  erlaubt. Werden die Elektronen höher ins Leitungsband angeregt, relaxieren sie in dessen Minimum mit einer typischen Zeitkonstante von  $10^{-12}$  sec. Durch die Besetzung der beiden cb- Niveaus im Verhältnis von 3 zu 1 ergibt sich ein maximaler Polarisationsgrad der Elektronen von 50%. Der Mittelwert des Spins < S > der Elektronen unterscheidet sich aufgrund von Relaxationsprozessen von dem ursprünglichen Wert  $S_0$ direkt nach der Anregung, wobei das Verhältnis der Lebensdauer  $\tau$  der Elektronen im Leitungsband zu der Spinrelaxationszeit  $\tau_s$  die entscheidende Größe ist. Nach [53] gilt für den Mittelwert des Spins:

$$\langle S \rangle = \frac{S_0}{1 + \frac{\tau}{\tau_s}} \quad . \tag{3.9}$$

Wie aus dieser Gleichung zu erkennen ist, wird für  $\tau_s \ll \tau$  die Spinorientierung praktisch vollkommen zerstört, während für den Fall  $\tau_s \gg \tau$  die Spinorientierung im Gleichgewicht identisch zu der direkt nach der Anregung ist ( $\langle S \rangle = S_0$ ).

Für die Relaxation der Elektronenspins werden eine Vielzahl von Mechanismen diskutiert, auf die an dieser Stelle nicht näher eingegangen werden soll. Eine ausführliche Abhandlung findet sich beispielsweise in Pikus & Titkov [55]. Hier sei lediglich erwähnt, daß es aufgrund der Hyperfeinwechselwirkung der Elektronenspins mit den magnetischen Momenten der Kerne zu einer Relaxation der Elektronenspins kommen kann [56, 57]. Dieser Prozess wird im Kapitel der optisch detektierten Kernspinresonanz die zentrale Rolle übernehmen.

Im unteren Bild der Abb. 3.3 ist der Prozess der strahlenden Rekombination, also der Emission eines Photons eingezeichnet. Für diese Emission gelten dieselben Übergangswahrscheinlichkeiten von cb nach hh bzw. Ih wie bei der Anregung. Im Gegensatz zur Absorption sind bei der Emission die Übergänge mit  $\Delta m_j = \pm 1$ erlaubt, was der Aussendung von Photonen mit rechts- bzw. linkszirkularer Polarisation entspricht. Lassen sich diese beiden Übergänge bei hinreichend guter spektraler Auflösung trennen, so erhält man für die lh- und hh- Rekombination den gleichen Polarisationsgrad P wie für die Elektronen (maximal 50%). Geht man von einer Besetzung der cb- Niveaus im Verhältnis von 3 : 1 aus, wie sie durch gleichzeitige Anregung von Elektronen vom hh- und lh- Valenzband mit rechtszirkular polarisiertem Licht erreicht wird, so ergeben sich für den Polarisationsgrad P der Photolumineszenz von hh- Rekombination +0.5 und von der lh- Rekombination -0.5. Damit besitzen hh- und lh- Rekombination ein entgegengesetztes Vorzeichen. Lassen sich die beiden Niveaus spektral nicht trennen, so halbiert sich der Maximalwert der Polarisation auf 25%, was dem Fall der Entartung der beiden Niveaus entspricht, wie man es im Volumenmaterial vorfindet. Es sei noch auf die Möglichkeit verwiesen, daß durch selektives Anregen der schweren Löcher 100% Polarisation der Elektronen erreicht werden kann. Dies wurde bei den hier beschriebenen Experimenten nicht ausgenutzt.

# 3.2.1 Wechselwirkung zwischen Elektronen und Kernspin im longitudinalen Magnetfeld

In diesem Kapitel wird der Fall, daß ein externes Magnetfeld  $\vec{B}_0$  in z- Richtung anliegt beschrieben. Außerdem wird der Kernspin  $\vec{I}$  und seine Wechselwirkung mit dem Elektronenspin  $\vec{S}$  einbezogen.

Die Gesamtenergie von Elektronenspin  $\vec{S}$  und Kernspin  $\vec{I}$  wird durch den Eigenwert des Spin- Hamiltonoperators

$$\hat{H} = \hat{H}_S + \hat{H}_I + \hat{H}_{SI}$$
 (3.10)

bestimmt. Der erste Term  $\hat{H}_S$  beschreibt in einem longitudinalen Magnetfeld  $\vec{B}_0 \parallel \hat{z}$  die Zeeman- Aufspaltung der Elektonenspinniveaus und es gilt

$$\hat{H}_S = -g^* \mu_B \hat{S}_z B_0 \quad ; \quad E_S = -g^* \mu_B m_s B_0 \quad , \tag{3.11}$$

wobe<br/>i $m_s$  die Eigenwerte des dimensionslosen Elektron<br/>enspinoperators  $\hat{S}_z$  in z- Richtung beschreiben.<br/>  $g^*$ ist der effektive Elektron Landée- Faktor und<br/>  $\mu_B$  das Bohrsche Magneton. Der Wert von<br/>  $g^*$  weicht in Halbleitern von dem des freien Elektron<br/>s mit  $g \approx 2$  ab, da der Bahndrehimpuls benachbarter Bänder an den Elektronenspin im Leitungsband koppelt.

Der zweite Term  $H_I$  in Gl. 3.10 beschreibt die zu den Elektronen äquivalente Zeeman-Aufspaltung der Kernspinniveaus. Analog gilt

$$\hat{H}_I = -\gamma_n \hbar \hat{I}_z B_0 \quad ; \quad E_I = -\gamma_n \hbar m_I B_0 \quad \text{mit} \quad m_I = I, I - 1, ..., -I \quad , \qquad (3.12)$$

falls wiederum das Magnetfeld in z- Richtung angelegt ist. Das gyromagnetische Verhältnis  $\gamma_n$  beschreibt die Größe des magnetischen Moments des Kernspins I.  $m_I$  sind die Eigenwerte des Kernspinoperators  $\hat{I}_z$ .

Die energetischen Abstände der Elektronenspin- und Kernspin- Zeeman- Niveaus ergeben sich damit zu:

$$\Delta E_S = g^* \mu_B B_0 \tag{3.13}$$

$$\Delta E_I = \gamma_n \hbar B_0 \quad . \tag{3.14}$$

Die Auswahlregeln für magnetische Dipolübergänge lauten für  $\Delta m_I$  bzw.  $\Delta m_S = \pm 1$ . Damit tritt gerade für eine Frequenz  $\omega = \Delta E_{S/I}/\hbar$  Resonanzabsorption auf.

Zur Beschreibung der Wechselwirkung der magnetischen Momente von Elektronen und Kernen ist der dritte Term  $H_{SI}$  in Gl. 3.10 verantwortlich. Dabei handelt es sich um die sogenannte Hyperfeinwechselwirkung (HFI). Verglichen mit Atomen und Molekülen besitzt die HFI für Leitungselektronen eine sehr kurze Korrelationszeit  $\tau_c$ . HFI beschreibt die Wechselwirkung des elektronischen Moments und des Kernmoments an einem bestimmten Kernort. Insbesondere ist  $\tau_c$  klein gegenüber der inversen HFI- Frequenz ( $\tau_c \ll h/A$ , A: Hyperfeinwechselwirkungskonstante). Durch Bildung des Ensemblemittelwertes der HFI wird die von der Atomspektroskopie bekannte Hyperfeinaufspaltung unschärfer. Weiterhin führt dies zu einer Verschiebung der Resonanzfrequenz der Leitungselektronen, da diese die Polarisation der Kernmomente sehen, was als "Overhauser- Verschiebung" bekannt ist [58]. Vise versa wird die Resonanzfrequenz der Kerne durch die Polarisation der magnetischen Momente der Elektronen verstimmt ("Knight- Verschiebung"). Die für diese Arbeit wichtigste Folge der kurzen Korrelationszeit  $\tau_c$  ist, daß die Kernspins über die Elektronen dynamisch polarisiert werden können. Damit lassen sich Kernspinpolarisationen weit über dem thermischen Gleichgewicht erreichen. Diese dynamische Kernspinpolarisation wird im nächsten Kapitel beschrieben.

Der Term der HFI läßt sich in zwei Anteile, die Fermi- Kontaktwechselwirkung  $\hat{H}_F$ und die Dipol- Dipolwechselwirkung  $\hat{H}_{dip}$  trennen.  $\hat{H}_{dip}$  ist proportional zu  $1/\sqrt{r^3}$ , wobei r der Abstand der Dipole ist. Dieser Term ist in kubischen Kristallen kaum von Bedeutung [59]. Die Fermi- Kontaktwechselwirkung  $\hat{H}_F$  beruht auf der nicht verschwindenden Aufenthaltswahrscheinlichkeit  $|\Psi(r=0)|^2$  eines Elektrons am Kernort und tritt deshalb auch bei Kristallen mit kubischer Symmetrie auf. Der Operator der Fermi- Kontaktwechselwirkung läßt sich als

$$\hat{H}_F = \hat{S}\tilde{A}\hat{I} \tag{3.15}$$

schreiben. Für kubische Kristalle reduziert sich der Hyperfeinwechselwirkungs-Tensor  $\tilde{A}$  auf die skalare Hyperfeinwechselwirkungskonstante A. Für ein externes Magnetfeld in z- Richtung erhält man:

$$\hat{S}A\hat{I} = A(S_xI_x + S_yI_y + S_zI_z)$$
 . (3.16)

Mit Hilfe der Operatoren  $\hat{S}_+ = S_x + iS_y$  und  $\hat{S}_- = S_x - iS_y$  für die Elektronenspins und analogen Kletteroperatoren für die Kernspins ergibt sich

$$\hat{S}A\hat{I} = \frac{1}{2}A(\hat{I}_{+}\hat{S}_{-} + \hat{I}_{-}\hat{S}_{+}) + AI_{z}S_{z} \quad .$$
(3.17)

Die für sogenannte Flip- Flop- Prozesse verantwortlichen Terme  $\hat{I}_{\pm}\hat{S}_{\pm}$  beschreiben Vorgänge, bei welchen sich die z- Komponenten von Elektronenspin und Kernspin wechselseitig um 1 erhöhen oder erniedrigen.

Während der Lebensdauer eines Elektrons im Leitungsband wird es von vielen Kernen beeinflußt. Dies gilt in umgekehrter Weise ebenfalls für die Kerne. Damit bleiben bei der Mittelung über Ensembles von Kernen und Elektronen lediglich die z-Komponenten  $\langle \hat{I}_z \rangle$  und  $\langle \hat{S}_z \rangle$  Erhaltungsgrößen. Faßt man in dem gesamten Hamiltonoperator aus Gl. 3.10 die Terme für die Kerne und Elektronen zusammen, so erhält man entsprechend

$$H_n = -\gamma_n \hbar B_0 \hat{I}_z + A < S_z > I_z = -\gamma_n \hbar B_0 (1+K) \hat{I}_z$$
(3.18)

$$H_e = g^* \mu_b B_0 S_z + A < I_z > S_z = g^* \mu_B B_0 (1+D) S_z \quad . \tag{3.19}$$

Die beiden so erhaltenen Terme beschreiben quantitativ die bereits vorher erwähnte Verschiebung der Resonanzfrequenzen von Kernen und Elektronen. Dabei bezeichnet

$$K := -\frac{A < S_z >}{\gamma_n \hbar B_0} \tag{3.20}$$

die Knight- Verschiebung der Kernspinresonanzfrequenz [60] und

$$D := \frac{A < I_z >}{g^* \mu_B B_0} \tag{3.21}$$

die Overhauser- Verschiebung der Elektronenresonanzfrequenz [60]. Der Ursprung dieser beiden Effekte ist die nicht verschwindende Hyperfeinwechselwirkungskonstante A, in welche die Aufenthaltswahrscheinlichkeit eines Elektrons am Kernort  $\vec{r}_k$  eingeht und durch

$$A = \frac{2}{3}g^*\mu_B \hbar \gamma_n |\Psi(\vec{r}_k)|^2 \tag{3.22}$$

beschrieben wird.

### 3.2.2 Dynamische Kernspinpolarisation

In Metallen und Halbleitern gewinnen die in Gl. 3.17 auftretenden Flip- Flop- Terme insbesondere bei tiefen Temperaturen an Bedeutung. Jede Abweichung des Elektronenspinsystems  $\langle S_z \rangle$  vom thermischen Gleichgewicht  $\langle S_z \rangle_0$  wird teilweise auf das Kernspinsystem übertragen [61]. Wird beispielsweise durch optisches Pumpen eine Nichtgleichgewichtsbesetzung des Elektronenspinsystems erzeugt, so polarisiert man das Kernspinsystem dynamisch. Prinzipiell ist auch der entgegengesetzte Prozess denkbar, nämlich daß die Elektronen über die Kerne dynamisch polarisiert werden können. Da aber die Relaxationszeit der Elektronen  $T_{1e}$  viel kürzer ist als die der Kerne  $(T_{1n})$ , beobachtet man keine dynamische Polarisation der Elektronen durch die Kerne über Flip- Flop- Prozesse.

## 3.2.3 Hanle- Effekt

Voraussetzung zur Beobachtung dieses Effektes ist, daß das Elektronenspinsystem durch optisches Pumpen polarisiert worden ist. Damit zeigt die Photolumineszenz zirkulare Polarisation mit einem bestimmten Polarisationsgrad. Die Messung des Hanle- Effekts erfolgt in der sogenannten Voigt- Geometrie, d.h. daß ein Magnetfeld senkrecht zum Wellenvektor  $\vec{k}$  des Lichtes angelegt wird. Experimentell beobachtet man in dieser Geometrie eine Depolarisation der Lumineszenz mit zunehmendem Magnetfeld. Dies wurde erstmals von Hanle im Jahre 1924 an der Resonanzfluoreszenz von Gasen beobachtet [62] und deshalb Hanle- Effekt genannt. Erst im Jahr 1969 gelang es Parsons [63] diesen Effekt in Halbleitern zu beobachten. Grundlage zum Verständnis dieses Phänomens ist die Präzession des Spins der photoangeregten Elektronen im externen Magnetfeld  $B_0$  mit der Lamorfrequenz  $\Omega = g^* \mu_B B/\hbar$ . Wir nehmen an, daß der Wellenvektor  $\vec{k}$  des Lichts in z- Richtung zeigt. Wegen der Präzession um die Richtung von  $\vec{B}$  ( $\vec{k} \perp \vec{B}$ ) ändert sich die Richtung der Spins periodisch mit der Frequenz  $\Omega$ . Dies führt im zeitlichen Mittel zu einer Abnahme der Spinpolarisation.

Die Spinlebensdauer  $T_s$  definiert man als

$$\frac{1}{T_s} = \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau_s} \quad . \tag{3.23}$$

Ist die Lebensdauer  $\tau$  des Elektrons so groß, daß sein Spin während dieser Zeit mehrere Umdrehungen ausführen kann, so ist die mittlere Spinorientierung und damit die Polarisation der Lumineszenz sehr klein. Die Komponente des Spins parallel zur Richtung des Lichts nimmt also mit der Drehung um  $\vec{B}$  ab. Die zeitliche Entwicklung der Elektronenspinkomponente in z- Richtung ist unter Berücksichtigung der Spinrelaxationszeit  $\tau_s$ 

$$S_z(t) = S_0 \cos(\Omega t) \exp(-\frac{t}{\tau_s}) \quad . \tag{3.24}$$

Berücksichtigt man weiterhin, daß der Ensemblemittelwert des Elektronenspins durch Interbandrelaxationsprozesse gemäß  $exp(-\frac{t}{\tau})$  abnimmt, so läßt sich der zeitliche Mittelwert der z- Komponente des Spins nach

$$\langle S_z \rangle = S_0 \cdot \int_0^\infty dt \frac{1}{\tau} exp(-\frac{t}{\tau}) cos(\Omega t) exp(-\frac{t}{\tau_s})$$
(3.25)

berechnen. Das Integral in Gl. 3.25 läßt sich analytisch lösen, und man erhält die als Hanle- Kurve ohne Kernfeld bekannte Formel

$$\langle S_z(B) \rangle = \frac{S_z(0)}{1 + (\Omega T_s)^2} \quad \text{mit} \quad \langle S_z(0) \rangle = \frac{S_0}{1 + \tau/\tau_s} \quad .$$
 (3.26)

Hierbei erkennt man die lorentzförmige Abhängigkeit des Mittelwerts der Elektronenspins  $\langle S_z(B) \rangle$  vom Magnetfeld *B*. Für B = 0 ergibt sich der im vorhergehenden Abschnitt ermittelte Wert für den Polarisationsgrad der Elektronen von maximal 0.5. Durch die Substitution

$$\Delta B = \frac{\hbar}{g^* \mu_B T_s} \tag{3.27}$$

erhält man aus Gl. 3.26 für den Polarisationsgrad der Elektronen:

$$P_{el}(B) = P_{el}(0) \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{B}{\Delta B}\right)^2}$$
 (3.28)

Diese Polarisation des Elektronensystems findet sich im zirkularen Polarisationsgrad der Photolumineszenz wieder. Wie oben ausgeführt ist  $P_{PL} = P_{el}$ , wenn die  $cb \rightarrow hh$ und  $cb \rightarrow lh$  Übergänge spektral getrennt werden können und  $P_{PL} = 0.5 \cdot P_{el}$  sonst. Durch Anpassung der zu Gl. 3.28 analogen Beziehung an die experimentell ermittelte Abhängigkeit des zirkularen Polarisationsgrades vom angelegten Magnetfeld läßt sich aus der entsprechenden Halbwertsbreite und Gl. 3.27 die Spinlebenszeit  $T_s$ berechnen, falls der g- Faktor bekannt ist.

Im weiteren Verlauf dieses Kapitels wird der Fall diskutiert, daß der  $\vec{k}$ - Vektor des einfallenden Lichts zusammen mit der Richtung des externen Magnetfeldes  $\vec{B}_{ext}$ einen Winkel von  $0 < \Theta < 90^{\circ}$  einschließt. Diese Geometrie ist im linken Bild von Abb. 3.4 dargestellt. Durch die im vorhergehenden Kapitel diskutierten Flip- Flop-Prozesse werden die Kernspins dyamisch polarisiert und führen zu einem Kernfeld  $\vec{B}_n$  in Richtung von  $\vec{k}$ . Ohne angelegtes äußeres Magnetfeld ist dieses Kernfeld



Abbildung 3.4: Links: Präzession eines in  $\vec{k}$ - Richtung ausgerichteten Kernspins um das externe Feld  $\vec{B}_{ext}$ . Rechts: Hanle- Effekt ohne (gestrichelte Linie) und mit (durchgezogene Linie) Kernfeld (aus [64] entnommen).

rein longitudinal und führt zu keinem Hanle- Effekt. Durch Anlegen eines externen Magnetfelds beginnen die Kernspins um das externe Magnetfeld zu präzedieren und erzeugen dabei ein Kernfeld mit einer Komponente in Richtung des äußeren Feldes von der Größe  $\vec{B}_{n,eff} = \vec{B}_n \cdot cos\Theta$  (vgl. Abb. 3.4). Mit steigendem externen Magnetfeld nimmt aufgrund des Hanle- Effektes der Polarisationsgrad der Photolumineszenz ab, wie im rechten Bild der Abb. 3.4 zu sehen ist. Bei einem externen Magnetfeld der Größe  $\vec{B}_{ext} = \vec{B}_n \cdot cos\Theta$  kompensiert dieses gerade das Kernfeld, und es existiert kein transversales Magnetfeld und somit kein Hanle- Effekt. Damit steigt der Polarisationsgrad bei endlichem Feld wieder an und erreicht sein Maximum dort, wo sich beide Felder zu Null addieren. Mit weiter steigendem externen Feld sinkt der Polarisationsgrad aufgrund des Hanle- Effektes. Dieses als "schräger Hanle- Effekt" bekannte Phänomen ist in dem rechten Bild von Abb. 3.4 dargestellt. Mit Hilfe dieses Effektes ist man in der Lage, das Kernfeld experimentell zu bestimmen, da das Maximum der Polarisation bei endlichem Magnetfeld bei  $\vec{B}_n \cdot cos\Theta$  liegt.

Abbildung 3.5 zeigt typische Hanle- Effekt Messungen an der bereits aus Kapitel 3.1 bekannten p- dotierten GaAs- AlGaAs Heterostruktur bei einer Temperatur von 1.8 K. Die Strahlung einer Laserdiode (780 nm, 1.59 eV), mit einer Leistung von



Abbildung 3.5: (a) Hanle- Effekt Messungen an einer p- dotierten GaAs- AlGaAs Heterostruktur mit angepaßter theoretischer Kurve.(b) zeigt die Messung des schrägen Hanle- Effektes an der selben Probe.

17 mW, diente zum optischen Pumpen. Der Nachweis des zirkularen Polarisations-

grades erfolgte bei einer Wellenlänge von 817 nm (vgl. Abb. 3.2) im Maximum des Photolumineszenzspektrums. Bild (a) zeigt, daß der zirkulare Polarisationsgrad von 20% für B = 0 im rein transversalen Magnetfeld abnimmt. Die durch Gl. 3.28 angepaßte Kurve ist ebenfalls eingezeichnet, wobei die Halbwertsbreite 7.8 mT beträgt. In Bild (b) ist eine Messung des schrägen Hanle- Effekts an der selben Probe gezeigt, wobei zwischen dem Wellenvektor  $\vec{k}$  des einfallenden Lichts und der Richtung des Magnetfeldes ein Winkel von etwa 10° bestand. Für kleine Magnetfelder nimmt der Polarisationsgrad für B > 0 rasch ab. Ab 13.4 mT steigt der zirkulare Polarisationsgrad wieder an, um bei 14.8 mT ein Maximum zu erreichen. Für weiter steigendes Magnetfeld sinkt der Polarisationsgrad bis er schließlich verschwindet. Die Beobachtung eines solch ausgeprägten schrägen Hanle- Effekts ist ein klarer Hinweis darauf, daß die Kernspins dynamisch polarisiert sind.

# 3.2.4 Optisch detektierte Kernspinresonanz ODNMR



Abbildung 3.6: Skizze zur "rotatingframe- theory"; Entstehung des effektiven Feldes. Bezeichnungen sind im Text erklärt.

Durch die bereits beschriebene dynamische Kernspinpolarisation kann durch optisches Pumpen mit rechts- bzw. linkszirkular polarisiertem Licht eine Ausrichtung der Kernspins parallel oder antiparallel zu dem äußeren Magnetfeld  $\vec{B}_0 =$  $B \cdot \hat{z}$  erreicht werden, wenn der  $\vec{k}$ - Vektor des anregenden Lichts parallel zu  $\vec{B}$ ist. Durch Einstrahlung eines Radiofrequenzfeldes mit der Kreisfrequenz  $\omega$  erzeugt man ein weiteres, mit dieser Frequenz in der xy- Ebene rotierendes Feld  $\vec{B}_2$ . Aufgrund einer Transformation in ein Koordinatensystem, das mit der Frequenz  $\omega$  um die z- Achse rotiert, läßt sich das B<sub>2</sub>- Feld ohne Beschränkung der Allgemeinheit auf die x'- Achse legen. Diese Transformation wird als "rotating frame" Theorie bezeichnet. Aus der Transformation resultiert ein fiktives Feld  $\vec{\omega}/\gamma$  in negativer z- Richtung. Abbildung 3.6 zeigt schematisch die Anordnung der entsprechenden Felder. Das Gesamtfeld  $\vec{B}_{eff}$  ergibt sich zu

$$\vec{B}_{eff} = \vec{B}_0 + \frac{\vec{\omega}}{\gamma} + \vec{B}_2 \quad ,$$
 (3.29)

wobei  $\gamma$  wie üblich das gyromagnetische Verhältnis ist. Für den Fall, daß  $\omega$  der Resonanzfrequenz  $\omega_0 = -\gamma B_0$  entspricht, kompensiert das fiktive Feld völlig das äußere Feld  $\vec{B}_0$ , und das effektive Feld  $\vec{B}_{eff}$  steht senkrecht zum äußeren Feld  $\vec{B}_0$ . Das Durchfahren der Kernresonanz mittels Durchstimmung der Radiofrequenz  $\omega$ entspricht in diesem Bild der Drehung des Vektors  $\vec{B}_{eff}$  in der x'z- Ebene. Während der Passage der Resonanz ist die Richtung des effektiven Feldes  $\vec{B}_{eff}$  nicht parallel zur z- Richtung. Wird die Resonanz adiabatisch durchfahren, so folgt der Kernspinvektor der in Resonanz befindlichen Kernsorte zu jeder Zeit dem effektiven Feld  $\vec{B}_{eff}$ .

Die spinpolarisierten Elektronen werden von dem äußeren Feld  $\vec{B}_0$  und dem Feld der Kerne  $\vec{B}_i$  beeinflußt. Das für die Elektronenspins relevante magnetische Feld  $\vec{B}_{Ges}$  ist nach Abb. 3.7 nicht parallel zu  $\vec{B}_0$ , falls sich eine Kernsorte in Resonanz befindet und ihr entsprechendes  $\vec{B}_i$  aus der Richtung von  $\vec{B}_0$  herausgedreht ist. Damit präzedieren

# Parallele Geometrie







Abbildung 3.7: Geometrisches Modell der ODNMR. Parallele und antiparallele Geometrie.  $B_0$ : externes Magnetfeld;  $B_{j1}$  bzw.  $B_{j2}$ : Kernfelder der nicht in Resonanz befindlichen Kerne;  $B_i$ : Kernfeld des in Resonanz befindlichen Kerns;  $\Theta$ : Winkel des schrägen Hanle-Effekts.

die Elektronenspins um die durch  $\vec{B}_{Ges}$  gebildete Achse, und die Spinpolarisation der Elektronen wird vermindert. Für den Fall, daß beim Durchfahren der Radiofrequenz die Resonanzbedingung  $\omega = -\gamma B_0$  für einen Kernspin erfüllt ist, erwartet man damit einen Einbruch des zirkularen Polarisationsgrades. Diese Tatsache bildet den experimentellen Zugang zur optisch detektierten Kernspinresonanz (ODNMR). Dabei wird die Kernspinresonanz über die Abnahme des zirkularen Polarisationsgrades der Photolumineszenz, welcher von der Ausrichtung der Elektronenspins herrührt, nachgewiesen.

Wie bereits zu Beginn dieses Kapitels erwähnt wurde, können sich die Kernspins je nach zirkularer Polarisation des Pumplasers parallel oder antiparallel zum äußeren Feld  $\vec{B}_0$  einstellen. Lenkt man nun eines der Kernfelder beim Durchfahren der Resonanz aus, so entsteht zwischen den Elektronenspins ( $\vec{B}_0$ - Richtung) und dem Gesamtfeld  $\vec{B}_{ges}$  der bereits erwähnte Winkel  $\Theta$ . Dieser ist für die antiparallele Geometrie viel größer als für die parallele Geometrie, wie aus Abb. 3.7 ersichtlich ist. Damit ist die Depolarisation der Elektronenspins durch den schrägen Hanle- Effekt für die antiparallele Geometrie stärker, und entsprechend verbessert sich das Signal-Rausch- Verhältnis der ODNMR. Deshalb sind für Experimente die Polarisation des Pumplasers und die Richtung des externen Magnetfeldes  $\vec{B}_0$  gemäß der antiparallelen Geometrie zu wählen.

In Abb. 3.8 ist eine typische Messung von optisch detektierter Kernspinresonanz gezeigt. Als Probe diente die bereits in den vorherigen Kapiteln beschriebene p- dotierte GaAs- AlGaAs Heterostruktur. Mit Hilfe einer Laserdiode (780 nm, 1.59 eV) wurde das Elektronspinsystem orientiert. Die Kernspins wurden dabei dynamisch über die Elektronen polarisiert. Weiterhin erfolgte die Messung bei einer Temperatur von 1.8 K in einem longitudinalen Magnetfeld von 355 mT. Abbildung 3.8 zeigt den zirkularen Polarisationsgrad als Funktion der eingestrahlten Radiofrequenz. Die beobachteten Einbrüche im Polarisationsgrad sind dem Durchfahren der Kernspinresonanzen des <sup>75</sup>As, <sup>69</sup>Ga und <sup>71</sup>Ga Kerns zuzuordnen.

Weiterhin sei noch angemerkt, daß Proben mit einer langen Lebenszeit der Elektronenspins und einer damit verbundenen schmalen Hanle- Kurve besonders gut zur Messung der ODNMR geeignet sind.



Abbildung 3.8: Optisch detektierte Kernspinresonanz an einer pdotierten GaAs- AlGaAs Heterostruktur.

# 3.3 Magnetooptische Interbandabsorption

In Kapitel 2.2 wurde die Bandstruktur der IV-VI Halbleiter eingehend diskutiert. Zur exakten Bestimmung aller notwendigen Bandparameter ist die Untersuchung von Interband- als auch von Intrabandübergängen unerläßlich. Mit Hilfe der im nächsten Kapitel erwähnten kohärenten Ramanspektroskopie ist die präzise Bestimmung von Intrabandresonanzen möglich. Die Energien von Interbandübergängen zwischen den Landauniveaus der IV-VI Halbleiter können am genauesten durch Absorptionsmessungen in einem äußeren Magnetfeld bestimmt werden. Zu diesem Zweck wird die zu untersuchende Probe mit Licht geeigneter Polarisation und einer Photonenenergie größer als der fundamentalen Energielücke bestrahlt und die transmittierte Intensität in einem äußeren Magnetfeld detektiert. Da die Interbandabsorption mit zunehmender Photonenenergie stark zunimmt, ist die Dicke der Probe auf wenige Mikrometer beschränkt. Zur praktischen Durchführung von magnetooptischen Transmissionsmessungen sind folgende zwei Varianten denkbar. Zum einen



Abbildung 3.9: Auswahlregeln für Interbandübergänge nach Zawadzki [65] und Smith [66].

läßt sich bei einem konstanten Magnetfeld die Energie der einfallenden Photonen kontinuierlich ändern. Zum anderen ist es möglich, bei vorgegebener Photonenenergie das Magnetfeld zu variieren. Da die Energielücke der hier untersuchten IV-VI Halbleiter im infraroten Spektralbereich liegt und es dafür keine leicht zu benutzenden kohärenten, durchstimmbaren Lichtquellen gibt, wurde der oben erwähnten zweiten Variante der Vorzug gegeben. Des weiteren würden bei kontinuierlicher Änderung der Wellenlänge des einfallenden Lichtes die starken Absorptionslinien der Atmosphäre in diesem Spektralbereich und Fabry- Perot Interferenzen an den dünnen Proben störend wirken.

Wie aus Kapitel 2.2 bekannt ist, handelt es sich bei den IV-VI Halbleitern um Halbleiter mit kleiner, direkter Energielücke. Aus diesem Grund erfolgt die Interbandabsorption am stärksten durch direkte Übergänge vom Valenz- ins Leitungsband bei  $\vec{k} = 0$ . Dabei hat sich gezeigt, daß sich diese Übergangsenergien aus den Positionen der Transmissionsminima entnehmen lassen. Die dazugehörigen Auswahlregeln wurden von Zawadzki [65] und Smith [66] bestimmt und sind in Abb. 3.9 zusammengefaßt. Danach sind in Faraday- Konfiguration, was bedeutet, daß der  $\vec{k}$ - Vektor des einfallenden Lichtes parallel zum Magnetfeld  $\vec{B}$  ( $\vec{B} \parallel < 111 >$ ) ist, für rechtszirkular polarisiertes Licht die Übergänge  $\Delta n = 0$  und  $\Delta s = +1$  und für linkszirkular polarisiertes Licht die Übergänge  $\Delta n = 0$  und  $\Delta s = -1$  erlaubt. In Voigt- Konfiguration, d.h.  $\vec{k} \perp \vec{B}$  ( $\vec{B} \parallel < 1\overline{10} >$ ) gelten für  $\vec{E} \parallel \vec{B}$  die Auswahlregeln  $\Delta n = 0$ 



Abbildung 3.10: Typische Magnetotransmissionsmessung an PbSeTe ( $x_{Se} = 87.7\%$ ) Mischkristallprobe (MBE1609) in Faraday- Konfiguration. Die Minima wurden den entsprechenden Übergängen mit der Landauquantenzahl n und dem beteiligten Tal zugeordnet (Notation: n / Tal).

und  $\Delta s = 0$  sowie für  $\vec{E} \perp \vec{B} \Delta n = 0$  und  $\Delta s = \pm 1$ . In dieser Notation bedeuten  $\Delta n$  und  $\Delta s$  die Differenzen der Landau- und Spinquantenzahlen der am Übergang beteiligten Niveaus und  $\vec{E}$  das elektrische Feld der einfallenden, linear polarisierten elektromagnetischen Welle.

Abbildung 3.10 zeigt eine typische Magnetotransmissionsmessung bei 1.8 K an einer PbSeTe ( $x_{Se} = 87.7\%$ , MBE1609) Mischkristallprobe in Faradaykonfiguration. Als Lichtquelle diente ein CO- Laser, der auf der Linie bei 1658  $cm^{-1}$  oszillierte. Die beobachteten Minima der Transmission wurden den eingezeichneten Übergängen mit den Landauquantenzahlen n und den beteiligten Tälern zugeordnet. In der Abbildung wurde die abkürzende Schreibweise n/ Tal verwendet.

### 3.4 Kohärente Ramanspektroskopie

Die Wechselwirkung von Licht mit Materie läßt sich klassisch mit Hilfe der Suszeptibilität  $\chi$  beschreiben, die den Zusammenhang zwischen dem elektrischen Feldvektor  $\vec{E}$  der elektromagnetischen Welle und der dadurch im Medium erzeugten dielektrischen Polarisation  $\vec{P}(\vec{E})$  wiedergibt. Für niedrige Intensitäten der einfallenden Lichtwelle beschreibt der lineare Zusammenhang  $\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E}$  die beobachteten Effekte in ausreichendem Maße. Bei höheren Intensitäten gewinnen nichtlineare optische Effekte an Bedeutung. Diese werden durch eine Reihenentwicklung der dielektrischen Polarisation  $\vec{P}(\vec{E})$  des Mediums nach Potenzen der elektrischen Feldstärke beschrieben:

$$P_{i} = \epsilon_{0} \left( \chi_{ij}^{(1)} E_{j} + \chi_{ijk}^{(2)} E_{j} E_{k} + \chi_{ijkl}^{(3)} E_{j} E_{k} E_{l} + \dots \right)$$
(3.30)

Hierbei bezeichnet  $P_i$  bzw.  $E_i$  die i- te Komponente der Polarisation bzw. der elektrischen Feldstärke. Die dielektrischen Suszeptibilitäten  $\chi^{(n)}$  sind Tensoren (n + 1)ter Ordnung. Eine ausführliche Darstellung der theoretischen Grundlagen findet sich in den Arbeiten von H. Pascher und F. Geist [67, 26].

Unter der kohärenten anti- Stokes Ramanstreuung (CARS) versteht man einen nichtlinearen optischen Prozess dritter Ordnung, hervorgerufen durch die Mischung von zwei Lichtwellen mit den Frequenzen  $\omega_L$  und  $\omega_S$  ( $\omega_S < \omega_L$ ), die in der zu untersuchenden Probe der Länge L überlagert werden. Dabei entsteht unter anderem Strahlung mit der Frequenz  $\omega_{AS} = 2\omega_L - \omega_S$  und der Intensität

$$I_{AS}(L) \propto L^2 \frac{\omega_{AS}^2}{n_{AS} n_L^2 n_S} |\chi^{(3)}|^2 I_S I_L^2 \cdot \left[ \frac{\sin(\Delta \vec{k} \cdot \vec{z_0} L/2)}{\Delta \vec{k} \cdot \vec{z_0} L/2} \right]^2 \quad . \tag{3.31}$$

Weiterhin sind  $I_L$ ,  $I_S$  die Pulsspitzenleistungen der beiden Laserstrahlen mit den entsprechenden Frequenzen und  $n_L$ ,  $n_{AS}$ ,  $n_S$  die korrespondierenden Brechungsindizes.  $\Delta \vec{k}$  ist definiert zu  $\Delta \vec{k} = 2\vec{k}_L - \vec{k}_S - \vec{k}_{AS}$ . Bei kolinearer Ausbreitung aller 3 Lichtbündel mit den Frequenzen  $\omega_L$ ,  $\omega_S$  und  $\omega_{AS}$  in einer dünnen Schicht längs der Normalen auf der Oberfläche, ist  $\vec{z}_0$  der Einheitsvektor in Wachstumsrichtung der Probe. Für epitaktisch gewachsene Proben ist  $L \ll \pi/\Delta k$  und der Phasenfaktor in Gl. 3.31 (der Faktor in eckigen Klammern) näherungsweise gleich 1. Bei gegebener Probengeometrie und bekannten anregenden Laserfrequenzen ist die Intensität des CARS- Signals durch die nichtlineare Suszeptibilität  $\chi^{(3)}$  bestimmt. Diese besitzt Maxima, wenn die Differenzenergie  $\hbar(\omega_L - \omega_S)$  der eingestrahlten Photonen einem erlaubten Ramanübergang in dem zu untersuchenden Material entspricht. Zusätzlich können noch weitere Maxima, hervorgerufen durch Resonanzen mit Interbandübergängen auftreten. Diese müssen sorgfältig von den Ramanübergängen unterschieden werden. Weiterhin mischen resonante und nichtresonante Beiträge der Suszeptibilität dritter Ordnung durch das Auftreten des Betragsquadrats von  $\chi^{(3)}$ in Gl. 3.31. All dies führt zu komplexen Linienformen, welche für eine präzise Interpretation Anpassungsrechnungen unverzichtbar machen.

Bei der in dieser Arbeit zur Anwendung gekommenen Durchführung des Experiments wurden die beiden Wellenlängen  $\omega_L$  und  $\omega_S$  vorgegeben. Die Probe befand sich in einem veränderlichen transversalen (Voigt- Konfiguration) Magnetfeld, wobei die Intensität  $I_{AS}$  in Abhängigkeit der Magnetfeldstärke registriert wurde. Dadurch werden Spinresonanzen der Ladungsträger in den Landauniveaus von Leitungs- und Valenzband nachgewiesen. Für diejenigen Magnetfelder, für welche die Spinaufspal-



Abbildung 3.11: Typische CARS Messung an PbSeTe ( $x_{Se} = 87.7\%$ , MBE1609) Mischkristallprobe. Die Maxima wurden den entsprechenden Übergängen mit der Landauquantenzahl n und dem beteiligten Tal zugeordnet.

tung der Energie  $\hbar(\omega_L - \omega_S)$  entspricht, erhält man Maxima in der Suszeptibilität. Bei den Extremwerten gilt somit:

$$\hbar(\omega_L - \omega_S) = g^* \mu_B B \quad . \tag{3.32}$$

Gleichung 3.32 zeigt, daß mit dieser Methode der effektive g<br/>- Faktor gemessen werden kann. Variiert man die beiden einzustrahlenden Laserfrequenzen<br/>  $\omega_L$  und  $\omega_S$  läßt

sich die Magnetfeldabhängigkeit des g- Faktors sehr präzise messen. Rückschlüsse auf die Bandstrukturparameter erhält man durch die Anpassung theoretischer Modelle.

Abbildung 3.11 zeigt eine typische CARS Messung an einer PbSeTe ( $x_{Se} = 87.7\%$ , MBE1609) Mischkristallprobe bei 1.8 K. Dabei wurde die Intensität der anti-Stokeslinie als Funktion des Magnetfeldes registriert. Als anregende Laserstrahlungsquellen dienten zwei CO<sub>2</sub>- Laser mit den Energien von  $\omega_L = 1052.196 \ cm^{-1}$  und  $\omega_S = 980.941 \ cm^{-1}$ . Die Maxima wurden Übergängen im Valenz- und Leitungsband mit den Landauquantenzahlen n = 0 zugeordnet, wie in der Abbildung vermerkt ist. Für das 90° Tal konnten Spinflipübergänge der Majoritätsladungsträger und photoangeregter Minjoritätsladungsträger beobachtet werden, wohingegen sich für das 35.26° Tal lediglich der Elektronenübergang in der n- dotierten Probe beobachten ließ.

# 4 Experimentelle Aufbauten

# 4.1 Photolumineszenz

Zur Messung der Photolumineszenz der untersuchten Halbleiterproben befanden sich diese stets in einem Kryostaten, um Experimente in einem weiten Temperaturbereich von 1.5 bis über 300 K zu ermöglichen. Die anregenden Laserstrahlungsquellen, die eine Photonenenergie oberhalb der fundamentalen Energielücke der Halbleiterprobe besitzen, wurden mit Hilfe geeigneter Optiken auf die Probenoberfläche fokussiert. Da in dieser Arbeit eine Vielzahl von anregenden Strahlungsquellen verwendet wurden, sind diese in den nachfolgenden Kapiteln separat aufgeführt. Die spektrale Untersuchung des emittierten Lumineszenzlichtes erfolgte wahlweise in Rückwärtsbzw. Vorwärtsrichtung und wird im Folgenden detailiert beschrieben.

#### 4.1.1 Rückwärtsgeometrie

Zur Untersuchung der Photolumineszenz in Rückwärtsgeometrie wurde der in Abb. 4.1 dargestellte Versuchsaufbau verwendet. Die anregende Laserstrahlung wird über entsprechende Spiegel und die Linse L1 ( $f = 270 \ mm$ ) auf die Probe fokussiert. Als Pumpstrahlungsquellen kamen meist infrarote Laserlichtquellen zum Einsatz. Diese sind für das menschliche Auge kaum oder gar nicht sichtbar, weshalb zu Justagezwecken die rote Strahlung eines He- Ne Lasers über einen Strahlteiler kolinear eingekoppelt wurde.

Bei den anregenden Lichtquellen handelte es sich um kontinuierliche oder gepulste Laser. Bei kontinuierlicher Emission wurde der Strahl mit Hilfe eines mechanischen Choppers periodisch (typisch 170 Hz) unterbrochen, um die Lock- In Technik verwenden zu können. Bei gepulster Emission kam die Boxcar Technik zum Einsatz. Für beide Techniken benötigt die Nachweiselektronik ein Triggersignal, das der Referenzdetektor Ref. lieferte, auf den ein kleiner Bruchteil der Pumpstrahlung mit Hilfe eines Stahlteilers und Hohlspiegels fokussiert wurde.

Linse L2 (f = 270 mm) erzeugt aus dem in Rückwärtsrichtung emittierten Lumineszenzlicht ein paralleles Strahlenbündel, um es mit Hilfe von Linse L3 (f = 10 mm)



Abbildung 4.1: Prinzipieller Aufbau zur Messung der Photolumineszenz in Rückwärtsgeometrie. Abkürzungen: Sp: Spiegel, ST: Strahlteiler, HS: Hohlspiegel, L: Linse.

auf den Eintrittsspalt des Spektrometers zu fokussieren. Für das Spektrometer (Jobin Yvon, Modell HR460SHL) stehen eine Vielzahl von Reflexionsgittern zur Verfügung. Diese decken den Spektralbereich von 200 nm bis 8  $\mu m$  ab. Über einen Hohlspiegel HS wird das spektral zerlegte Licht auf den Detektor abgebildet. Die Photolumineszenzmessungen wurden zum größten Teil in dieser Rückwärtsgeometrie durchgeführt, weil hier Reabsorption von Lumineszenzlicht in nicht angeregten Teilen der Probe eine untergeordnete Rolle spielt.

# 4.1.2 Vorwärtsgeometrie

Abbildung 4.2 zeigt schematisch den experimentellen Aufbau für Lumineszenzmessungen in Vorwärtsgeometrie. Der Strahlengang vor und nach der Probe entspricht jenem aus Abb. 4.1. Im Gegensatz zur Messung in Rückwärtsrichtung wurde die zu untersuchende Probe in diesem Fall von der Rückseite her angeregt und das entstehende Lumineszenzlicht nach vorne emittiert und registriert.

Dieser Aufbau war zur Messung der Emission aus einigen vertikal emittierenden Laserstrukturen unbedingt erforderlich. Bei der Lumineszenzmessung in Rückwärtsrichtung trifft der anregende Laser unter einem kleinen Winkel von ca. 8° zur Oberflächennormale auf die Probe. Bei vertikal emittierenden Laserstrukturen wur-



Abbildung 4.2: Schematische Darstellung der Photolumineszenzmessung in Vorwärtsrichtung. Abkürzungen: Sp: Spiegel, L: Linse.

de beobachtet, daß die emittierte Leistung sehr stark von dem Winkel zwischen Pumpstrahl und Oberflächennormale abhängig ist. Die emittierte Intensität war maximal, wenn die Einkopplung in den Resonator exakt parallel zur Oberflächennormale der Probe gewählt wurde. Dies konnte in dem in Abb. 4.1 gezeigten Aufbau nur gewährleistet werden, wenn der einkoppelnde Spiegel Sp5 auf der Verlängerung der Oberflächennormalen der Probe positioniert war. Dabei wurde jedoch die emittierte Lumineszenzstrahlung der vertikal emittierenden Resonatorstrukturen aufgrund ihrer geringen Divergenz von einigen Grad blockiert. Aus diesem Grund war zur Untersuchung dieser Art von Proben die Vorwärtsrichtung das Mittel der Wahl, bei der die Anregung parallel zur Schichtnormalen der Probe durch das Substrat und den unteren Bragg- Spiegel erfolgte.

## 4.1.3 Pumpstrahlungsquellen

# 4.1.3.1 Laserdioden

Zur Anregung im nahen infraroten Spektralbereich standen kontinuierlich kantenemittierende Laserdioden mit Energien von 1.85 eV (670 nm), 1.64 eV (756 nm) und 1.59 eV (780 nm) zur Verfügung. Diese Auswahl an unterschiedlichen Photonenenergien erwies sich besonders im Hinblick auf das optische Pumpen als günstig. Der zirkulare Polarisationsgrad der Photolumineszenz steigt nämlich umso mehr an, je näher sich die Energie der anregenden Photonen an der fundamentalen Energielücke der Probe befindet. Der zirkulare Polarisationsgrad der Lumineszenz einer hochreinen Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>As Probe konnte durch die Verwendung der geeigneten Laserdiode von 8% bei Anregung mit  $\lambda = 632.8 \ nm$  auf knapp 40% bei Anregung mit  $\lambda = 670 \ nm$  gesteigert werden.

## 4.1.3.2 Nd:YAG Laser

Für hohe Anregungsleistungen steht in der Arbeitsgruppe ein diodengepumpter Nd:YAG Laser mit einer Photonenenergie von 1.17 eV (1064 nm) zur Verfügung. Dieser erreicht Pulsenergien von bis zu 600  $\mu J$  mit einer Pulsdauer von 12 nsbei 10 kHz Wiederholrate. Daneben ist dieser Laser ebenfalls zur kontinuierlichen Emission tauglich. Die erreichbare Anregungsleistung liegt oberhalb der Zerstörungsschwelle der Proben, sodaß bei Einsatz dieses Lasers die Strahlung durch geeignete Neutralglasfilter abgeschwächt werden mußte.

#### 4.1.3.3 Ramanzelle

Seit der ersten Herstellung von vertikalen Laserstrukturen basierend auf dem Materialsystem der IV-VI Halbleiter wurden diese mit der 1064 nm Strahlung eines Nd:YAG Lasers optisch gepumpt. Dabei wurde die Strahlung jedoch zu ca. 90% von dem einkoppelnden Bragg- Spiegel absorbiert. Um dieses Problem zu umgehen, war eine längere Pumpwellenlänge erforderlich. Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit der Erzeugung von kohärentem Pumplicht einer Wellenlänge von 1.9  $\mu m$ (650 meV) durch eine Ramanzelle, die von einem leistungsstarken Nd:YAG Laser gepumpt wurde. Da sich dieser experimentelle Aufbau zur Messung der Photolumineszenz von den oben beschriebenen stark unterscheidet, ist er in Abb. 4.3 extra gezeigt. Nach dem Oszillator des Nd:YAG Lasers wird die 1064 nm Strahlung über zwei dielektrische Spiegel Sp1 und Sp2 um  $180^{\circ}$  umgelenkt. Bevor die Strahlung in den Verstärker tritt, wird sie über zwei Suprasil- Prismen P1 und P2 mit einer Kathetenfläche von  $10x10 \ mm^2$  daran vorbeigelenkt. Würde die Leistung der Strahlung durch den Verstärker weiter erhöht, wäre eine Beschädigung der Ramanzelle nicht mehr auszuschließen. Bereits nach dem Oszillator besitzt ein Laserpuls eine Energie von ca. 120 mJ. Aufgrund dieser hohen Leistung werden Prismen und dielektrische Spiegel zur Umlenkung des Strahles verwendet, da Aluminiumspiegel den



Abbildung 4.3: Prinzipieller Meßaufbau zur Lumineszenzmessung bei 1.9  $\mu m$  Pumpwellenlänge. Abkürzungen: Sp: Spiegel, HS: Hohlspiegel, ST: Strahlteiler, L: Linse, P: Prisma, PB: Pellin Broca Prisma.

thermischen Belastungen nicht standhalten würden. Linse L1 mit einer Brennweite von  $f = 2000 \, mm$  sorgt dafür, daß der Strahl über den langen Weg bis zur Ramanzelle nicht zu divergent wird. Die eingezeichnete Si- Photodiode wird lediglich von Laserstreulicht beleuchtet und dient als Referenz- und Triggersignal.

Über die Prismen P3 und P4 wird die Laserstrahlung in die  $H_2$  Ramanzelle gelenkt. Wasserstoff hat eine sehr große Ramanverschiebung von 4156  $cm^{-1}$ . Der zur Verfügung stehende Nd:YAG Laser mit einer Wellenlänge von 1064 nm, entsprechend 9398.5  $cm^{-1}$  pumpt die Ramanzelle. Die erste Stokeslinie liefert 5242.5  $cm^{-1}$ , entsprechend einer Wellenlänge von 1.907  $\mu m$ . Die verwendete Pumpleistung liegt oberhalb der Schwelle für stimulierte Ramanstreuung. Damit erhält man kohärentes Licht der Frequenz der ersten Stokeswelle. Durch optische Vierwellenmischung entsteht auch Strahlung mit der Frequenz der zweiten Stokeswelle und mehrere anti-Stokes Komponenten. Bei einer Wiederholrate von 50 Hz beträgt die Pulslänge der ersten Stokes Strahlung ca. 10 ns.

Da die Ramanzelle einen Wellenleiter enthält, ist die Justage im infraroten Spektralbereich äußerst schwierig. Deshalb wird der Nd:YAG Strahlung mit Hilfe des Spiegels Sp3 und des Strahlteilers ST1 ein He- Ne Laserstrahl kolinear überlagert. Linse L2 (f = 300 mm) fokussiert die Strahlung in den Wellenleiter; Linse L3 (f = 300 mm) erzeugt aus der die Ramanzelle verlassenden Strahlung ein paralleles Lichtbündel. Durch das Pellin Broca Prisma wird das Licht der gewünschten Wellenlänge um 180<sup>0</sup> umgelenkt und läuft oberhalb der Ramanzelle zurück. Somit ist es möglich, die erzeugte Strahlung mit einer Wellenlänge von 1907 nm für weitere Experimente zu verwenden.

Über den  $BaF_2$  Strahlteiler ST2 wird ein Teil der Strahlung ausgekoppelt und mit Hilfe eines Hohlspiegels Sp3 (f = 150 mm) auf einen ORP10- Detektor fokussiert. Dieser gestattet es die Intensität der Pumpstrahlung zu messen. Spiegel Sp4 und Sp5 lenken die Strahlung durch Linse L4 (f = 500 mm). Die Strahlung wird über Spiegel Sp6 auf die Probe fokussiert (Fokusdurchmesser etwa 320  $\mu m$  (Volle Breite bei halber Höhe - FWHM)).

Das Lumineszenzlicht wird über Linse  $L5 \ (f = 150 \ mm)$  gesammelt und als paralleles Strahlenbündel über Spiegel Sp7 und Sp8 umgelenkt. Linse  $L6 \ (f = 100 \ mm)$ fokussiert die Lumineszenz auf den Eintrittsspalt des Spektrometers  $(f = 20 \ cm)$ . Als Gitter ist eines mit 150  $\frac{Striche}{mm}$  eingesetzt.

Nach dem Austrittsspalt bildet Linse L7~(f = 100 mm) das spektral zerlegte Licht auf die Detektorfläche einer InSb Photodiode ab. Vor diesem Detektor wurde wahlweise ein Ge, InAs oder dielektrisches ( $\lambda_{Grenz} = 2.4 \mu m$ ) Kantenfilter befestigt um eventuelle Streustrahlung der Pumpquelle abzublocken.

#### 4.1.3.4 CO- Laser

Für den Spektralbereich von 197 bis 270 meV (4.6 – 6.3  $\mu m$ ) wurde ein in der Arbeitsgruppe selbst entworfener, mit flüssigem Stickstoff gekühlter CO- Laser verwendet. Je nach Anforderung ist es möglich, diesen Laser auf allen oder einer Linie gepulst oder kontinuierlich emittieren zu lassen. Im Impulsbetrieb wurde der Resonator mit Hilfe eines rotierenden Spiegels gütegeschaltet. In dieser Arbeit wurde der CO- Laser hauptsächlich zur Anregung von vertikal emittierenden Resonatorstrukturen verwendet

# 4.2 Hanle- Effekt

Zur Messung des Hanle- Effekts wurde der in Abb. 4.4 gezeigte Versuchsaufbau verwendet. Als primäre Lichtquellen kamen zur Erzeugung der Polarisation des Elektro-



Abbildung 4.4: Aufbau des Experiments zur Messung des Hanle-Effekts. Abkürzungen: Sp: Spiegel, ST: Strahlteiler, L: Linse, HS: Hohlspiegel, PEM: Photoelastischer Modulator, Pol: Polarisator,  $\lambda/4$ :  $\lambda/4$ -Plättchen.

nenspinsystems die bereits in Kapitel 4.1.3.1 charakterisierten Laserdioden zum Einsatz. Ergänzend wurden He- Ne- (1.96 eV, 632.8 nm), Krypton- (1.92 eV, 647 nm) und Argon- Gaslaser (2.41 eV, 514 nm) eingesetzt.

Falls das Licht des verwendeten Lasers für das Auge nur schwer zu erkennen war, wurde durch den Spiegel Sp1 und den Strahlteiler ST ein He- Ne Laserstrahl zu Justierzwecken kolinear überlagert. Mit Hilfe eines photoelastischen Modulators (PEM) war es möglich, das linear polarisierte Licht des anregenden Lasers mit einer Frequenz von 50 kHz zwischen links- und rechtszirkularer Polarisation periodisch umzuschalten. Da die Relaxationszeit der Spins der Atomkerne sehr viel größer ist (bis zu 30 Minuten!) als die des Elektronenspinsystems, erreicht man durch die schnelle Umschaltung der Anregungspolarisation, daß die Kerne dieser Änderung praktisch nicht folgen können und dadurch nicht dynamisch polarisiert werden. Damit stammt die beobachtete zirkulare Polarisation der Photolumineszenz lediglich von dem Elektronenspinsystem.

Linse L1 ( $f = 270 \ mm$ ) und Spiegel Sp5 fokussieren die Laserstrahlung auf die zu untersuchende Probe. Diese befindet sich in einem Kryostaten mit einem variablen Magnetfeld ( $0-7 \ T$ ), dessen Richtung senkrecht zum  $\vec{k}$ - Vektor des anregenden Lasers liegt. Das Lumineszenzlicht wurde mit der Linse L2 ( $f = 200 \ mm$ ) und einem Hohlspiegel auf den Eintrittsspalt des Spektrometers fokussiert. Das spektral zerlegte Licht wird nach dem Austrittsspalt des Spektrometers durch einen Hohlspiegel auf den Detektor fokussiert.

Für die untersuchten Quantenpunktproben, lag die Lumineszenz in einem Spektralbereich zwischen 700 nm und 1.5  $\mu m$ . Im Bereich von 700-850 nm fand als Detektor ein Sekundärelektronenvervielfacher Verwendung, wohingegen für eine Lumineszenz zwischen 850 – 1500 nm eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte Germaniumdiode zum Einsatz kam. Um das Laserstreulicht zu unterdrücken, wurden entsprechende Kantenfilter verwendet.

Die Polarisation des Lumineszenzlichts konnte mit Hilfe eines  $\lambda/4$ - Plättchens, gefolgt von einem Linearpolarisator (Pol.) analysiert werden. Diese Anordnung kann je nach Einstellung rechts- oder linkszirkular polarisiertes Licht nachweisen. Ein Lock-In Verstärker mit der Referenz des PEM kann damit direkt die Größe  $I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}$ messen. Dabei sind  $I_{\sigma^+}$  und  $I_{\sigma^-}$  die Intensitäten der Photolumineszenz mit gleicher oder entgegengesetzter zirkularer Polarisation wie die des anregenden Lasers. Desweiteren wurde der Strahl mit Hilfe eines mechanischen Choppers mit einer Frequenz von typischerweise 170 Hz periodisch unterbrochen. Ein Lock- In Verstärker mit dieser Referenz mißt damit die Summe  $I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}$ . Diese beiden Größen werden als Funktion des Magnetfeldes registriert. Mit dieser Methode ist es möglich, den zirkularen Polarisationsgrad der Photolumineszenz  $P = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}}$  aus Gl. 3.8 direkt zu messen. Dieser gemessene zirkulare Polarisationsgrad  $\rho_c(B)$  ist direkt proportional zur Spinpolarisation der Elektronen. An die Abhängigkeit vom Magnetfeld läßt sich der Ausdruck nach Gl. 3.28 anpassen. Es gilt:

$$\rho_c(B) = \rho_c(0) \cdot \frac{1}{1 + (\Omega T_2^*)^2} \quad \text{mit} \quad \rho_c(0) = \rho_0 \cdot \frac{\tau_s}{\tau_s + \tau} \quad . \tag{4.1}$$

 $\rho_0$  ist eine Konstante, die von den Energieniveaus der untersuchten Probe und der Energie des anregenden- bzw. nachgewiesenen Lichtes abhängt. Die anderen Konstanten besitzen ihre sonst übliche Bedeutung. Aus der angepaßten Breite der Hanle-Kurve läßt sich nun die skalierte Spinlebenszeit  $g \cdot T_2^*$  ableiten.

#### 4.3 Optisch detektierte Kernspinresonanz

Der experimentelle Aufbau zur Messung der optisch detektierten Kernspinresonanz (ODNMR) unterscheidet sich nur wenig von dem zur Messung des Hanle- Effekts verwendeten. In zwei wesentlichen Punkten unterscheidet sich das Experiment aus Abb. 4.4 jedoch von dem zur Messung der ODNMR.

Zum Ersten wird der anregende Laserstrahl bei ODNMR Messungen nicht moduliert, um eine dynamische Kernspinpolarisation zu erhalten. Das bedeutet, dass der PEM aus Abb. 4.4 gegen das  $\lambda/4$ - Plättchen ausgetauscht wird, um die Probe mit konstanter zirkularer Polarisation anzuregen. Der PEM nimmt die ehemalige Position des  $\lambda/4$ - Plättchens im Nachweisstrahlengang ein. Somit kann die Meßelektronik wie im vorherigen Kapitel weiterverwendet werden, und es wird wiederum der zirkulare Polarisationsgrad  $P = \frac{I_{\sigma} + -I_{\sigma}}{I_{\sigma} + +I_{\sigma}}$  der Photolumineszenz gemessen. Da die Anregung mit konstanter zirkularer Polarisation erfolgt, wird der gemessene Polarisationsgrad von der Kernspinpolarisation beeinflußt.

Zum Zweiten ist zur Messung der ODNMR, wie aus den Kapiteln 3.2.1 und 3.2.4 bekannt ist, die Faraday- Konfiguration zu wählen. Dies bedeutet, daß das externe Magnetfeld  $\vec{B}_0$  parallel zur Oberflächennormale der Probe, in unserem Fall in z-Richtung, zu wählen ist. Eine schematische Darstellung dieser Geometrie zeigt Abb. 4.5. Das für die ODNMR benötigte  $\vec{B}_2$ - Feld wird von einer vertikalen Spule (vgl. Abb. 4.5) erzeugt. Die Spule ist mit 7 Windungen um den Probenhalter gewickelt, der einen Durchmesser von 6 mm und eine Länge von 12 mm besitzt. Die Frequenz der Radiowellenstrahlung wird mit Hilfe eines vom Laborrechner angesteuerten RF-Synthesizers (PTS160) ausgewählt. Damit sind Frequenzen von 0.1 bis 160 MHz



Abbildung 4.5: NMR- Spule um Probenspieß.  $\hat{z}$  ist die Richtung der Probennormale und des Feldes  $\vec{B}_0$ .

einstellbar. Der Ausgang des Synthesizers ist an einen Leistungsverstärker (ENI-325LA 20 Watt/50 $\Omega$ ) angeschlossen. Von diesem wird der verstärkte radiofrequente Wechselstrom über ein Koaxialkabel zur Spule im Kryostaten weitergeleitet. Ihr Feld besitzt eine Stärke von 0.05 mT/W.

Um die Messung der ODNMR durchzuführen, wird das Spektrometer auf das Maximum der Photolumineszenz gefahren und das longitudinale Magnetfeld auf einen konstanten Wert eingestellt, wobei der Grad der zirkularen Polarisation mit steigendem  $\vec{B}_{0}$ - Feld zunimmt. Die entsprechenden Resonanzfrequenzen der untersuchten Kerne sind:

 $\begin{array}{l} 0.729 \ MHz/100 \ mT \ {\rm für} \ {}^{75}As \\ 0.933 \ MHz/100 \ mT \ {\rm für} \ {}^{115}In \\ 1.022 \ MHz/100 \ mT \ {\rm für} \ {}^{69}Ga \\ 1.109 \ MHz/100 \ mT \ {\rm für} \ {}^{27}Al \\ 1.298 \ MHz/100 \ mT \ {\rm für} \ {}^{71}Ga. \end{array}$ 

Die Resonanz des jeweils untersuchten Kerns wird mit Hilfe des durchstimmbaren Synthesizers durchfahren. Dabei wird der zirkulare Polarisationsgrad als Funktion der Radiofrequenz registriert. Wie bereits in Kapitel 3.2.4 beschrieben wurde, nimmt beim Durchfahren der Kernresonanz der zirkulare Polarisationsgrad der Photolumineszenz ab. Damit ist die Kernspinresonanz an einem Einbruch in dem registrierten Signal zu erkennen. Eine ausführliche Beschreibung der Meßparameter findet sich in [68].

#### 4.4 Magnetotransmissionsmessung

Als Vertreter niedrigdimensionaler IV-VI Halbleiterstrukturen wurden PbSe-Quantenpunkte in einer  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  Matrix untersucht. Unklar ist dabei, ob es an der Kontaktfläche der Quantenpunkte und des Matrixmaterials durch Diffusionsprozesse zu Vermischungen der Materialien kommen kann und sich dadurch das ternäre  $PbSe_xTe_{1-x}$  System bildet. Aus diesem Grund ist die genaue Kenntnis der Bandparameter dieser bisher nur wenig untersuchten Legierung äußerst wichtig. Zur exakten Bestimmung der Bandparameter dieses Materials sind neben CARS Messungen Magnetotransmissionsmessungen unerläßlich.

Aufgrund der energetischen Lage der fundamentalen Energielücke kam beim Experiment als Strahlungsquelle ein mit flüssigem Stickstoff gekühlter CO- Laser zum Einsatz. Dieser war mit Hilfe eines rotierenden Spiegels im Laserresonator gütegeschaltet (Pulswiederholfrequenz ca. 200 Hz, Pulsdauer ca. 100 ns). Dadurch wurden etwa 150 Wellenlängen im Bereich von 5  $\mu m$  bis 6.3  $\mu m$  zugänglich, deren lineare Polarisation durch die Orientierung der Brewsterscheiben des Laserresonators horizontal war. Durch den rotierenden Resonatorendspiegel oszilliert der CO- Laser auf allen verfügbaren Linien, deren Leistungen im Vergleich zum Einlinienbetrieb wesentlich höher sind. Die benötigte Frequenz wurde erst außerhalb des Resonators mit Hilfe eines Reflexionsgitters selektiert. Abbildung 4.6 zeigt den verwendeten Versuchsaufbau in Faraday- Konfiguration. Daneben wurden ebenfalls Untersuchungen in Voigt- Geometrie  $(\vec{k} \perp \vec{B})$  durchgeführt. Aufgrund der Auswahlregeln für erlaubte Interbandübergänge benötigt man nach Kapitel 3.3 in Faraday- Konfiguration rechts- bzw. linkszirkular polarisiertes und in Voigt- Konfiguration linear polarisiertes Licht senkrecht bzw. parallel zum Magnetfeld. Der gewünschte Polarisationszustand wurde durch die jeweils passende Kombination von Linearpolarisator und  $\lambda/4$ -Plättchen erzeugt. Zur Justage des Strahlenganges ist der Strahlung des CO- Lasers ein He- Ne Laserstrahl kolinear überlagert worden. Die Strahlung wurde auf die Pro-



Abbildung 4.6: Experimenteller Aufbau zur Messung der Magnetotransmission mit Hilfe eines CO- Lasers. Abkürzungen: Sp: Spiegel, ST: Strahlteiler, H-Sp: Hohlspiegel, L: Linse,  $\lambda/4$ :  $\lambda/4$ - Plättchen, AK: Auskoppelspiegel, Q-Switch: rotierender Spiegel.

be fokussiert, die sich im Einsteckkryostaten eines Supraleitungsmagneten (maximal erreichbares Feld 7 T) befand. Die Kryostatenfenster, sowie sämtliche verwendeten Linsen bestanden aus BaF<sub>2</sub>. Während der Messung war die Probe in superfluidem Helium bei einer Temperatur von 1.8 K. Zur Identifizierung der spektralen Lage der verwendeten Laserlinie wurde der nachfolgende Einfachmonochromator verwendet. Die exakte Zuordnung der Linie erfolgte mit der Sammlung sämtlicher CO- Laserlinien von Mantz [69]. Als Detektor kam ein mit flüssigem Stickstoff gekühlter HgCdTe Photoleiter zum Einsatz. Das verstärkte Detektorsignal registrierte ein Boxcar- System, dessen Referenz der Detektor, in Abb. 4.6 mit Ref. abgekürzt, lieferte. Der Meßrechner nahm die transmittierte Intensität in Abhängigkeit des Magnetfeldes
auf. Ausgewertet wurden die Minima in den erhaltenen Registrierungen.

#### 4.5 Kohärente Ramanspektroskopie

Zur Messung der kohärenten Ramanstreuung (vgl. Kapitel 3.4) im mittleren Infraroten steht in der Arbeitsgruppe eine seit Jahren etablierte und stetig verbesserte Apparatur, bestehend aus CO<sub>2</sub>- und CO- Lasern zur Verfügung. Eine ausführliche Beschreibung dieses Systems findet sich in der Dissertation von F. Geist [26] und ist in Abb. 4.7 gezeigt. Um Spin- Flip- Übergänge in dünnen Halbleiterepita-



Abbildung 4.7: Experimentelle Versuchsanordnung zur Messung der kohärenten Ramanstreuung. Abkürzungen: Sp: Spiegel, ST: Strahlteiler, HS: Hohlspiegel, L: Linse, SHG: Verdopplerkristall.

xieschichten mit einer Energielücke von weniger als 200 meV zu messen, wurden die zwei vorhandenen CO<sub>2</sub>- Laser verwendet. Diese wurden durch zwei akustoop-

tische Modulatoren (Germanium Einkristalle) gütegeschaltet. Die Laser emittieren ca. 150 ns lange Pulse mit einer Pulsspitzenleistung zwischen 0.5 und 3 kW und einer Wellenlänge von 9.2  $\mu m$  bis 10.7  $\mu m$ . Insgesamt stehen in der 9.2  $\mu m$  und 9.6  $\mu m$  Bande je ca. 10 und in den stärkeren 10.2  $\mu m$  und 10.6  $\mu m$  Banden je ca. 13 bis 14 Laserlinien zur Verfügung, die einen energetischen Abstand von 1.3 bis 1.9  $cm^{-1}$  besitzen. Die exakte energetische Lage der Emissionslinien wurde einer Arbeit von Chang [70] entnommen. Durch geeignete Kombination der Linien in den Banden lassen sich Frequenzdifferenzen von 1.3 bis 150  $cm^{-1}$  erreichen. Um die Pulsspitzenleistung und nach Gl. 3.31 die CARS Intensität zu erhöhen, wurden beide Gasentladungen im gepulsten Betrieb verwendet. Damit lagen die Pulsspitzenleistungen teilweise oberhalb der Zerstörungsschwelle der zu untersuchenden Proben, und es wurde mit Hilfe von Silizium- Abschwächern ein akzeptabler Kompromiss zwischen maximalem CARS Signal und Schonung der Probe gefunden.

Abbildung 4.7 zeigt den verwendeten Strahlengang. Nach Gl. 3.31 ist die Intensität des CARS Signals proportional zu  $I_L^2 \cdot I_S$ , wobei  $I_{L,S}$  die Pulsspitzenleistungen der Laser darstellen. Um dieses Produkt zu maximieren, wurde der stärkere der beiden CO<sub>2</sub>- Laser als Pumplaser  $\omega_L$  gewählt und besitzt demnach die höhere Energie; der andere Laser wird mit einer Frequenz von  $\omega_S < \omega_L$  Stokeslaser genannt. Unter Verwendung der beiden Strahlteiler ST wird ein Teil der Laserstrahlung über die Hohlspiegel HS1 zur Frequenzverdopplung auf AgGaSe<sub>2</sub>- Kristalle fokussiert. Mit den beiden Detektoren Det. 1 registriert man die Intensität dieser frequenzverdoppelten Strahlung und führt sie einem Regelrechner zur Weiterverarbeitung zu. Dieser stabilisiert über Veränderung der Resonatorlänge die Ausgangsleistung der CO<sub>2</sub>- Laser. Die Strahlen der beiden Laser werden mit dem ZnSe Strahlteiler ST1 kolinear überlagert und durch die Linse L2 (f = 150 mm) auf die Probe im Magnetkryostaten fokussiert. Die Orientierung von Magnetfeldrichtung und Laserstrahlrichtung und -polarisation ist entsprechend der für die CARS geltenden Auswahlregeln gewählt. Durch Linsen L3 (f = 150 mm) und L4 wird die entstandene Strahlung mit der Mischfrequen<br/>z $\omega_{AS}=2\cdot\omega_L-\omega_S$ auf den Eintrittsspalt des Doppelmonochromators fokussiert und durch den mit flüssigem Stickstoff gekühlten HgCdTe Photoleiter gemessen. Um dieses Signal in Abhängigkeit vom Magnetfeld zu registrieren, fand wie bei der Magnetotransmissionsmessung in Kapitel 4.4 die Boxcar- Technik Anwendung. Die benötigte Referenz lieferte der Detektor Ref., auf den ein Teil der Pumpstrahlung mit Hilfe des Strahlteilers ST2 fokussiert wurde. Da beide Laser im gepulsten Betrieb verwendet wurden, müssen sich die beiden Strahlen nicht nur kolinear in der Probe überlagern sondern auch gleichzeitig dort ankommen, was sich mit Hilfe der Steuerelektronik der Lasernetzteile realisieren läßt.

## 5 Experimentelle Resultate und deren Deutung: InAs Quantenpunkte

Als Vertreter des Materialsystems der III-V Halbleiter wurden InAs Quantenpunkte untersucht, die in den Gruppen von Prof. Vadim A. Shalygin (technische Universität St. Petersburg) und von Dr. Konstantin Zhuravlev (Russian Academy of Science, Novosibirsk) hergestellt wurden.

## 5.1 Aufbau der untersuchten InAs Quantenpunktproben

### 5.1.1 Probenserie A - InAs Quantenpunkte in $In_{0.12}Ga_{0.88}As$

Die Proben der Serie A sind im Aufbau identisch und unterscheiden sich lediglich in der Dotierung der InAs Quantenpunkte. Abbildung 5.1 zeigt den prinzipiellen Auf-



Abbildung 5.1: Prinzipieller Aufbau der Probenserie A. SI GaAs: semiisolierendes GaAs- Substrat; QP: Quantenpunkte; SG: Supergitter.

bau der Probenserie A. Eine Zusammenstellung der wichtigsten Probendaten findet sich in Tabelle 5.1 wieder.

Durch Aufbringen von 2.5 Monolagen InAs auf GaAs entstehen pyramidenförmige

InAs Quantenpunkte mit quadratischer Grundfläche und einer Dichte von  $N_{QP} = 3 \cdot 10^{10} \ cm^{-2}$ . Nach dem Wachsen der Quantenpunkte wurden sie mit InGaAs (Indium Konzentration von 12%) bedeckt. Damit erhält man nach [71] eine Quantenpunktbasislänge von ca. 12.5 *nm*. Insgesamt wurden in den Proben der Serie A fünfzehn solcher Perioden gewachsen. Bei Probe F191 handelt es sich um undotierte Quantenpunkte. Die Quantenpunkte in Probe F345/2 wurden mit Hilfe von Beryllium (Be) p- dotiert. Die n- Dotierung von Probe F346 erfolgte durch Silizium (Si).

	Tabelle 5.1:	Probendaten	der u	untersuchten	InAs,	/InGaAs	Quantenpunkt-	Ubergitter
--	--------------	-------------	-------	--------------	-------	---------	---------------	------------

Serie	Probe	InAs ML	Perioden	In (%)	Dotierung
А	F345/2	2.5	15	12	p- dotiert (Be)
А	F191	2.5	15	12	undotiert
А	F346	2.5	15	12	n- dotiert (Si)

Die Dotierung beträgt  $N = 1.8 \cdot 10^{11} \ cm^{-2}$  für Be bzw. Si. Damit ist die Konzentration der Dotieratome N etwa das sechsfache der Quantenpunktkonzentration  $N_{QP}$ , und es befinden sich im Mittel sechs aus der Dotierung stammende Ladungsträger in jedem Quantenpunkt.

#### 5.1.2 Probenserie B - InGaAs Quantenpunkte in GaAs

Die Quantenpunkte der beiden Proben der Serie B unterscheiden sich in ihrer Zusammensetzung. In Probe 1168 befinden sich  $In_{0.5}Ga_{0.5}As$  Quantenpunkte wohingegen die in Probe 1221 aus InAs bestehen. Abbildung 5.2 zeigt den Aufbau der Proben. Auf ein (100)- orientiertes GaAs Substrat wurde eine GaAs Pufferschicht aufgebracht. Es folgen 25 nm AlAs Matrixmaterial und eine Lage Quantenpunkte. Anschließend werden die Quantenpunkte mit 25 nm AlAs bedeckt. Die beiden Proben der Serie B enthalten je 10 Quantenpunktschichten. Abschließend wird der Stapel mit 10 nm GaAs überwachsen. Die Quantenpunkte der Serie B haben die Form von Scheiben mit einem Durchmesser von ca. 20 nm und einer Höhe von ca. 8 nm. Abbildung 5.2 zeigt eine Transmissions- Elektronen- Mikroskop- Aufnahme von Probe 1168. Man erkennt die unterschiedliche Größe der Quantenpunkte von



Abbildung 5.2: Schematischer Aufbau der Probenserie B und Transmission- Elektronen- Mikroskop Aufnahme (TEM) von Probe 1168 [72].

Schicht zu Schicht. Innerhalb einer Schicht sind sie etwa gleich groß. Diese breite Größenverteilung in Wachstumsrichtung wird sich in einem breiten Photolumineszenzspektrum wiederspiegeln.

## 5.1.3 Probenserie C - InAs Quantenpunkte in $Al_xGa_{1-x}As$

Bei dieser Probenserie handelt es sich um InAs Quantenpunkte in einer  $Al_xGa_{1-x}As$ Matrix, wobei der Aluminiumgehalt von x = 0 über x = 0.25; 0.5; 0.75 bis x = 1reicht. Die Struktur in der die Quantenpunkte eingebettet sind ist ähnlich jener, welche bereits bei Probenserie B im vorherigen Kapitel beschrieben wurde (siehe Abb. 5.2). Auf ein (100)- orientiertes GaAs Substrat wird eine 200 nm dicke GaAs Pufferschicht aufgewachsen. Die selbstorganisierten InAs Quantenpunkte entstehen nach Aufbringung von 2.2 bis 2.6 Monolagen InAs bei einer Substrattemperatur von 500 °C. Daraus resultieren Quantenpunktdichten von  $3 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  für x = 1 und bis zu  $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  für x = 0.5. Die Quantenpunktdichten wurden anhand vom TEM Aufnahmen bestimmt. Die entstandene Quantenpunktlage wird mit 8 nm AlGaAs der entsprechenden Aluminiumkonzentration bedeckt. Insgesamt werden fünf Lagen InAs Quantenpunkte gewachsen. Wie bei Probenserie A ist auch hier der die Quantenpunkte enthaltende Bereich auf beiden Seiten von 16 nm dicken AlAs Schichten umgeben, um den Transport der photoangeregten Ladungsträger aus der aktiven Schicht zu vermeiden. Das Oxidieren des Aluminiums wird durch eine 200 nm dicke GaAs Deckschicht verhindert.

Diese Probenserie C ermöglicht es, den Übergang von einem Matrixmaterial mit direkter Energielücke (x < 0.45) zu einem mit indirekter Energielücke (x > 0.45) [73] und dessen Einfluß auf die elektronischen Eigenschaften der InAs Quantenpunkte zu studieren.

#### 5.2 Photolumineszenz

Zur Messung der Photolumineszenz an den InAs Quantenpunktproben wurde der in Kapitel 4.1 beschriebene Versuchsaufbau in Rückwärtsgeometrie benutzt. Die verwendete Pumpstrahlungsquelle wird bei jeder Probenserie separat angegeben. In Abb. 5.3 sind die Photolumineszenzspektren der Quantenpunktproben der Serie A



Abbildung 5.3: Photolumineszenzspektren der Proben aus Serie A bei einer Temperatur von 1.8 K. Spektren zur besseren Unterscheidung in Richtung der Ordinate verschoben.

bei einer Temperatur von 1.8 K gezeigt. Zur Anregung wurde die Strahlung einer Laserdiode mit einer Wellenlänge von 780 nm (1.59 eV) genutzt, wobei die Lei-

stung 17 mW betrug. Die Detektion des Lumineszenzlichts erfolgte durch eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte Germaniumdiode, wobei zur Eliminierung von Laserstreulicht ein GaAs Kantenfilter verwendet wurde.

Die Linienbreiten der Lumineszenzspektren der n- und undotierten Probe sind mit ca. 40 meV nahezu identisch. Bei der p- dotierten Probe ist das Lumineszenzmaximum, verglichen mit denen der n- und undotierten Probe, um ca. 30 meV rotverschoben. Das Photolumineszenzspektrum der n- dotierten Quantenpunkte besitzt eine hochenergetische Schulter, was auf strahlende Rekombinationen aus angeregten Exzitonenzuständen schließen läßt. Die Auflösung des Spektrometers betrug ca. 1 meV. Die unvollständige Trennung der Linien ist also nicht apparativ bedingt, sondern ist eine Eigenschaft der Probe. Weiter unten wird gezeigt, dass Hanle- Effekt Messungen in der Tat auf die Existenz unterschiedlicher Übergänge in den Quantenpunktproben hinweisen. Da alle untersuchten Quantenpunktproben der Serie A die Photolumineszenz unterhalb von 1.3 eV zeigten, konnte das Laserstreulicht sehr effektiv mit Hilfe eines GaAs ( $E_g = 1.52 \ eV$ ) Kantenfilters unterdrückt werden. Dies ermöglichte es, das Lumineszenzlicht für weitere Messungen, bei denen keine spektrale Auflösung der Lumineszenz nötig war, ohne Spektrometer auf den Detektor zu fokussieren, um das Signal- zu- Rauschverhälnis zu verbessern.

Abbildung 5.4 zeigt die erhaltenen Lumineszenzspektren der Probenserie B. Die Anregung der InAs Quantenpunkte in Probe 1221 erfolgte durch einen Ar- Ionenlaser mit einer Wellenlänge von 514 nm (2.41 eV) und einer Leistung von 50 mW. Die In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As Quantenpunkte in Probe 1168 wurden mittels eines He- Ne Lasers mit einer Leistung von 10 mW angeregt. Das Lumineszenzspektrum der Probenserie B ist im Vergleich zu Probenserie A stark blauverschoben. Bei Beleuchtung der In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As Quantenpunkte in Probe 1168 mit einem Krypton- Laser der Wellenlänge 647 nm (1.92 eV) war trotz intensiver Bemühungen keine Lumineszenz aus den Quantenpunkten zu finden. Bei Verwendung eines He- Ne Lasers zeigte sich die Lumineszenz der Quantenpunkte wie in Abb. 5.4 (b) zu sehen. Der Ursprung der Struktur bei ca. 1720 meV blieb ungeklärt. Die Intensität der Photolumineszenz konnte durch den Einsatz eines Ar- Lasers mit einer Wellenlänge von 514 nm auf Kosten des Polarisationsgrades gesteigert werden. Aufgrund des Unterschiedes der Lumineszenzausbeute aus den Quantenpunkten bei Pumpen mit dem Krypton- bzw. He- Ne Laser kann gefolgert werden, daß die Quantenpunkte nicht direkt angeregt



Abbildung 5.4: Photolumineszenzspektren der Proben aus Serie B bei einer Temperatur von 1.8 K. (a) InAs Quantenpunktprobe 1221 (b) In<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>As Quantenpunktprobe 1168 (waagrechte Linie zwischen 1500 meV und 1540 meV: Detektorsättigung).

werden. Vielmehr wird das sie umgebende Matrixmaterial angeregt, und die erzeugten Ladungsträger werden von den Quantenpunkten eingefangen. Durch strahlende Rekombination innerhalb der Quantenpunkte erhält man die Lumineszenz dieser Strukturen. Ein ähnliches Verhalten konnte bei nahezu allen in dieser Arbeit untersuchten Proben festgestellt werden. Doch zeigte es sich nie so deutlich wie bei dieser Probe.

Die dominante Struktur bei  $1.52 \ eV$  in Abb. 5.4 (a) ist der Lumineszenz der GaAs Deckschicht zuzuschreiben. Ohne die obere Deckschicht würde sich die Photolumi-

neszenz der Quantenpunkte ungestört beobachten lassen, da das Substrat aufgrund der geringen Eindringtiefe des anregenden Lasers nicht angeregt werden würde. Dennoch ist die Deckschicht unerläßlich, da ohne sie das Aluminium oxidieren würde.



Abbildung 5.5: Photolumineszenzspektren der Proben aus Serie C bei einer Temperatur von 1.8 K. x kennzeichnet den Aluminium Gehalt des Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As Matrixmaterials. Horizontale Linien bei den Spektren für x = 0.5, 0.75 und 1: aufgrund der nötigen hohen Verstärkung bei der Messung dieser Spektren übersteuertes Detektorsignal.

Die GaAs Photolumineszenz besteht aus zwei Strukturen, wobei die energetisch niedrigere der Leitungsband- Akzeptor- Rekombination und die energetisch höherliegende der Exzitonenrekombination zuzuordnen ist. Aufgrund der breiten Größenverteilung der Quantenpunkte in Wachstumsrichtung ist die entsprechende Lumineszenz mit ca. 250 meV energetisch sehr breit und als Untergrund unter der GaAs Lumineszenz zu erkennen.

Abbildung 5.5 zeigt die erhaltenen Spektren der Probenserie C. Die Anregung erfolgte dabei durch einen Argonlaser mit einer Photonenenergie von 2.4 eV (514 nm) und einer Leistung von 50 mW. Der in der Abbildung genannte x- Wert gibt den Aluminiumgehalt des Matrixmaterials an. Für InAs Quantenpunkte in GaAs Matrix (x = 0) zeigt sich das Maximum des Photolumineszenzspektrums bei 1.15 eV. Mit steigendem x auf x = 0.25 schiebt sich das Maximum der Photolumineszenz leicht zu einer höheren Energie von 1.21 eV. Für die Quantenpunktprobe mit x = 0.5ist die Energielücke des  $Al_xGa_{1-x}As$  von direkt nach indirekt umgeschlagen. Damit hat sich das Maximum der Photolumineszenz schlagartig über die bei Probenserie B diskutierte GaAs Struktur bei 1.52 eV hinweg auf 1.7 eV verschoben. Mit weiter zunehmendem Aluminiumgehalt auf x = 0.75 ändert sich die spektrale Lage der Lumineszenz kaum merklich. Für InAs Quantenpunkte in AlAs (x = 1) zeigt sich die Quantenpunktlumineszenz lediglich als leichte Schulter auf der höherenergetischen Seite der GaAs Photolumineszenz.

#### 5.3 Hanle- Effekt an InAs Quantenpunkten

In diesem Kapitel werden die erhaltenen Resultate aus den Messungen des Hanle-Effekts an InAs Quantenpunkten diskutiert. Zur Messung dieses Effekts wurde der optische Aufbau, wie er in Abb. 4.4 dargestellt ist, verwendet. Durch optisches Pumpen wird eine Polarisation des Elektronenspinsystems erreicht. Dies spiegelt sich in einem zirkularen Polarisationsgrad  $\rho_c(B)$  der Photolumineszenz der Probe wieder. Durch Anlegen eines transversalen magnetischen Feldes nimmt dieser zirkulare Polarisationsgrad nach Formel 4.1 ab. Aus der gemessenen Halbwertsbreite der Hanle-Kurve läßt sich die skalierte Spinlebenszeit  $g \cdot T_2^*$  bestimmen. Der Exzitonen g- Faktor in Quantenpunkten ist im allgemeinen eine lineare Kombination des Elektronenund Loch- g- Faktors, entsprechend  $g_e$  und  $g_h$ . Nach [74] läßt sich dieser g- Faktor als

$$g = g_e - 3g_h \tag{5.1}$$

schreiben. Da zur Messung des Hanle- Effektes die Voigt- Konfiguration verwendet wird, ist für die Zeeman- Aufspaltung der Quantenpunktenergieniveaus der transversale g- Faktor verantwortlich. Nach X. Marie *et al.* [75] ist  $g_h^{\perp} \approx 0$  und damit  $g \approx g_e^{\perp}$ . Hapke- Wurst *et al.* [76] haben den transversalen Elektronen- g-Faktor an InAs Quantenpunkten in AlAs Matrix zu  $|g_e^{\perp}| = 0.86$  bestimmt. In den nächsten Kapiteln wurde dieser g- Faktor zur Berechnung der Elektronenspinlebenszeit  $T_2^*$  verwendet.

In allen folgenden Messungen ist die Anregung nicht resonant, und damit verlieren die spinpolarisierten Löcher sehr schnell ihre Polarisation. Somit werden die Löcher komplett unpolarisiert von den Quantenpunkten eingefangen [77], und die beobachtete zirkulare Polarisation der Photolumineszenz ist, wie oben für drei- und zweidimensionale Systeme ausgeführt, ausschließlich den Elektronen zuzuschreiben.

## 5.3.1 Probenserie A - InAs Quantenpunkte in Al<sub>0.12</sub>Ga<sub>0.88</sub>As

Zur optischen Anregung der InAs Quantenpunkte in Probenserie A wurden die Strahlung einer Laserdiode  $(1.59 \ eV, 780 \ nm)$  mit einer Leistung von 17 mWverwendet. Wie in Kapitel 5.2 beschrieben wurde, kam zur Messung des Hanle-Effektes an Probenserie A kein Spektrometer zum Einsatz. Vielmehr ist die Lumineszenz mit Hilfe eines Hohlspiegels direkt nach der Probe auf eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte Germaniumdiode fokussiert worden. Zur Unterdrückung von Laserstreulicht wurde ein GaAs Kantenfilter vor dem Detektor montiert. Abbildung 5.6 zeigt typische Hanle- Kurven der undotierten Quantenpunktprobe F191 bei unterschiedlichen Temperaturen. Speziell bei niedriger Temperatur und kleinem Magnetfeld (B < 0.1 T) nimmt der zirkulare Polarisationsgrad  $\rho_c(B)$  sehr schnell ab. Zur besseren Übersicht zeigt das kleine Bild in Abb. 5.6 den Bereich kleiner Magnetfelder in einem vergrößerten Maßstab. Bei höheren Magnetfeldern nimmt der Polarisationsgrad langsam weiter ab. Diese Linienform kann nicht durch eine einzelne Lorentzlinie nach Gl. 4.1 beschrieben werden. Eine Anpassung mit Hilfe einer linearen Uberlagerung von zwei Lorentzlinien zeigt eine perfekte Übereinstimmung mit den experimentellen Werten und ist in Form glatter Linien zusätzlich zu den gemessenen Hanle- Kurven eingezeichnet. Wie in Abb. 5.6 zu erkennen ist, beträgt der zirkulare Polarisationsgrad bei einer Temperatur von 1.8 K für B = 0.3.5 % und sinkt auf 0.1 % bei 3 T. Aus der Anpassung der Hanle-Kurven durch Überlagerung



Abbildung 5.6: Gemessene Hanle- Kurven für die undotierten InAs Quantenpunkte in Probe F191 bei verschiedenen Temperaturen. Mit eingezeichnet: Anpassung an Überlagerung von zwei Lorentzlinien. Kleines Bild: Hanle- Kurven für kleine Magnetfelder bei verschiedenen Temperaturen.

von zwei Lorentzlinien erhält man zwei Spinlebenszeiten. Diese beiden Zeiten sind in Abb. 5.7 (a) als Funktion der Temperatur eingezeichnet. Bei 1.8 K beträgt die zu der schmalen Hanle- Kurve gehörige Spinlebenszeit 320 ps, wohingegen  $T_2^*$  aus der breiten Struktur 15 ps beträgt. Beide Spinlebenszeiten zeigen einen linearen Abfall mit steigender Temperatur und erreichen bei 120 K Werte von 90 ps bzw. 3 ps. Es sei angemerkt, daß Hanle- Kurven die auf zwei Spinlebensdauern hinweisen bereits von anderen Autoren an InAs Quantenpunkten beobachtet worden sind [78].



Abbildung 5.7: (a) Spinlebenszeiten  $T_2^*$  als Funktion der Temperatur für die undotierte Probe F191. (b) Nullfeld Polaristionsgrad  $\rho_c(0)$  der Probe F191 über der Temperatur.

Biexponentielle Hanle- Kurven wurden vor kurzem auch an hochreinen AlGaAs Mischkristallen beobachtet [79]. Ihre Form wurde durch einen zweistufigen Kaskadenprozess erklärt. Der erste Prozess beschreibt dabei die Spinrelaxation der freien Elektronen bevor sich Exzitonen bilden. Als zweiter Prozess gilt die Spinrelaxation des Exzitons. In den hier untersuchten Quantenpunktproben werden die photoangeregten Ladungsträger innerhalb weniger Pikosekunden von den Quantenpunkten eingefangen. Dies bedeutet, daß die Zeit für effektive Spinrelaxation zu kurz ist. Damit kann dieser Zweistufenprozess die hier vorgestellten Resultate nicht erklären. Die hier beobachteten zwei Strukturen der Hanle- Kurven aus Abb. 5.6 werden zwei gleichzeitig stattfindenden strahlenden Rekombinationsprozessen in den Quantenpunkten zugeschrieben. Die schmale Struktur bei kleinem Magnetfeld entspricht der Rekombination des Exzitonengrundzustandes  $(X^0)$ , während die breite Kontur der Rekombination des Trionengrundzustandes  $(X^+)$  zugeordnet ist. Unter Trionen versteht man Exzitonen mit einer zusätzlichen positiven oder negativen Ladung, womit diese Komplexe aus drei Teilchen zusammengesetzt sind. Positiv geladene Trionen  $(X^+)$  bestehen aus zwei Löchern und einem Elektron, während negativ geladene Trionen  $(X^{-})$  aus zwei Elektronen und einem Loch bestehen. Aufgrund von inhomogener Verbreiterung konnten diese beiden Prozesse in den Photolumineszenzspektren nicht getrennt werden. Die Beobachtung von Trionenphotolumineszenz in einer nicht absichtlich dotierten Quantenpunktstruktur kann durch das Vorhandensein eines Bruchteils von p- dotierten Quantenpunkten erklärt werden, die durch eine geringe Konzentration von Akzeptoren entstanden sind. Weiterhin können photoangeregte Elektronen und Löcher in einer undotierten Quantenpunktprobe von verschiedenen Quantenpunkten eingefangen werden und so einige Quantenpunkte elektrisch aufladen. In beiden Fällen führen Elektron- Loch Paare in positiv geladenen Quantenpunkten zu Trionenzuständen, während jene in ungeladenen Quantenpunkten Exzitonen Photolumineszenz zeigen (Elektron- Loch- Paare in negativ geladenen Quantenpunkten bilden ebenfalls Trionen  $(X^{-})$ , emittieren jedoch unpolarisiertes Licht und werden deshalb in unserem Experiment nicht nachgewiesen). Die photoangeregten Elektronen werden zwischen ungeladenen und geladenen Quantenpunkten gemäß den entsprechenden Besetzungsfaktoren  $\kappa_{X^0}$  und  $\kappa_{X^+}$  verteilt. In

tenpunkten gemäß den entsprechenden Besetzungsfaktoren  $\kappa_{X^0}$  und  $\kappa_{X^+}$  verteilt. In Folge dessen muß der zirkulare Polarisationsgrad  $\rho_c(0)$  bei B = 0 aus Gl. 4.1 entsprechend modifiziert werden. Es gilt:

$$\rho_c(0) = \rho_0 \left( \kappa_{X^0} \frac{\tau_{1X^0}}{\tau_{1X^0} + \tau_{X^0}} + \kappa_{X^+} \frac{\tau_{1X^+}}{\tau_{1X^+} + \tau_{X^+}} \right) = \rho_{X^0}(0) + \rho_{X^+}(0) \quad .$$
 (5.2)

Weiterhin gilt Gl. 3.23 separat für ungeladene Quantenpunkte (Exzitonen) und geladene (Trionen), womit sich der zirkulare Nullfeld- Polarisationsgrad zusammen mit Gl. 5.2 berechnen läßt. Man erhält:

$$\rho_{X^0}(0) = \rho_0 \kappa_{X^0} T^*_{2X^0} \frac{1}{\tau_{X^0}}$$
(5.3)

$$\rho_{X^+}(0) = \rho_0 \kappa_{X^+} T^*_{2X^+} \frac{1}{\tau_{X^+}} \quad . \tag{5.4}$$

Durch Bildung des Verhältnisses der beiden obigen Gleichungen ergibt sich:

$$\frac{\tau_{X^0}}{\tau_{X^+}} = \frac{\kappa_{X^0}}{\kappa_{X^+}} \frac{T^*_{2X^0}}{T^*_{2X^+}} \frac{\rho_{X^+}(0)}{\rho_{X^0}(0)} \quad .$$
(5.5)

Für eine Temperatur von  $T = 1.8 \ K$  erhält man nach Abb. 5.7 (a) für  $\frac{T_{2X^0}}{T_{2X^+}} = 21$ . Abbildung 5.7 (b) zeigt die zirkulare Nullfeld- Polarisation als Funktion der Temperatur für Exzitonen und Trionen Photolumineszenz. Damit ergibt sich  $\frac{\rho_{X^0}(0)}{\rho_{X^+}(0)} = 1.8$  für  $T = 1.8 \ K$  und es gilt:

$$\frac{\tau_{X^0}}{\tau_{X^+}} \approx 12 \cdot \frac{\kappa_{X^0}}{\kappa_{X^+}} \quad . \tag{5.6}$$

Anhand der Messwerte aus den Abb. 5.7 (a) und (b) läßt sich zeigen, daß das Verhältnis von  $\frac{\tau_{X^0}}{\kappa_{X^0}}$ :  $\frac{\tau_{X^0}}{\kappa_{X^+}}$  in dem Temperaturbereich von 1.8 – 120 K praktisch konstant ist.

In Abb. 5.8 sind die gemessenen Hanle- Kurven für die p- dotierte Quantenpunktprobe F345/2 für verschiedene Temperaturen gezeigt. Für niedrige Magnetfelder gibt das kleine Bild in der Abbildung den zirkularen Polarisationsgrad der Photolumineszenz in einem vergrößerten Maßstab wieder. Der maximale Polarisationsgrad bei 1.8 K beträgt 4.6 %. Wie erwartet ist dieser höher als jener der undotierten Quantenpunktprobe F191, da das optische Pumpen in p- dotieren Materialien im allgemeinen effektiver ist. Mit steigendem Magnetfeld nimmt der Polarisationsgrad ab. Im Gegensatz zur undotierten Probe F191 aus Abb. 5.6, wo der zirkulare Polarisationsgrad bei einem Magnetfeld von 3 T komplett verschwunden ist, beträgt er für die p- dotierte Probe bei diesem Feld noch 1.5 %. Mit weiter ansteigendem Feld sinkt dieser Polarisationsgrad weiter bis er bei dem höchsten in dieser Untersuchung verwendeten Feld von 6.5~T einen Wert von 0.7 % erreicht. Die Temperatur bei dieser Messung betrug 1.8 K. Im Vergleich zu den Hanle- Kurven der undotierten Probe findet sich hier eine zusätzliche dritte sehr breite Komponente. Die daraus abgeleitete Spinlebenszeit beträgt bei  $T = 1.8 \ K$  lediglich 3 ps. Die glatten Linien in Abb. 5.6 sind Anpassungen an



Abbildung 5.8: Zirkularer Polarisationsgrad  $\rho_c(B)$  der p- dotierten Quantenpunkte in Probe F345/2 als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene Temperaturen zusammen mit Lorentzanpassungen. Kleines Bild: Hanle- Kurven für kleine Magnetfelder und einige Temperaturen.

die experimentellen Daten mit einer linearen Überlagerung von drei Lorentzlinien. Diese Anpassung beschreibt die beobachteten Hanle- Kurven auf perfekte Weise, wohingegen Versuche die Daten mit einer Überlagerung von zwei Lorentzlinien zu beschreiben, in dem Temperaturbereich von 1.8 - 60 K unbefriedigende Resultate zeigten.

Als Konsequenz ziehen wir drei gleichzeitig stattfindende strahlende Rekombinationen zur Klärung der beobachteten Hanle- Kurven an p- dotierten Quantenpunkten in Betracht. Der Ursprung dieser Prozesse konnte jedoch nicht eindeutig geklärt werden. Man könnte sich vorstellen, daß diese drei beobachteten Prozesse durch strahlende Rekombination in positiv geladenen Quantenpunkten mit unterschiedlicher Zahl von Löchern stattfinden. Durch die Dotierung befinden sich im Mittel ca. 6 Löcher in jedem Quantenpunkt. Die Intensität der anregenden Laserdiode reicht aus, um etwa ein Elektron- Loch- Paar je Quantenpunkt zu erzeugen. Somit befindet sich als Mittelwert eine gerade Anzahl von 8 Teilchen in einem positiv geladenen Komplex. Fluktuationen in dieser Zahl führen dazu, daß pro Quantenpunkt eine ungerade Zahl von 7 bzw. 9 Teilchen vorhanden ist. Somit sind die drei beobachteten Prozesse strahlenden Rekombinationen aus Quantenpunkten mit 7, 8 oder 9 Teilchen zuzuordnen.

Wie in Abb. 5.9 (a) zu erkennen ist, besitzen die Nullfeld Amplituden  $\rho_c(0)$  des zirkularen Polarisationsgrades der drei Prozesse bei 1.8 K in etwa die gleiche Größe. Mit steigender Temperatur nehmen die Beiträge der schmalen und breiten Komponente der Hanle- Kurve ab und sind oberhalb von ca. 80 K nicht mehr zu beobachten. In dem Temperaturbereich von 60 bis 120 K dominiert die mittelbreite Komponente mit einer Spinlebenszeit von  $T_2^* = 30 \ ps$ , deren Amplitude nahezu konstant bleibt. Damit zeigen diese Daten, daß die Temperaturabhängigkeiten der Spinlebenszeiten und Besetzungskoeffizienten für geladene Exzitonen mit einer geraden bzw. ungeraden Zahl von Teilchen verschieden sind.

Abbildung 5.9 (b) gibt die aus der Anpassung mit Lorentzlinien erhaltenen Spinlebenszeiten als Funktion der Temperatur wieder. Die lange Spinlebenszeit  $T_2^*$  der schmalen Komponente der Hanle- Kurve sinkt von 270 ps bei T = 1.8 K auf 40 ps bei T = 80 K. Die mittlere Lebenszeit mit einem Wert von 30 ps bei T = 1.8 Knimmt auf 15 ps bei T = 120 K ab. Die breite Kontur der Hanle- Kurve entspricht einer sehr kurzen Spinlebenszeit von 3 ps und bleibt in dem Temperaturbereich von 1.8 bis 60 K nahezu konstant, wie in dem kleinen Bild in Abb. 5.9 (b) zur besseren Übersicht in einem vergrößerten Maßstab gezeigt ist. Für Temperaturen oberhalb von 60 K konnte diese kurze Lebenszeit nicht mehr beobachtet werden.



Abbildung 5.9: (a) Nullfeld Polaristionsgrad  $\rho_c(0)$  der Probe F345/2 über der Temperatur. (b) Spinlebenszeiten  $T_2^*$  als Funktion der Temperatur. Kleines Bild: Kurze Lebenszeit in einem vergrößerten Maßstab.

Abbildung 5.10 zeigt die erhaltene Hanle- Kurve für die n- dotierte Quantenpunktprobe F346 bei einer Temperatur von 1.8 K. Die Beobachtung einer Spinpolarisa-



Abbildung 5.10: Hanle- Kurve für die n- dotierte Probe F346 bei einer Temperatur von 1.8 K mit angepaßter Lorentzkurve.

tion in einem hoch n- dotierten System (6 Elektronen je Quantenpunkt) ist sehr bemerkenswert. Die Anzahl der durch den Pumplaser erzeugten spinpolarisierten Elektronen ist im Vergleich zur Dotierung klein und beträgt im Mittel 1 polarisiertes Elektron auf 6 unpolarisierte je Quantenpunkt. Aus diesem Grund erwartet man eine Spinpolarisation der Elektronen, die um mindestens einen Faktor 10 geringer ist, als bei der undotierten Probe. Wie das experimentelle Resultat in Abb. 5.10 zeigt, reicht die Zahl der vorhandenen polarisierten Elektronen für einen sehr niedrigen, aber mit ausgeklügelten Methoden meßbaren zirkularen Polarisationsgrad der Photolumineszenz von 0.1 % bei B = 0 aus. Dieser sinkt in einem transversalen Magnetfeld von 300 mT auf 0.04 %. Dabei kann nicht ausgeschlossen werden, daß dieser kleine Untergrund von Laserstreulicht herrührt. Da die hier vorgestellte Messung an der Grenze der Nachweisempfindlichkeit des Experimentes liegt, konnten keine weiterführenden Untersuchungen bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt werden. Durch Anpassung der Messung mit einer Lorentzlinie (glatte Kurve in Abb. 5.10) konnte die Halbwertsbreite der Hanle- Kurve zu 10 mT bestimmt werden. Dies entspricht einer sehr langen Spinlebenszeit von 1100 ps.

Diese sehr lange Spinlebenszeit der Elektronen erlaubt es, die Kerne sehr effektiv dynamisch zu polarisieren. Aus diesem Grund wurde an dieser Probe versucht, optisch detektierte Kernspinresonanz zu beobachten. Leider konnte aufgrund des schlechten Signal- zu- Rausch Verhältnisses, wie in Abb. 5.10 zu erkennen ist, kein ODNMR Signal nachgewiesen werden.

#### 5.3.2 Probenserie B - InGaAs Quantenpunkte in GaAs

Bei allen hier vorgestellten Messungen an der Probenserie B befanden sich die Proben in superfluidem Helium bei einer Temperatur von 1.8 K. Abbildung 5.11 (a) zeigt die erhaltene Hanle- Kurve für die InAs Quantenpunktprobe 1221, wobei das Spektrometer auf eine Energie von  $1.6 \ eV$  eingestellt war. Die Anregung erfolgte mit der 514 nm (2.4 eV) Linie des Ar-Ionenlasers und einer Leistung von 50 mW. Da die Anregung mit 2.4 eV weit oberhalb der Lumineszenz der Quantenpunkte stattfindet, ist ein niedriger Polarisationsgrad zu erwarten. Tatsächlich liegt der maximale zirkulare Polarisationsgrad bei 1% (vgl. Abb. 5.11 (a)). Mit Hilfe einer einzelnen Lorentzkurve läßt sich die gemessene Hanle- Kurve perfekt anpassen. Die Anpassung ist in Abb. 5.11 (a) als glatte Linie gezeigt. Die entsprechende Halbwertsbreite beträgt 81 mT, und die damit verbundene Spinlebenszeit ist  $T_2^* = 163 \ ps$ . Um den Polarisationsgrad zu steigern, wurde die Anregung mit Hilfe eines He- Ne Lasers  $(1.96 \ eV)$  durchgeführt. Da diese Energie näher an der Lumineszenz der Quantenpunkte liegt, sollte sich ein erhöhter Polarisationsgrad ergeben. Abbildung 5.11 (b) zeigt das Resultat. Der maximale Polarisationsgrad ist auf ca. 5% gestiegen. Die durchgeführte Anpassung liefert eine Lebensdauer von  $T_2^* = 162 \ ps$  und stimmt damit innerhalb der Meßfehler mit der oben erhaltenen überein. Die Abhängigkeit der Lumineszenzintensität und des zirkularem Nullfeld Polarisationsgrads  $\rho_c(0)$ 



Abbildung 5.11: Resultate der InAs Quantenpunktprobe 1221. (a) Hanle-Kurve bei Anregung mit 514 nm Linie des Argon Lasers und einer Leistung von 50 mW. Die angepaßte Lorentzlinie ist als glatte Linie eingezeichnet. (b) Hanle-Kurve bei Anregung mit He- Ne Laser (632.8 nm) und einer Leistung von 20 mW mit Anpassung. (c) Zirkularer Polarisationsgrad und Photolumineszenz als Funktion der Photonenenergie.

von der Photonenenergie zeigt Abb. 5.11 (c). Bei dieser Messung wurde ebenfalls der He- Ne Laserstrahl zur optischen Anregung verwendet. Die starke Struktur bei  $1.52 \ eV$  ist wieder dem GaAs zuzuschreiben. Der Ursprung der beiden dominan-

ten Strukturen bei 1730 und 1780 meV konnte nicht geklärt werden. Möglicherweise spiegeln sich hier Maxima in der inhomogenen Größenverteilung der Quantenpunkte wieder. Weiterhin zeigt sich, daß der Nullfeld Polarisationsgrad  $\rho_c(0)$  der Lumineszenz des GaAs entgegen der des Lasers gerichtet ist und somit ein negatives Signal von  $\rho_c(0)$  liefert.

Abbildung 5.12 zeigt die erhaltenen Hanle- Kurven der  $In_{0.5}Ga_{0.5}As$  Quantenpunkte in Probe 1168 bei Anregung mit He- Ne Laserstrahlung (Leistung 20 mW). Dabei wurde die Probe um einen bestimmten Winkel zum einfallenden  $\vec{k}$ - Vektor gedreht.  $0^{0}$  bedeutet hierbei, daß die Oberflächennormale parallel zum  $\vec{k}$ - Vektor des Lichtes liegt. In Bild (a) wurde der anregende Laser, wie bei Hanle-Messungen üblich, mit Hilfe des PEM zwischen links- und rechtszirkular polarisiertem Licht umgeschaltet, wobei der Nachweis konstant links- oder rechtszikular durchgeführt wurde. In Abb. 5.12 (b) war die Anregung konstant zirkular polarisiert, und der Nachweis des Photolumineszenzlichts erfolgte mit Umschaltung zwischen rechts- und linkszirkularer Polarisation. Wie in Abb. 5.12 (a) zu erkennen ist, beträgt der maximale Polarisationsgrad bei modulierter Anregung und  $0^{0}$ - Stellung ca. 4.6%. Durch Drehung der Probe nimmt der maximale Polarisationsgrad bis auf 6% zu, wobei ein starker Untergrund zu beobachten ist. Dieser Untergrund kann nicht von einem Kernfeld her rühren, da die Anregung mit 50 kHz moduliert wurde. Regt man hingegen konstant an, ist dieser Untergrund nicht zu beobachten (vgl. Abb. 5.12(b)). Der maximale Polarisationsgrad beträgt hierbei in der  $0^{0}$ - Stellung nur 3.2% und bleibt bis zu einem Drehwinkel von  $30^{0}$  konstant. Erst bei  $45^{0}$  nimmt die maximale Polarisation auf ca. 3.5% zu, und die Basisllinie beginnt sich leicht zu neigen.

Die Hanle- Kurven lassen sich wie die in der Serie A nicht durch eine einzige Lorentzlinie beschreiben. Es wird eine lineare Überlagerung von zweien zur Analyse verwendet, womit sich wiederum zwei Spinlebenszeiten ergeben. Die Ergebnisse sind in den Abb. 5.13 (a) und (b) dargestellt. Für beide untersuchten Proben erhält man eine kurze und eine lange Lebenszeit, die mit zunehmendem Drehwinkel eine steigende Tendenz zeigen. Bei modulierter Anregung und  $0^0$  Stellung erhält man 170 ps sowie 710 ps (vgl. Abb. 5.13 (a)). In 45<sup>o</sup> Stellung betragen diese Zeiten 300 ps und 1600 ps. Bei konstanter Anregung ergibt sich für die kurze Zeit eine Zunahme von 220 ps auf 340 ps und für die lange Zeit von 1350 ps auf 1720 ps (vgl. Abb. 5.13 (b)) bei Drehung der Probe. Diese Zeiten sind verglichen mit jenen der Probenserie



Abbildung 5.12: Hanle- Kurven der  $In_{0.5}Ga_{0.5}As$  Quantenpunktprobe 1168 bei Anregung mit 20 mW He- Ne Laser. (a) Anregung moduliert, Nachweise konstant zirkular polarisiert. (b) Anregung konstant zirkular polarisiert, Nachweis moduliert.

A sehr lang. Speziell ist die Lebenszeit von 1720 ps bei konstanter Anregung und  $45^{0}$  Stellung bemerkenswert. Trotz dieser langen Spinlebenszeit und einer Zunahme des Polarisationsgrades auf 15% in einem longitudinalem Magnetfeld von 1100 mT konnte keine ODNMR nachgewiesen werden.

Abbildung 5.13 (c) zeigt die Abhängigkeit der Lumineszenz und deren Polarisationsgrad bei Anregung mit der 632.8 nm Linie eines He- Ne Lasers (Leistung 20 mW). Bei 1.52 eV findet sich die Signatur des GaAs. Wieder zeigt sich, daß der Nullfeld Polarisationsgrad der Quantenpunkte und des GaAs entgegengesetztes Vorzeichen



Abbildung 5.13: Spinlebenszeiten  $T_2^*$  für  $In_{0.5}Ga_{0.5}As$  Quantenpunkte in Probe 1168 in Abhängigkeit vom Drehwinkel bei (a) modulierter Anregung und (b) konstanter Anregung. (c) Lumineszenz und zirkularer Polarisationsgrad  $\rho_c(0)$  als Funktion der Energie.

aufweisen.

## 5.3.3 Probenserie C - InAs Quantenpunkte in $Al_xGa_{1-x}As$

Zur Anregung der InAs Quantenpunkte in  $Al_x Ga_{1-x} As$  Matrizen wurde ein kontinuierlich emittierender Argonlaser mit einer Photonenenergie von 2.54 eV (514 nm) mit einer Leistung von 100 mW verwendet. Ergänzend erfolgte die Messung der Hanle- Kurve an InAs Quantenpunkten in GaAs Matrix mit 17 mW einer Laserdiode mit der Energie von 1.59 eV (780 nm). Die Proben befanden sich während der Messung in superfluidem Helium bei einer Temperatur von 1.8 K. Das transversale Magnetfeld wurde durch einen Elektromagneten erzeugt. Abbildung 5.14 zeigt die erhaltenen Hanle- Kurven. In den Abbildungen 5.14 (a) - (e) erfolgte die Anregung mit dem Argonlaser. Die Hanle- Kurven in den Abbildungen (a) - (d) lassen sich durch eine einzige Lorentzlinie anpassen, wobei die Ergebnisse der Anpassungen in den Abbildungen als Linien ohne Rauschen zu sehen sind. Für InAs Quantenpunkte in AlAs (x = 1) ist der maximale Polarisationsgrad  $\rho_c = 0.8$  % und sinkt mit steigendem Magnetfeld auf 0.4 % bei 100 mT. Die Breite der entsprechenden Hanle-Kurve (FWHM) beträgt 17.5 mT und ist die kleinste in dieser Meßreihe. Verglichen mit den anderen Quantenpunktproben mit x = 0.75 und x = 0.5 ist der maximale Polarisationsgrad eine Größenordnung kleiner.

Für einen Aluminiumgehalt von x = 0.75 nimmt  $\rho_c$  von 5.3 % bei B = 0 auf 2.4 % bei  $B = 200 \ mT$  ab. Die entsprechende Halbwertsbreite (FWMH) beträgt 65 mTund ist damit größer als für die x = 1 Probe. Bei einem Aluminiumgehalt von x = 0.5beträgt die FWMH bereits 123 mT. Der zirkulare Polarisationsgrad fällt von 10 %bei B = 0 auf 7.7 %. Der Ursprung der Restpolarisation bei hohem Magnetfeld ist nicht klar. Der beobachtete Untergrund kann nicht von Laserstreulicht kommen. Dies wird mit Hilfe von Abb. 5.14 (e) bewiesen, wo bei identischem experimentellen Aufbau ein vollständiges Verschwinden der Photolumineszenz- Polarisation beobachtet wird. Wie oben gezeigt, wurde auch bei Probenserie B ein polarisierter Untergrund festgestellt. Die Ursache für dieses Verhalten ist in weiteren zukünftigen Projekten zu klären. Falls die InAs Quantenpunkte in einem Matrixmaterial mit direkter Energielücke eingebettet sind, wie dies bei der Probe mit x = 0.25 der Fall ist, reduziert sich der maximale Polarisationsgrad um eine Größenordnung auf 0.8 % (siehe Abb. 5.14 (d)). Neben der Tatsache, daß der Nullfeld Polarisationsgrad reduziert ist, hält der Trend, mit kleiner werdenden x Werten breitere Hanle- Kurven zu erhalten, an. Die Breite der Kurve in Abb. 5.14 (d) beträgt 520 mT.

Die kleinste Polarisation bei B = 0 wurde mit einem Wert von 0.2 % für InAs Quantenpunkte in GaAs (x = 0) beobachtet. Die gemessene Hanle- Kurve konnte nicht mit einer einzigen Lorentzlinie, sondern nur mit einer linearen Überlagerung von



Abbildung 5.14: Hanle- Kurven der Probenserie C bei einer Temperatur von 1.8 K, wobei die x- Werte den Aluminiumgehalt des Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As Matrixmaterials angeben, in welchem die InAs Quantenpunkte eingebettet sind. Die Anregung erfolgte in den Abbildungen (a)- (e) durch einen Argonlaser (Leistung 100 mW) und in (f) durch die Laserdiode mit der Energie von 1.59 eV (780 nm) und einer Leistung von 17 mW (E: Nachweisenergie).

zweien angepaßt werden. Die Anpassung ist in Abb. 5.14 (e) als glatte Linie gezeigt. Die breite Komponente der Hanle- Kurve liefert eine FWMH von 2700 mT und paßt in den oben ausgeführten Trend, mit kleiner werdenden x Werten breitere Hanle-Kurven zu erhalten. Zusätzlich erscheint jedoch für die x = 0 Probe eine schmale Kontur für kleine Magnetfelder mit einer FWHM von 172 mT. Für weitergehende

Untersuchungen wurde diese Probe mit der Laserdiode bei  $1.59 \ eV$  angeregt. Abbildung 5.14 (f) zeigt das Resultat. Da die Photonenenergie der Laserdiode näher an der Energielücke der Quantenpunkte liegt, ist das optische Pumpen effektiver, was sich in einem höheren Nullfeld Polarisationsgrad von 4 % niederschlägt. Weiterhin ist die Linienform durch eine einzelne Lorentzlinie zu beschreiben, und man erhält eine Breite von 112 mT. Zur Untersuchung des Einflusses des Matrixmaterials auf die Elektronenspinlebenszeit in den Quantenpunkten wurden für die Probe mit x = 0 die erhaltenen Resultate bei Anregung mit dem Argonlaser verwendet, da die Anregung mit der Laserdiode offensichtlich die Resultate durch resonante Anregung der Photolumineszenz verändert. Da weiterhin beobachtet wurde, daß mit kleiner werdenden x Werten die Hanle-Kurven an Breite zunehmen, wird die schmale Struktur aus Abb. 5.14 (e) in der folgenden Diskussion nicht weiter betrachtet. In Abb. 5.15 (a) sind die gemessenen Halbwertsbreiten der Hanle-Kurven als Funktion des Aluminiumgehaltes x zu sehen. Dabei wurde, wie bereits erwähnt die schmale Struktur der Hanle- Kurve für die Quantenpunktprobe x = 0 mit einer Lebenszeit von  $T_2^* = 150 \ ps$  aus oben genannten Gründen nicht in die Abbildung aufgenommen. Abbildung 5.15 (a) zeigt eindrucksvoll, daß mit zunehmenden Aluminiumgehalt des Matrixmaterials die FWHM der entsprechenden Hanle- Kurve von 2700 mT für x = 0 auf 17.5 mT für x = 1 sinkt. Da die Spinlebenszeit indirekt proportional zur Breite der Hanle- Kurve ist, zeigen die Spinlebenszeiten  $T_2^*$  in Abb. 5.15 (b) das entgegengesetzte Verhalten. Für InAs Quantenpunkte in GaAs wurde mit 5 psdie kürzeste Spinlebenszeit beobachtet. Mit steigendem x nimmt die Lebenszeit des Elektronenspins zu und erreicht für InAs Quantenpunkte in einem Matrixmaterial mit indirekter Energielücke bei x = 1 mit einem Wert von 1510 ps ihren Maximalwert.

Zur theoretischen Beschreibung der Abhängigkeit der Spinlebenszeit von x ist der Dyakonov- Perel Relaxationsmechanismus [53] geeignet und wird an dieser Stelle kurz vorgestellt (siehe auch [80]). In Kristallen ohne Inversionssymmetrie ist die Spin- Entartung des Leitungsbandes für  $\vec{k} \neq 0$  aufgehoben. Damit besitzen Elektronen mit gleichen  $\vec{k}$  Werten aber unterschiedlicher Spinorientierung verschiedene Energien. Diese Spinaufspaltung des Leitungsbandes kann durch ein internes effekti-



Abbildung 5.15: Resultate der Probenserie C bei einer Temperatur von 1.8 K und einer Anregungsenergie von 2.54 eV. (a) Breite (FWHM) der Hanle- Kurven als Funktion des Aluminiumgehalts. Die entsprechenden Spinlebensdauern  $T_2^*$  als Funktion des Aluminiumgehalts zeigt Bild (b).

ves Magnetfeld  $\vec{\Pi}$  beschrieben werden. Der dazugehörende Hamiltonoperator lautet:

$$H = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} + \frac{\hbar}{2} (\vec{\sigma} \cdot \vec{\Pi}(\vec{k})) \quad , \quad \vec{\Pi}(\vec{k}) = \beta \hbar^2 (2m_e^3 E_g)^{-1/2} \vec{K} \quad .$$
 (5.7)

Hierbei ist  $m_e$  die effektive Elektronenmasse,  $E_g$  die Energielücke und  $K_z = k_z (k_x^2 - k_y^2)$ , wobei sich die anderen Komponenten von  $\vec{K}$  durch zyklische Vertauschung der Indizes ergeben. Für  $\beta$  gilt:

$$\beta = \frac{4}{3} \frac{m_e}{m_{cv}} \eta (1 - \eta/3)^{-1/2} \quad \text{mit} \quad \eta = \frac{\Delta}{E_g + \Delta} \quad .$$
 (5.8)

 $m_{cv}$  beschreibt einen Interbandterm quadratisch in k, der die Wechselwirkung von Leitungs- und Valenzband mit anderen Bändern beinhaltet. Die Elektronenspins präzedieren um das effektive Feld  $\vec{\Pi}$ .

Durch Kollisionen ändert sich der quasi- Impuls der Elektronen. Dies führt zu einer Rotation der Präzessionsachse. Die mit den Stößen verbundene Relaxationsrate des Elektronenimpulses ist durch  $\tau_p$  berücksichtigt. Für den hier untersuchten Fall von  $\Pi \tau_p << 1$  ändert sich der Winkel der Spinpräzession in dem Zeitraum zwischen zwei Stößen nur wenig, und die Orientierung des Elektronenspinsystems läßt sich als zirkularer Polarisationsgrad der Photolumineszenz nachweisen. Für die Relaxationszeit der Elektronenspins gilt in diesem Fall

$$\tau_s \approx (\bar{\Pi^2} \tau_p)^{-1} \quad , \tag{5.9}$$

wobei der Querstrich einer Mittelung über alle quasi- Impulsrichtungen entspricht. Um die Abhängigkeit der Spinlebenszeit der Elektronen des Systems  $Al_xGa_{1-x}As$ als Funktion des Aluminiumgehaltes x zu beschreiben wurde der Ansatz

$$\Pi^2(x) \propto \beta^2(x) \frac{(\hbar\omega_{ex} - E_g(x))^3}{E_g(x)}$$
(5.10)

verwendet, wobei  $\hbar \omega_{ex}$  der Photonenenergie des anregenden Lasers entspricht. Der effektivste Mechanismus zur Impulsänderung von heißen Elektronen ist die Streuung an optischen Phononen. In diesem Fall ist

$$\tau_p^{-1}(x) \approx \alpha_F(x)\omega_{TO}(x) \quad . \tag{5.11}$$

 $\alpha_F$  ist der dimensionalose Fröhlich Kopplungsparameter und  $\omega_{TO}$  die Frequenz des transversalen optischen Phonons. Für die übrigen Abhängigkeiten der Parameter von x erhält man nach [73]:

$$\begin{split} E_g^{\Gamma}(x) &= 1.424 + 1.247x \quad (0 < x < 0, 45) \quad (\text{in eV}) \quad , \\ E_g^X &= 1.911 + 0.005x + 0.245x^2 \quad (\text{in eV}) \quad , \\ \alpha_F(x) &= 0.068 + 0.058x \quad (\Gamma \text{ Tal}) \quad , \\ \alpha_F(x) &= 0.152 + 0.014x \quad (X \text{ Tal}) \quad , \\ \omega_{TO}(x) &= 33.29 + 10.79x + 0.03x^2 + 0.86x^3 \quad (\text{in meV}) \quad . \end{split}$$

Zur Anpassung des theoretischen Modells an die erhaltenen Meßwerte wurde der Parameter  $\beta$  in Gl. 5.8 als unabhängig von x angenommen, da unbekannt ist, inwieweit das Matrixelement  $m_{cv}$  von x abhängt.

Al- Gehalt (%)	$T_2^*$ (ps)	$\tau_s (\mathrm{ps})$
100	1510	1551
75	410	453
50	210	219
25	50	25
0	5	5

Tabelle 5.2: Vergleich der ab initio berechneten Spinlebensdauer  $\tau_s$  und der experimentell bestimmten Spinlebensdauer  $T_2^*$ .

Weiterhin wurde angenommen, daß der Hamiltonoperator aus Gl. 5.7 neben dem  $\Gamma$ -Punkt ebenfalls für den X- Punkt der Brillouinzone gilt. Mit diesen beiden Annahmen kann durch Gl. 5.9 die Abhängigkeit der Lebensdauer des Elektronenspins als Funktion von x berechnet werden. Dabei ist zu bemerken, daß die Rechnung ohne Anpaßparameter, außer einer Normierungskonstante, durchgeführt worden ist. Die Bestimmung der Normierungskonstante erfolgte so, daß  $\tau_s$  und  $T_2^*$  bei x = 0 (reines GaAs) übereinstimmen. Tabelle 5.2 zeigt eine Zusammenfassung der erhaltenen experimentellen und theoretischen Resultate für InAs Quantenpunkte in Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As. Die Übereinstimmung der theoretischen Werte  $\tau_s$  mit den experimentellen Spinlebenszeiten  $T_2^*$  ist ausgezeichnet. Die hervorragende Übereinstimmung von Modellrechnung und Experiment für alle x stützt die Behauptung, daß die beobachtete Abhängigkeit durch den Dyakonov- Perel Mechanismus verursacht wird.

#### 5.4 ODNMR Messungen an InAs Quantenpunkten in AlAs Matrix

Für InAs Quantenpunkte in AlAs Matrix wurde die längste Spinlebenszeit erhalten. Damit erschien diese Probe zur Messung von optisch detektierter Kernspinresonanz (ODNMR) besonders gut geeignet. Könnte an den InAs Quantenpunkten die Quadrupolaufspaltung des  $^{75}As$  Kerns beobachtet werden, würde sich hieraus die Verspannung der Quantenpunkte direkt messen lassen. Es gibt keine andere Methode, die vergleichbare Genauigkeit erlaubt. Weiterhin ließe sich aus den Intensitätsverhältnissen der ODNMR Signale der einzelnen Kerne das Eindringen der Quantenpunktwellenfunktion in das Matrixmaterial beobachten.

Die optische Anregung erfolgte zunächst mit Hilfe eines Kryptonlasers mit einer

Photonenenergie von 1.85 eV. Dadurch wurden die Elektronen und Kerne der GaAs Deckschicht polarisiert. Durch Einstrahlung einer Radiofrequenz passender Frequenz konnte der zirkulare Polarisationsgrad der Photolumineszenz, welcher von den spinpolarisierten Elektronen erzeugt wird, vermindert werden. Die Verringerung der Polarisation, welche Resonanzübergängen der Kernen <sup>75</sup>As, <sup>71</sup>Ga und <sup>69</sup>Ga zugeordnet ist, zeigt Abb. 5.16. Die Temperatur betrug bei diesen Messungen 1.8 K; die Stärke des longitudinalen Magnetfeldes ist in den Abbildungen vermerkt. Die nächst höher-



Abbildung 5.16: Erhaltene ODNMR Resultate der InAs Quantenpunktprobe mit AlAs Matrix bei Anregung mit einer Photonenenergie von 1.85 eV. Die Signale wurden der GaAs Deckschicht zugeordnet, mit den Signaturen des (a) <sup>75</sup>As- Kerns, (b) <sup>71</sup>Ga- Kerns und (c) <sup>69</sup>Ga- Kerns.

liegende Energie des Kryptonlasers liegt mit 1.92 eV oberhalb der Energie  $E_g + \Delta$ , sodaß der elektronische Polarisationsgrad null und die Photolumineszenz unpolarisiert ist.

Um die InAs Quantenpunkte optisch zu pumpen kam die Strahlung eines Argonlasers mit der Energie  $2.4 \ eV$  zum Einsatz. Damit wurde das AlAs Matrixmaterial angeregt. Die spinpolarisierten Ladungsträger werden innerhalb weniger Pikosekunden von den Quantenpunkten gefangen, womit deren Photolumineszenz eine zirkulare Polarisation aufweist, die bereits bei den Hanle- Messungen der Spinlebenszeiten genutzt wurde. Generell zeigt sich, daß eine direkte resonante Anregung von Quantenpunkten nicht effektiv möglich ist. Leider konnte trotz intensivster Bemühungen an den InAs Quantenpunkten keine ODNMR beobachtet werden.

Die erfolgreiche Beobachtung von NMR- Signalen aus der Deckschicht der Probe (siehe Abb. 5.16) beweist, daß das Meßverfahren sicher beherrscht wird und der fehlende Erfolg an den Quantenpunkten auf die Probeneigenschaften zurürckzuführen ist. Das Projekt wird weiter verfolgt, indem unsere Partner versuchen, Proben mit besserer Qualität hinsichtlich der Lebensdauern herzustellen.

#### 5.5 Zusammenfassung der Resultate an InAs Quantenpunkten

In diesem Kapitel stand die magnetooptische Untersuchung von InAs Quantenpunkten im Vordergrund. Insbesondere wurden die Spinlebenszeiten der Elektronen in InAs Quantenpunkten mit Hilfe von Hanle- Effekt Messungen bestimmt.

Zur Untersuchung des Einflusses der Dotierung der Quantenpunkte auf die Elektronenspinlebenszeit wurden in Probenserie A dotierte und undotierte Quantenpunkte untersucht. Dabei zeigte sich, daß die erhaltenen Hanle- Kurven der undotierten Quantenpunkte aus einer linearen Überlagerung von zwei Lorentzlinien bestehen. Diese beiden Komponenten ließen sich simultan stattfindenden Exzitonenund Trionenrekombinationsprozessen zuordnen, die spektral nicht getrennt werden konnten. Bei einer Temperatur von 1.8 K waren die beiden beobachteten Spinlebenszeiten 320 und 15 ps. Mit steigender Temperatur reduzierten sich diese Zeiten. Bei den p- dotierten Quantenpunkten konnten die entsprechenden Hanle- Kurven bei tiefen Temperaturen mit einer linearen Überlagerung von drei Lorentzlinien angepaßt werden. Bei 1.8 K wurde neben zwei Spinlebenszeiten von 270 und 30 ps eine dritte, sehr kurze Spinlebenszeit von nur 3 ps beobachtet. Die längste Spinlebenszeit dieser Probenserie konnte in n- dotierten Quantenpunkten gemessen werden und betrug 1100 ps bei 1.8 K.

In Probenserie B wurde der Einfluss der Art der Quantenpunkte auf die Spinlebenszeit untersucht. Für InAs und  $In_{0.5}Ga_{0.5}As$  Quantenpunkte waren bei 1.8 K keine wesentlichen Unterschiede in den Halbwertsbreiten der Hanle-Kurven zu erkennen, was auf nahezu identische Spinlebenszeiten schließen läßt. Für  $In_{0.5}Ga_{0.5}As$  Quantenpunkte zeigte sich in den Hanle- Effekt Messungen ein polarisierter Untergrund, der mit zunehmenden Winkel zwischen der Richtung des einfallenden Lichts und der Magnetfeldrichtung an Intensität zunahm. Da die Anregung während dieser Messungen mit 50 kHz moduliert wurde, kann ein Einfluss spinpolarisierter Kerne ausgeschlossen werden. Weitere Untersuchungen sind notwendig, um den Ursprung dieses Effektes zu verstehen.

Das Verhalten der Spinlebenszeit der Elektronen in InAs Quantenpunkten in einem Matrixmaterial mit direkter bzw. indirekter Energielücke wurde in Probenserie C gezeigt. Dabei reichten die Spinlebenszeiten von 5 ps für InAs Quantenpunkte in GaAs (direkter Halbleiter) bis zu 1500 ps für InAs Punkte in AlAs (indirekte Energielücke) als Matrixmaterial. Die experimentell bestimmte Abhängigkeit der Elektronenspinlebenszeit von dem Aluminiumgehalt des Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As Matrixmaterials konnte mit Hilfe des Dyakonov- Perel Relaxationsmechanismus sehr gut beschrieben werden. Wie erwartet ist die Spinlebenzeit für InAs Quantenpunkte in einem Einbettmaterial mit indirekter Energielücke am längsten.

# 6 Experimentelle Resultate und deren Deutung: PbSe- Quantenpunkte und vertikal emittierende Resonatorstrukturen

In der Dissertation von M. Aigle [34] wurden bereits ausführliche Photolumineszenzuntersuchungen an PbSe- Quantenpunkten in  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  durchgeführt. Unklar blieb dabei, ob es an der Oberfläche der PbSe Quantenpunkte durch Diffusion zu Durchmischungen der beiden Materialien PbSe und  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  kommen kann und sich dadurch das ternäre  $PbSe_xTe_{1-x}$  System bildet. Aus diesem Grund wurde in dieser Arbeit zunächst das Materialsystem  $PbSe_xTe_{1-x}$  untersucht, um seine Bandparameter zu bestimmen. Diese Resultate sind aufgrund der in Kapitel 2.2 beschriebenen Anomalien von grundlegendem physikalischem Interesse. Wegen unzureichender Kristallqualität ist es bisher noch nicht gelungen, dieses System ausreichend zu untersuchen. Erst mit Hilfe der Molekularstrahlepitaxie ist es möglich geworden, qualitativ hochwertige Proben zur Bestimmung sämtlicher Bandparameter herzustellen. Theoretisch wurde die Bandstruktur der Bleichalkogenide bereits von Wei *et al.* [10] und Bernick *et al.* [12] behandelt. Beide Autoren verwenden unterschiedliche Ansätze zur Klärung der Anomalien.

Nach Wei *et al.* [10] können die Anomalien der Bleichalkogenide mit Hilfe des Pb 6s Bandes erklärt werden. Dieses liege unterhalb des obersten Valenzbandes und sei im Gegensatz zu dem Kationen s Band in II-VI und III-V Halbleitern besetzt. Diese Besetzung führt zu einer starken Abstoßung der Pb s und Anion p Zustände am L-Punkt der Brillouinzone und erklärt die beobachteten Eigenschaften des Systems. Aufgrund des starken Unterschiedes der effektiven Massenanisotropie von 2 für PbSe und 10 für PbTe plädieren Bernick *et al.* [12] für eine Änderung der Bandanordnung am L-Punkt der Brillouinzone zwischen PbSe und PbTe, womit sich laut den Au-

toren ebenfalls die Anomalien des  $PbSe_xTe_{1-x}$  Materialsystems erklären lassen. Um aus beiden Lösungsansätzen den Korrekten zu finden, ist die genaue Bestimmung der Bandparameter unabdingbar. Insbesondere stellt sich die Frage, ob ein kontinuierlicher Übergang von Anisotropie, Fernband- Massen und *g*- Faktoren zwischen PbTe- und PbSe- Werten oder eine abrupte Änderung bei mittleren *x* Werten stattfindet. In Kapitel 6.1 findet sich die experimentelle Untersuchung des Materialsystem  $PbSe_xTe_{1-x}$ , sowie die erhaltenen Resultate.

Ziel dieser Arbeit ist die Erforschung der physikalischen Eigenschaften von PbSe Quantenpunkten. Aus früheren Arbeiten ist bekannt, daß diese Quantenpunkte eine sehr kleine Absorption zeigen. Deshalb wurden die hier untersuchten Quantenpunkte innerhalb eines vertikalen Resonators gewachsen, um damit aufgrund der erhöhten effektiven Länge die Absorption dieser Strukturen zu erhöhen. Die Ergebnisse werden in Kapitel 6.2 gezeigt.

Aus der Untersuchung von Mikroresonatoren ergab sich ein anwendungsnahes Projekt, welches sich mit der Untersuchung von vertikal emittierenden Laserstrukturen beschäftigte. Diese Arbeit wird ab dem Kapitel 6.3 beschrieben.

## 6.1 Untersuchung des Materialsystems $PbSe_{x}Te_{1-x}$

Sämtliche in diesem Kapitel untersuchten Proben wurden in der Arbeitsgruppe von Prof. Gunther Springholz (Universität Linz) mittels MBE hergestellt. Auf ein BaF<sub>2</sub> Substrat wurden je 2.7  $\mu m$  dicke Schichten des gewünschten Materials aufgewachsen. Tabelle 6.1 gibt einen Überblick über die vorhandenen Selenkonzentrationen der

Probe	Se Gehalt (%)
MBE 1613	2.4
MBE 1612	5.1
MBE 1611	10.7
MBE 1604	20.4
MBE 1605	41.8
MBE 1606	60.2
MBE 1610	70.5
MBE 1608	77.9
MBE 1609	87.7
603/1	100

Tabelle 6.1: Liste der untersuchten  $PbSe_x Te_{1-x}$  Proben.

untersuchten Probenserie. Alle Messungen wurden bei  $1.8 \ K$  in superfluidem Helium durchgeführt. Zur vollständigen Charakterisierung der Mischkristallserie kamen
mehrere, sich ergänzende experimentelle Untersuchungsmethoden zum Einsatz.

Zur Abschätzung der Energielücken wurden in einem ersten Schritt die Photolumineszenzspektren mit Hilfe des in Kapitel 4.1 beschriebenen Photolumineszenzaufbaus in Rückwärtsrichtung registriert. Die Bestimmung der weiteren Bandparameter erfolgte sowohl durch Magnetotransmissionsmessungen in Faraday- als auch Voigt-Konfiguration mit Hilfe eines CO- Lasers (siehe Kapitel 4.4) sowie durch CARS-Messungen mit einem Paar gepulster CO<sub>2</sub>- Laser (siehe Kapitel 4.5).

Zur Messung der Photolumineszenzspektren wurde als anregende Lichtquelle ein gepulster Nd:YAG Laser verwendet. Die erhaltenen Spektren zeigt Abb. 6.1 (a) (die



Abbildung 6.1: (a) Photolumineszenzsintensität der  $PbSe_xTe_{1-x}$ Mischkristallserie als Funktion der Photonenenergie. (b) Die Symbole zeigen die an Magnetotransmissionsmessungen angepaßten Energielücken in Abhängigkeit vom Selengehalt. Die durchgezogene Linie gibt eine Anpassung nach der Theorie von Wei *et al.* [10] wieder.

Prozentangaben geben den Selengehalt an). Es ist zu erkennen, daß bei dem Übergang von PbTe zu PbSe die Energielücke keine lineare Abhängigkeit von x aufweist. Vielmehr nimmt in dem Bereich von 0 % bis 41.8 % die Energielücke von 190 auf 200 meV zu, um anschließend für Selenkonzentrationen über 50 % auf 146 meV zu fallen. Ein solches Verhalten wird als "Bowing" oder "Durchbiegung" bezeichnet. Diese mehr qualitative Aussage über den Verlauf der Energielücken wird durch die an Magnetotransmissionsmessungen angepaßten Energielücken in Abb. 6.1 (b) bestätigt. Die aus diesen Experimenten erhaltenen Werte als Funktion des Selengehaltes sind als Kreise dargestellt. Nach Wei *et al.* [10] läßt sich das Durchbiegen der Energielücke  $E_g(x)$  eines Mischkristalls der Form  $A_{1-x}B_x$  durch

$$E_g(x) = (1 - x) \cdot E_g(A) + x \cdot E_g(B) - b \cdot x \cdot (1 - x)$$
(6.1)

beschreiben, wobei *b* als optischer Biegekoeffizient und  $E_g(A)$  bzw.  $E_g(B)$  die Energielücken der reinen Volumenmaterialien darstellen. Für alle direkten Halbleiter mit Zink- Blende Struktur ist b > 0, für das  $PbSe_xTe_{1-x}$  System wird jedoch ein negativer Biegekoeffizient beobachtet. Die Funktion in Gl. 6.1 läßt sich an die Punkte in Abb. 6.1 (b) anpassen, wobei sich für  $E_g(A) = 189.7 \ meV$  und  $E_g(B) = 146.3 \ meV$ ergibt. Die durchgezogene Linie zeigt die Anpassung mit einem Biegekoeffizient von  $b = -94.4 \ meV$ . Dieser experimentell ermittelte Wert stimmt mit dem theoretisch berechneten von  $b = -90 \ meV$  [10] sehr gut überein.

Die durchgeführten CARS Experimente zeigten, daß die beobachteten Signale aufgrund der unvermeidbaren n- Dotierung der Proben für alle x Werte dem Leitungsband zuzuordnen waren. Deshalb beschränkt sich folgende Diskussion lediglich auf dieses.

Aus den mit Hilfe zweier CO<sub>2</sub>- Laser erhaltenen CARS- Messungen wurde der effektive g- Faktor des Leitungsbandes für das 90<sup>°</sup> und 35<sup>°</sup> Tal ermittelt und auf die Werte für den effektiven transversalen und longitudinalen g- Faktor,  $g_t$  und  $g_l$  umgerechnet. Abbildung 6.2 zeigt in Bild (a) die Resultate für den effektiven longitudinalen g- Faktor  $g_l$  als Funktion des Selengehaltes; Bild (b) zeigt den effektiven transversalen g- Faktor  $g_t$ . Dabei stehen die runden Symbole für die aus den CARS-Messungen ermittelten Werte, wohingegen die durchgezogenen Linien Ausgleichsfunktionen darstellen. Wie in Abb. 6.2 (a) zu erkennen ist, fällt  $g_l$  zwischen 20 % und 60 % Selengehalt von 65 für PbTe auf 43 für PbSe. Das in der fundamentalen



Abbildung 6.2: Effektiver *g*- Faktor des Leitungsbandes als Funktion des Selengehaltes. Die runden Symbole geben die aus den CARS- Messungen ermittelten Werte wieder, wobei die durchgezogene Linie lediglich eine Ausgleichsfunktion darstellt. Abbildung (a) zeigt den longitudinalen (b) den tranversalen *g*- Faktor.

Energielücke beobachtete Durchbiegen zeigt sich im transversalen g- Faktor  $g_t$ . Dieser sinkt von 32.5 für PbSe auf minimal 13 bei einer Selenkonzentration von 30 % um danach auf 17.2 für PbTe zu steigen.

In Abb. 6.3 sind typische Messungen an der Probe MBE1605 (41.8%) bei einer Temperatur von 1.8 K gezeigt. In Bild (a) ist die transmittierte Intensität einer CO- Linie mit einer Energie von 1804.08  $cm^{-1}$  als Funktion des Magnetfeldes registriert. Im Vergleich zu der Transmissionsmessung an MBE1609 in Abb. 3.10 ist



Abbildung 6.3: Messungen an  $PbSe_xTe_{1-x}$  Probe MBE1605 mit 41.8% Selengehalt bei 1.8 K. (a) Magnetotransmissionmessung bei einer Frequenz von 1804.08  $cm^{-1}$ . (b) CARS Intensität als Funktion den Magnetfeldes bei den angegebenen Frequenzen der CO<sub>2</sub>-Laser.

lediglich ein sehr breites Minimum zu erkennen, das dem Landauniveau mit der Quantenzahl n = 0 in dem 0<sup>0</sup>- Tal zuzuordnen ist. Die CARS- Messung von Probe MBE1609 (87.7 %) in Abb. 3.11 zeigte drei eindeutig erkennbare Maxima, hervorgerufen durch Spinresonanzen. Im Gegensatz dazu ist in Abb. 6.3 (b) bei Probe MBE1605 lediglich ein Anstieg zu erkennen. Auf eine ausführliche Darstellung der in Abb. 6.3 gezeigten Messungen wird verzichtet, da sie lediglich dazu dienen, die schwierige Auswertung der Messergebnisse bei mittleren x- Werten zu demonstrieren. Aufgrund der schlechten Probenqualität für mittlere x- Werte konnten keine besseren Magnetotransmissions- bzw. CARS- Messungen, die genaue Aussagen erlauben, erhalten werden. Damit sind die in mittleren Konzentrationsbereichen erhaltenen Bandparameter mit einem großen Fehler behaftet.

Aus den CARS- Messungen konnten lediglich die effektiven g- Faktoren des Leitungsbandes über den gesamten Konzentrationsbereich eindeutig zugeordnet werden, welche in Abb. 6.2 gezeigt sind.

Aus Anpassungsrechnungen an Magnetotransmissions- und CARS- Messungen wurden die Fernbandbeiträge zu den g- Faktoren des Leitungsbandes bestimmt. Mit Gl. 6.2 ergeben sich daraus und aus den direkt gemessenen g- Faktoren die longitudinalen und transversalen Zweiband- g-Faktoren.

$$g_{l/t}^{Zweiband} = g_{l/t}^{eff} - g_{l/t}^{Fernband}$$

$$(6.2)$$

Für diese Zweiband- g-Faktoren gelten folgende Beziehungen:

$$g_{t/l}^{Zweiband} = 2 \cdot \frac{2p_{\perp/\parallel}^2}{m_0 E_g}$$
 (6.3)

Aus der Kenntnis der Zweiband- g-Faktoren können somit mit obiger Gleichung die Matrixelemente  $2P_{\perp}^2/m_0$  und  $2P_{\parallel}^2/m_0$  ermittelt werden. Die Resultate sind in Abb. 6.4 (a) über dem Selengehalt wiedergegeben. Während für Selenkonzentrationen zwischen 20 und 60 % das senkrechte Matrixelement  $2P_{\perp}^2/m_0$  von 6 eV für PbTe auf etwa 4 eV für PbSe sinkt, zeigt das longitudinale Matrixelement  $2P_{\parallel}^2/m_0$  in diesem Bereich ein leichtes Durchbiegen. Dies wird durch Betrachtung der Anisotropie  $a_{cv}$  in Abb. 6.4 (b) deutlicher. Aus Kenntnis der Matrixelemente läßt sich die Anisotropie  $a_{cv} = P_{\perp}/P_{\parallel}$  durch Quotientenbildung der Matrixelemente berechnen. In dieser Darstellung ist zu erkennen, daß die Anisotropie für eine Selenkonzentration von 30 % maximal ist.

Die effektiven transversalen und longitudinalen Massen des Leitungsbandes wurden mit Hilfe von Gl. 6.4

$$m_t^{eff} = \left(\frac{2P_{\perp}^2/m_0}{E_g(eV)} + \frac{1}{m_t^{Fernband}}\right)^{-1} \quad m_l^{eff} = \left(\frac{2P_{\perp}^2/m_0}{E_g(eV) \cdot a_{cv}^2} + \frac{1}{m_l^{Fernband}}\right)^{-1} \quad .$$
(6.4)

bestimmt. Die Fernbandbeiträge zu den effektiven Massen des Leitungsbandes ergeben sich wiederum aus den Anpassungsrechnungen an Magnetotransmissions-



Abbildung 6.4: (a) Matrixelemente der  $PbSe_xTe_{1-x}$  Mischkristallserie in Abhängigkeit der Selenkonzentration. Kreise bzw. Dreiecke: Resultate der Anpassungsrechnung; durchgezogenen Linien: Ausgleichsfunktion. (b) Kreise: Anisotropie  $a_{cv}$  als Funktion des Selengehaltes; durchgezogene Linie: Ausgleichsfunktion.

und CARS- Daten. Abbildung 6.5 zeigt die effektiven longitudinalen und transversalen Massen des Leitungsbandes als Funktion der Selenkonzentration. Wie bei den g- Faktoren, zeigt die longitudinale effektive Masse das bereits beschriebene Biegeverhalten und wiederspricht damit der Variante einer sprunghaften Änderung der Bandanordnung für einen bestimmten x Wert nach [12]. Tabelle 6.2 gibt eine Zusammenfassung der erhaltenen Bandparameter des Systems  $PbSe_xTe_{1-x}$ .



Abbildung 6.5: Effektive longitudinale und transversale Massen als Funktion der Selenkonzentration. Kreise: transversale Masse  $m_t$ ; Dreiecke: longitudinale Masse  $m_l$ . Die durchgezogenen Linien stellen Ausgleichskurven dar.

Wie bereits in der Einleitung dieses Kapitels erwähnt wurde, existieren zur Erklärung der Bandstruktur in dem System  $PbSe_xTe_{1-x}$  zwei theoretische Arbeiten. Während Wei *et al.* [10] für eine Abstoßung der Bänder am  $\Gamma$ - Punkt der Brillouinzone plädieren, setzen Bernick *et al.* [12] auf eine Vertauschung der Bänder. An den bisher gezeigten Messungen an dem System  $PbSe_xTe_{1-x}$  erfolgte der Übergang der betrachteten Größen von PbSe nach PbTe stets mit einer Biegung. Ein sprungartiger Verlauf, wie er bei Vertauschung der Bänder nach Bernick *et al.* [12] zu erwarten wäre, wurde nicht beobachtet. Da die in Abb. 6.4 (b) gezeigte Anisotropie wie die Energielücke eine Biegung aufweist, erscheint die theoretische Arbeit von Wei *et al.* [10] zur Klärung der beobachteten Eigenschaften des Systems  $PbSe_{x}Te_{1-x}$  besser geeignet zu sein.

Se Gehalt	$E_g$	eff. $g_l$	eff. $g_t$	$2P_{\perp}^2/m_0$	$2P_{\parallel}^{2}/m_{0}$	$a_{cv}$	eff. $m_l$	eff. $m_t$
(%)	(meV)	$^{\rm cb}$	$^{\rm cb}$	(eV)	(eV)		$^{\rm cb}$	$^{\rm cb}$
100	146.3	41	32	3.6	2.65	1.4	0.035	0.069
87.7	156.8	46	33	4.0	2.64	1.5	0.036	0.086
77.9	169.2	41	25	3.8	2.33	1.6	0.042	0.112
70.5	175.7	45	23	4.2	2.20	1.9	0.040	0.144
60.2	184.7	44	18	4.2	1.73	2.4	0.042	0.237
41.8	199.0	55	13	5.4	1.33	4.0	0.035	0.505
20.4	197.0	64	13	6.2	1.36	4.6	0.030	0.510
5.1	191.0	65	15	6.1	1.58	3.9	0.026	0.311
2.4	190.7	65	17	6.1	1.72	3.5	0.024	0.248
0	189.7	65	17	6.0	1.78	3.4	0.018	0.195

Tabelle 6.2: Zusamm	enfassung de	$r \ Bandparameter$	$der PbSe_x T$	$e_{1-x}$ Legierungsreihe.
---------------------	--------------	---------------------	----------------	----------------------------

Um mit Sicherheit zu entscheiden, welche der beiden Arbeiten den richtigen Sachverhalt beschreibt, sind die hier durchgeführten Messungen nicht ausreichend. Aufgrund mangelnder Kristallqualität in dem Konzentrationsbereich von 20 bis 70 % sind diese Messwerte mit einem relativ großen Fehler behaftet. Alle gemessenen Daten deuten auf einen kontinuierlichen Übergang der Bandparameter von PbTe nach PbSe hin, doch kann eine sprunghafte Änderung nicht vollkommen ausgeschlossen werden.

## 6.2 Vergleich von vertikal emittierenden Laserstrukturen mit null-, zwei- und dreidimensionalen Systemen in der aktiven Zone

Die in den folgenden Kapiteln beschriebenen vertikal emittierenden Laserstrukturen wurden alle in der Arbeitsgruppe von Prof. Gunther Springholz (Universität Linz) berechnet und mittels MBE hergestellt. In diesem Abschnitt werden drei vertikal emittierende Laserstrukturen verglichen. Im Gegensatz zu kantenemittierenden Halbleiterlasern besitzen vertikal emittierende Laserstrukturen (VCSELs) allgemein den Vorteil eines kreisförmigen Ausgangsstrahles mit kleiner Divergenz. Des weiteren sind sie für den Monomodebetrieb bestens geeignet und können monolitisch hoch integriert werden. Verwendet man als aktive Zone niedrigdimensionale Strukturen wie zweidimensionale Quantentröge oder nulldimensionale Quantenpunkte, so erwartet man aufgrund der starken Veränderung der Zustandsdichte eine verbesserte Lasertätigkeit, niedrigere Laserschwellen und bessere Temperaturstabilität verglichen mit dreidimensionalen aktiven Zonen [81, 82].

Speziell für den Spektralbereich des mittleren Infraroten (MIR) finden IV-VI Bleisalzmaterialien ihren Einsatz. Der Vorteil dieses Materialsystems liegt zum einen in der günstigen Bandstruktur und zum anderen in der niedrigen nichtstrahlenden Auger- Rekombinationsrate. Zur Zeit finden zur Gasanalyse mit hochauflösenden spektroskopischen Methoden und zur Kontrolle der Atmosphärenverschmutzung kantenemittierende IV-VI Halbleiterlaser ihren Einsatz [83], da viele Gase im Bereich des MIR Absorptionslinien zeigen. VCSELs würden aufgrund der bereits erwähnten Vorteile in diesen Anwendungen einen großen Fortschritt bedeuten.

Die Realisierbarkeit eines solchen Bleisalz VCSEL für das MIR wurde vor kurzem von Schwarzl *et al.* [84] gezeigt. Darauf folgend wurden verschiedene Typen von IV-VI VCSELs basierend auf Volumenmaterial [85], Quantentrögen [86, 87, 88] und Quantenpunkten [89] untersucht. Diese Lasertypen zeigten stimulierte Lichtemission bis zu einer Temperatur von 290 K [85] für Volumenmaterial, 340 K [88] für Quantentröge und 90 K [89] für Quantenpunkte als aktive Zonen. Jedoch konnte ein direkter Vergleich der drei Lasertypen bisher nicht durchgeführt werden, da sich unter anderem die Resonatorstrukturen und die anregenden Lichtquellen unterschieden. Aus diesem Grund sollen hier drei VCSEL Proben mit annähernd identischem Aufbau mit der selben pumpenden Lichtquelle sowie unverändertem optischen Strahlengang untersucht werden. Hauptsächlich die Dimensionalität der aktiven Zone unterschiedet die drei Proben, womit deren Einfluß auf die Laseremission untersucht werden kann.

Zur Untersuchung der Proben wurde der Photolumineszenzaufbau mit einer Pumpwellenlänge von 1.907  $\mu m$  verwendet, wie er bereits in Kapitel 4.1.3.3 beschrieben worden ist. Eine Aufstellung der unterschiedlichen Eigenschaften der Proben findet sich in Tabelle 6.3. Alle drei Resonatoren sind für Raumtemperaturbetrieb optimiert, d.h. die zentrale Resonatormode liegt bei Raumtemperatur energetisch an der selben Position wie die spontane Emission des aktiven Materials. Das bedeutet, daß Probe MBEG1504 für eine Wellenlänge von 3.7  $\mu m$ , MBEG1208 für 3.5  $\mu m$  und MBEG1235 für 3.3  $\mu m$  ausgelegt ist. Die Proben wurden mit Hilfe der Molekularstrahlepitaxie (MBE) auf (111)- orientiertem  $BaF_2$  Substrat gewachsen.

Probe	Eu Gehalt	Eu Gehalt	aktiven Zone	
	unterer Sp. $[\%]$	oberer Sp. $[\%]$		
MBEG 1208	5	20	$9 \ge 20 nm$ breite	
			PbTe Quantentröge	
MBEG 1235	5	20	Quantenpunkt- Supergitter	
			mit 236 Perioden	
MBEG 1504	5	30	PbTe Volumenmaterial	

Tabelle 6.3: Die untersuchten VCSEL Proben.

Die Resonatorstrukturen bestehen aus zwei hochreflektierenden EuTe/Pb<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>Te Bragg- Spiegeln. Als Resonatorlänge wurde für Probe MBEG1504 2.1  $\mu m$ , für MBEG1208 1.4  $\mu m$  und für MBEG1235 14  $\mu m$  gewählt. Bei allen drei Proben ist der untere Spiegel (Substratseite) identisch und besteht aus drei Pb<sub>0.95</sub>Eu<sub>0.05</sub>Te/EuTe  $\lambda/4$ - Schichten, deren Unterschied im Brechungsindex über 80% beträgt. Damit erhält man eine Reflexionsrate von mehr als 99% [42]. Um die oberen Spiegel für die Pumpwellenlänge von 1.907  $\mu m$  transparent zu machen, ist der Eu-Gehalt in den Pb<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>Te Schichten für MBEG1504 auf 30% und für MBEG1208 und MBEG1235 auf 20% erhöht worden. Dadurch wurde der Brechungsindexunterschied kleiner, und es mußten vier Schichtpaare verwendet werden um eine Reflexion von 98% zu erreichen.

Die aktive Zone von MBEG1504 besteht aus PbTe Volumenmaterial der Dicke 1115 nm, welches auf eine 960 nm dicke Pb<sub>0.94</sub>Eu<sub>0.06</sub>Te Pufferschicht aufgewachsen ist. Damit besitzt diese Probe eine dreidimensionale aktive Zone, d.h. die Bewegung der Ladungsträger ist in keine der drei Raumrichtungen eingeschränkt.

Die zweidimensionale aktive Zone von Probe MBEG1208 besteht aus neun 20nm

113

breiten PbTe Quantentrögen mit Pb<sub>0.94</sub>Eu<sub>0.06</sub>Te Barrieren dazwischen. Damit können sich die Ladungsträger nur senkrecht zur Wachstumsrichtung frei bewegen. In Probe MBEG1235 kommt ein Quantenpunkt- Supergitter mit 236 Perioden als nulldimensionale aktive Zone zum Einsatz. Die Quantenpunkte wachsen aus 5 Monolagen PbSe und werden mit 48 nm Pb<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>Te bedeckt. Aufgrund des Unterschiedes der beiden Gitterkonstanten von 5.4% entstehen die PbSe Quantenpunkte spontan mittels selbstorganisiertem Wachstums nach der Stranski- Krastanow Methode [41]. Die starke Vergrößerung der Energielücke von Pb<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>Te mit dem Eu- Gehalt von  $\Delta E_g/\Delta x_{Eu} = 3.5 \ eV$  bei Raumtemperatur [23] ist dafür verantwortlich, daß man schon für kleine Eu- Konzentrationen hohe Einschlussenergien der Ladungsträger in Quantentrögen und Quantenpunkten erhält. Deshalb wurde für die hier untersuchten Proben ein Eu- Gehalt von  $x_{Eu} = 5 - 6$ % gewählt, was einer Energielücke des Pb<sub>1-x</sub>Eu<sub>x</sub>Te von 422 meV ( $x_{Eu} = 5$ %) entspricht. Im Vergleich dazu ist die Energielücke von PbSe 145 meV, jeweils bei einer Temperatur von T = 2 K.

Um in einem ersten Schritt die Resonatormoden identifizieren zu können, wurde an allen Proben mit Hilfe eines Fourier- Spektrometers für den infraroten Spektralbereich (FTIR) die Transmission der Proben bei Raumtemperatur gemessen. Das Resultat findet sich zusammengefaßt für die drei Proben in Abb. 6.6. Für jede der Proben ist die Region um das Stopband gezeigt. Bei höheren Energien wurde wegen der starken Absorption des aktiven Mediums die Empfindlichkeit erhöht.

In Abb. 6.6 (a) zeigen sich drei Resonatormoden mit den Ordnungen m = 4, 5 und 6 für Probe MBEG1504. Die m = 4 Mode liegt bei 244 meV und besitzt eine Halbwertsbreite (FWHM) von 2.9 meV. Mode m = 5 findet sich bei 285 meV(FWHM = 1.0 meV) und Mode m = 6 bei 325 meV (FWHM = 2.7 meV).

Die Quantentrogprobe MBEG1208 in Abb. 6.6 (b) zeigt ebenfalls drei Resonatormoden bei 291 meV, 350 meV und 421 meV. Da die Resonatorlänge für diese Probe kleiner ist als für MBEG1504, ist der energetische Abstand der Moden mit 65 meV größer als der Abstand der Resonanzen von 40 meV bei MBEG1504. In der Stopbandregion der Quantenpunktprobe MBEG1235 finden sich zentriert um 325 meV viele Resonanzen mit Linienbreiten zwischen 0.5 und 1.0 meV (siehe Abb. 6.6 (c)). Bei höheren Energien werden die Moden durch starke Absorption der Quantenpunkte gedämpft. Der Abstand der Moden ist mit 8 meV wesentlich



Abbildung 6.6: FTIR Transmissionsmessungen der drei VCSEL Proben MBET1504, MBET1208 und MBET1235 bei Raumtemperatur innerhalb des Bragg- Spiegel Stopbandes.

kleiner als für die beiden anderen Proben, da der Resonator, verglichen mit den beiden anderen, sehr lang ist.

Abbildung 6.7 (a) zeigt Photolumineszenzspektren der Probe MBEG1504 mit PbTe Volumenmaterial als aktiver Zone. Für die Messung dieser Spektren wurde die Pumpleistung konstant gehalten. Es sind zwei Laserlinien zu erkennen, de-



Abbildung 6.7: Resultate des Volumenmaterial VCSELs MBEG1504. (a) Laseremissionsspektren aufgenommen bei unterschiedlichen Temperaturen aber gleicher Pumpleistung von 496  $\frac{kW}{cm^2}$ . (b) Laserschwelle als Funktion der Temperatur. Kleines eingesetztes Bild: Intensität der Laseremission als Funktion der Pumpintensität für die m = 5 Mode bei 195 K;  $P_{th}$ : Laserschwelle.

ren energetische Lage sehr gut mit den Resonatormoden aus FTIR Messungen (siehe Abb. 6.6 (a)) übereinstimmt. Die Energielücke von PbTe vergrößert sich

kontinuierlich von 190 meV bei 4.2 K bis 320 meV bei 300 K. Mit steigenden Temperatur erfolgt zunächst stimulierte Emission in die niederenergetische Mode m = 5 bei 282 meV. Dies ist dann der Fall, wenn sich die energetischen Lagen der spontanen Lumineszenz des aktiven Materials, also in diesem Fall des PbTe, und die der Resonatormode überlagern. Bei 195 K stimmen Lumineszenz- und Modenposition exakt überein, und die Emission erreicht ihre maximale Intensität. Mit steigender Temperatur verschiebt sich die Energielücke des PbTe über die m = 5 Mode hinaus und die Lasertätigkeit in dieser Mode verwindet. Ab 247 K beginnt Lasertätigkeit in der höherenergetischen m = 6 Mode bei 330 meV und erreicht bei 290 K ihre höchste Intensität. Während der Messung fiel besonders auf, daß bei keiner Temperatur beide Moden zusammen beobachtet wurden. Dies wird dadurch erklärt, daß der energetische Abstand der beiden Moden von 40 meVdeutlich größer ist, als die Breite der spontanen Photolumineszenz des PbTe von nur 10 meV. Diese Breite von 10 meV wurde an Referenzproben bestimmt. Die geringe Positionsänderung der Emissionsmaxima mit steigender Temperatur wird durch den mit zunehmender Temperatur nur wenig kleiner werdenden Brechungsindex dieser Materialien erklärt. Die Auflösung des Spektrometers, wie sie in Abb. 6.7 (a) angezeigt wird, beträgt für diese Messungen 1 meV. Entfaltung der Linienbreiten der Emission liefert für die m = 5 Mode eine Breite von 1.5 meV und für die m = 6 Mode 1.7 meV. Diese beiden Werte sind erheblich kleiner als jener der spontanen PbTe Lumineszenz. Weiterhin ist die Emission der m = 6 Mode um den Faktor 2 schmäler als die in Transmission (Abb. 6.6 (a)) beobachtete dazugehörige Resonanz des passiven Resonators. Dieses als "linewidth narrowing" bezeichnete Phänomen ist ein eindeutiges Zeichen für stimulierte Emission. Für eine Temperatur von 195 K ist in dem eingefügtem Bild in Abb. 6.7 (b) die Abhängigkeit der Intensität der beobachteten Strahlung von der Pumpleistung gezeigt. Dabei ist eindeutig eine Schwelle von  $P_{th} = 14.7 \frac{kW}{cm^2}$  zu erkennen, welche durch den Pfeil angedeutet ist. Die Existenz dieser Schwelle ist ein weiterer eindeutiger Beweis, daß es sich hierbei um Laseremission handelt. Die Entwicklung der Laserschwelle mit der Temperatur ist in Abb. 6.7 (b) gezeigt. Bei tiefen Temperaturen liegt die PbTe Energielücke unterhalb der Resonanzen. Damit ist eine hohe Laserschwelle zu erwarten. Tatsächlich ist für  $T < 100 \ K$  die Schwelle größer als 1000  $\frac{kW}{cm^2}$ , wie aus Abb. 6.7 (b) zu entnehmen ist. Schiebt man jedoch die PbTe Energielücke mit Hilfe steigender Temperatur in Richtung der Resonanzen, so erniedrigt sich die Schwelle bis zu einer optimalen Temperatur. Diese beträgt für die m = 5 Mode 195 K. Dort ist die Laserschwelle nur noch 14.7  $\frac{kW}{cm^2}$ . Mit weiter steigender Temperatur regt man die m = 6 Mode an. Diese hat im Optimum eine höhere Schwelle von 57.7  $\frac{kW}{cm^2}$  bei T = 295 K. Diese erhöhte Schwelle kann durch mit steigender Temperatur zunehmende nichtstrahlende Rekombinationsprozesse erklärt werden. Die maximale Temperatur, bei der an der PbTe Volumenkristallprobe Laseremission beobachtet werden konnte, liegt bei 317 K. Für höhere Temperaturen liegt die PbTe Energielücke oberhalb der Resonanz. Die eben erwähnten Laserschwellen müssen noch korrigiert werden, da die oberen Eintrittsspiegel einen Teil der Pumpstrahlung reflektieren. Weil der obere Bragg- Spiegel der Probe MBEG1504 73% der Pumpstrahlung reflektiert, erhält man als interne Schwellen 4  $\frac{kW}{cm^2}$  bei T = 195 K und 15.6  $\frac{kW}{cm^2}$  bei T = 290 K. Diese Werte sind viel kleiner als der Schwellenwert eines III-V MIR VCSELs mit 235  $\frac{kW}{cm^2}$  bei  $T = 260 \ K$  [90]. Des weiteren liegen unsere Werte unterhalb jener aus Ref. [85]. Diese Autoren haben einen MIR VCSEL mit PbSe Volumenmaterial als aktive Zone untersucht und eine Schwelle von 70 $\frac{kW}{cm^2}$  bei $T=239\;K$ erhalten.

Für die Quantentrog VCSEL Probe MBEG1208 wurde Lasertätigkeit nur in einer Mode (m = 4) beobachtet, obwohl in der Transmissionsmessung in Abb. 6.6 (b) drei Moden zu erkennen sind. Emissionsspektren sind in Abb. 6.8 (a) zu sehen. Die beiden Moden m = 3 und m = 5 befinden sich am Rand des Stopbandes der Bragg- Spiegel, und deshalb ist die Resonatorgüte zu schlecht, um Laseremission zu gestatten. Für die m = 4 Mode konnte Laseremission in einem Temperaturbereich von 247 K bis 307 K nachgewiesen werden (siehe Abb. 6.8 (a)). Verglichen mit der Emission bei höheren Temperaturen ist jene bei 150 K sehr schwach und breit. Sie wird der spontanen Emission der PbTe Quantentröge zugeordnet, die auftritt, da die Resonatormode weit von der Quantentrog- Gewinnzone entfernt ist. Ab einer Temperatur von 247 K ist Laseremission bei 345 meV zu beobachten, welche bei  $T = 277 \ K$  ihr Maximum erreicht. Ab 307 K ist die Linie nicht mehr zu beobachten. Wie bei Probe MBEG1504 ist auch hier die Halbwertsbreite der Emission schmäler als die entsprechende Resonanz der FTIR Messung aus Abb. 6.6 (b). Über 307 K hat sich auch die niederenergetische Flanke der Quantentrog-Gewinnzone über die Resonatorfrequenz hinausverschoben, und die Laseremission



Abbildung 6.8: Resultate des Quantentrog VCSELs MBEG1208. (a) Emissionsspektren bei verschiedenen Temperaturen aber konstanter Pumpleistung. (b) Abhängigkeit der Laserschwelle von der Temperatur. (c) Divergenz des Laserbündels bei 300 K und einer Pumpleistung von 93  $\frac{kW}{cm^2}$  (offene Symbole) und Gaußanpassung (Linie)

setzt aus [88]. Daß diese Laserlinie schon bei 307 K verschwindet, ist damit der Auslegung des Resonators zuzuschreiben. Eine ähnliche Quantentrog VCSEL Probe mit der zentralen Mode bei höherer Energie (400 meV) zeigte Laseremission bei Anregung mit Femtosekunden Pulsen bis zu einer Temperatur von 338 K [88]. Das Intensitätsmaximum der Emission ist in der gleichen Größenordnung wie für Probe MBEG1504. Da die Gewinnzone des zweidimensionalen Quantentrogsystems, verglichen mit jener des Volumenmaterials spektral schmäler ist, ist der Temperaturbereich, in dem Laseremission beobachtet werden konnte, im Vergleich zu MBEG1504 kleiner. Wie in Abb. 6.8 (b) zu erkennen ist, ist die Laserschwelle von 247 K bis 280 K mit einem Wert von 22.9  $\frac{kW}{cm^2}$  nahezu konstant und steigt anschließend bis auf 44  $\frac{kW}{cm^2}$  bei 297 K. Analog zu Probe MBEG1504 hat man zur Berechnung der inneren Schwelle die Reflexionsverluste der Pumpwellenlänge an dem oberen Bragg- Spiegel zu berücksichtigen. Die Reflexion des oberen Spiegels beträgt bei 1.907  $\mu m$  58%. Damit erhält man interne Laserschwellen von 9.6  $\frac{kW}{cm^2}$  bei 297 K.

Wie bereits in der Einleitung dieses Kapitels erwähnt, sollte die Divergenz des Lichtes eines VCSELs klein sein. Die Resultate einer winkelabhängigen Messung der Laseremission bei einer Temperatur von 300 K und einer Pumpleistung von 93  $\frac{kW}{cm^2}$  sind in Abb. 6.8 (c) dargestellt. Die Emission des Quantentrog VCSELs zeigt eine sehr kleine Divergenz von lediglich 1<sup>0</sup>. Dieser Wert ist sehr viel kleiner, als jener von 24<sup>0</sup>, der kürzlich für einen PbSe QW VCSEL in [91] angegeben wurde, obwohl die minimale Laserschwelle dort mit 10.5  $\frac{kW}{cm^2}$  bei 260 K [91] vergleichbar mit der hier beobachteten ist.

Abbildung 6.9 zeigt das gemessene Emissionsspektrum für den Quantenpunkt VCSEL MBEG1235 bei verschiedenen Temperaturen. Das kleine eingesetzte Bild stellt das Spektrum bei 10 K in einem vergrößerten Maßstab dar. Dort sind eindeutig fünf (!) Laserlinien zu erkennen, deren Positionen mit den Resonatormoden aus Abb. 6.6 (c) übereinstimmen. Da die Lasermoden wegen der großen Länge des Resonators so nahe beieinander liegen, kann man die Breite der darunterliegenden spontanen Emission ermitteln [89]. Man erhält eine FWHM von 20 meV. Die Lasermode bei 319 meV zeigt bei 60 K maximale Emission und jene bei 326 meV bei 107 K. Daß sich die Laseremission mit steigender Temperatur zu höheren Resonatormoden schiebt, wird, wie bei MBEG1504, dadurch erklärt, daß die PbSe Energielücke mit zunehmender Temperatur größer wird [89]. Die erhaltene Laserschwelle für die Mode bei 326 meV ist mit etwa 800  $\frac{kW}{cm^2}$  bei 107 K sehr hoch und viel größer als bei der Volumenmaterialprobe MBEG1504 und der Quantentrogprobe MBEG1208. Eine mögliche Erklärung dafür könnte eine Typ I' Anordnung der Bänder von PbSe Quantenpunkten und PbEuTe Einbettmaterial



Abbildung 6.9: Stimulierte Emissionsspektren für den Quantenpunkt VCSEL MBEG1235 bei verschiedenen Temperaturen. Das eingefügte Bild zeigt das vergrößerte Emissionsspektrum bei 10 K.

sein, bei der Elektronen und Löcher an verschiedenen Positionen im Ortsraum zu finden sind. Eine Bestätigung für diese Annahme mit einer anderen Methode steht allerdings noch aus.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß für die Volumenmaterialprobe MBEG1504 und für die Quantentrogprobe MBEG1208 Laseremission bis über Raumtemperatur (bis 320 K) nachgewiesen werden konnte. Aus dem Vergleich des null-, zwei- und dreidimensionalen Systems ist zu erkennen, daß bis jetzt die Reduzierung der Dimension der aktiven Zone und damit eine Konzentration der Wellenfunktionen keine verbesserte Lasertätigkeit bewirken. Vielmehr zeigen Volumenmaterial und Quantentrog VCSELs vergleichbare Leistungen. Dies verdeutlicht, daß nichtstrahlende Rekominationsprozesse an Fehlstellen beim Übergang zwischen verschiedenen Materialien den Laserprozeß limitieren. Dieser Prozess dominiert über die Zunahme der Zustandsdichte und die Lokalisierung der Ladungsträger in Systemen mit niedrigerer Dimension.

Der Vergleich mit der Probe mit Quantenpunkten in der aktiven Zone ist allerdings problematisch, da diese Probe eine größere Resonatorlänge aufweist. Einerseits sollte die Verstärkung über die größere Länge günstig für das Einsetzen von stimulierter Emission sein, andererseits verteilt sich die vorhandene Verstärkung auf mehrere Moden. Inwieweit sich beide Effekte kompensieren ist schwer abzuschätzen. Außerdem ist bei der Quantenpunktprobe das aktive Material PbSe anstelle von PbTe. Vergleichsproben zeigen allerdings, daß die Photolumineszenzausbeute von PbSe sogar besser ist.

## 6.3 Vertikal emittierende Laserstrukturen im kontinuierlichen Betrieb

Im vorhergehenden Kapitel 6.2 wurde der Einfluß der Dimensionalität des Ladungsträgereinschlusses in der aktiven Zone auf die Lasertätigkeit untersucht. Anders als erwartet, konnte kein Vorteil von Quantentrögen und Quantenpunkten gegenüber unstrukturiertem Volumenmaterial als laseraktives Medium festgestellt werden. In einem weiteren Schritt sollten die vertikalen Laserstrukturen nicht gepulst, sondern kontinuierlich (CW) angeregt werden. Die bislang untersuchten VCSEL Strukturen wurden gepulst angeregt, wobei die Emissionslinien große Linienbreiten von bis zu 2 meV zeigten. Um IV-VI VCSELs als Lichtquelle für spektroskopische Anwendungen verwenden zu können, muß die Linienbreite der Emission drastisch reduziert werden. Mit neuen CW emittierenden VCSELs erhofft man sich eine Verbesserung der spektralen Auflösung. Der CW Betrieb einer Laserstruktur stellt eine hohe Anforderung an die Güte des Resonators, da die erreichten Leistungen bei kontinuierlich emittierenden Pumplasern gegenüber den Pulsspitzenleistungen gepulster Laser niedriger ausfallen. Damit muß die Laserschwelle der untersuchten Struktur so niedrig wie möglich gehalten werden.

Ergänzend zu den hier vorgestellten Experimenten an vertikalen Laserstrukturen wurde die Photolumineszenz von Bleisalzstrukturen mit CW Anregung in der Ar-

beitsgruppe des Probenherstellers untersucht [92]. Bei 150 mW kontinuierlicher Anregungsleistung zeigten PbTe/PbEuTe Quantentrogstrukturen Lumineszenz bis zu einer Temperatur von 200 K und PbSe/PbEuSe Strukturen bis 330 K. Die höchste Temperatur, bei welcher Emission beobachtet werden konnte, betrug  $190^{0}C$  und wurde bei PbSe Volumenmaterial beobachtet. Aufgrund dieser Resultate, kamen PbSe und PbEuSe in den für den CW Betrieb optimierten Proben zum Einsatz. Des



Abbildung 6.10: Schematischer Aufbau der kontinuierlich emittierenden VCSEL Struktur.

weiteren sind beide Bragg- Spiegel in ihrem Aufbau identisch, womit die Laserstrukturen im Gegensatz zu jenen des vorhergehenden Kapitels symmetrisch aufgebaut sind. Abbildung 6.10 zeigt den schematischen Aufbau der VCSEL Proben, welche für das optische Pumpen im 5  $\mu m$  Spektralbereich optimiert sind. Zur exakten Auslegung der Struktur des Mikroresonators kamen Transfermatrixberechnungen zum Einsatz. Dabei wird die Dispersion der optischen Konstanten der einzelnen Materiallagen exakt berücksichtigt. Die dafür benötigten Daten wurden aus FTIR elle Temperatur ausgelegt werden müssen, wurden 2 K gewählt. Das entsprechende laseraktive Material für eine angestrebte Laseremission um die 8  $\mu m$  ist PbSe. Die Laserstruktur für das mittlere Infrarote besteht aus zwei hochreflektierenden  $EuSe/Pb_{0.94}Eu_{0.06}Se$  Bragg- Spiegeln, mit einem 2 $\lambda$  Resonator dazwischen. In diesem Resonator befindet sich eine 2395 nm Pb<sub>0.94</sub>Eu<sub>0.06</sub>Se Pufferschicht, gefolgt von 1434 nm PbSe als laseraktives Material. Die  $\lambda/4$ - Lagen der Bragg- Spiegel besitzen eine Dicke von 487 nm für PbEuSe und 814 nm für PbSe. Aufgrund des großen Unterschieds der Brechungsindizes dieser beiden Materialien von 50%, benötigt man lediglich fünf Schichtpaare, um einen Reflexionsgrad von mehr als 99% zu erhalten. Die Auslegung der Laserstruktur gewährleistet, daß weder die Resonatoremission bei ca. 7.9  $\mu m$  noch die Pumplaserwellenlänge bei 5.3  $\mu m$  von den Spiegeln absorbiert wird. Es wurde darauf Wert gelegt, daß die Wellenlänge des Pumplasers nicht innerhalb des Stopbandes der Spiegel liegt. Die komplette Laserstruktur ist mit Hilfe von MBE bei einer Temperatur von  $250^{\circ}C$  auf < 111 >- orientiertes BaF<sub>2</sub> Substrat gewachsen worden. Dabei betrug die Wachstumsgeschwindigkeit von PbSe  $1.3 \ \mu m/h$  und von EuSe 0.9  $\mu m/h$ . Da nur eine Eu-Effusionszelle zur Verfügung stand, wurden die Pb<sub>0.94</sub>Eu<sub>0.06</sub>Se Schichten aus kurzperiodigen Supergittern, bestehend aus 0.7 nm Pb<sub>0.6</sub>Eu<sub>0.4</sub>Se und 4.3 nm PbSe zusammengesetzt.

Zur Untersuchung des Emissionsverhaltens dieser Laserstrukturen kam der in Kapitel 4.1 beschriebene Versuchsaufbau zum Einsatz. Bei diesen VCSEL Strukturen war es äußerst wichtig, den anregenden Strahl parallel zur Oberflächennormalen der Probe in den Resonator einzukoppeln. Da der Aufbau des Resonators symmetrisch ist, wurde die Photolumineszenz in Vorwärtsrichtung vermessen. Als anregende Lichtquelle diente ein kontinuierlich emittierender CO- Laser mit einer Wellenlänge von 5280 nm, entsprechend einer Photonenenergie von 235 meV. Die maximale Leistung im CW Betrieb beträgt bis zu 3 W. Um Zerstörungen an der Probe zu vermeiden, wurde die CW Leistung auf 130 mW begrenzt. Die Fokussierung des Pumplasers auf die Oberfläche der Probe erfolgte durch geeignete Optiken. Der typische Fokusdurchmesser beträgt dabei 200  $\mu m$  (FWHM). Die emittierte Strahlung wurde mit Hilfe eines HgCdTe Photoleiters und eines Gitterspektrometers untersucht. Zur Messung der integrierten emittierten Leistung ist das emittierte Licht nicht durch das Spektrometer detektiert, sondern unter Verwendung eines Hohlspiegels direkt nach dem Kryostaten auf einen kalibrierten HgCdTe Detektor fokussiert worden. Die Pumpstrahlung wurde durch ein InSb- Kantenfilter eliminiert.

Es wurden zwei vertikale Laserstrukturen S1 (MBET 1753#1) und S2 (MBET 1753#2) vom oben beschriebenen Typ, aber leicht unterschiedlicher Dicke untersucht. Aufgrund dieser verschiedenen Resonatordicke weicht die spektrale Lage der emittierten Strahlung der beiden Proben leicht voneinander ab. Zur Bestimmung der energetischen Lage der Resonatormoden wurden Reflexions- und Transmissionsmessungen im infraroten Spektralbereich durchgeführt. Da sich die Struktur der beiden Proben nur geringfügig unterscheidet, zeigt Abb. 6.11 lediglich die Resultate der Probe S1, wobei die Region des Stopbandes für zwei Temperaturen vermessen worden ist. Bei Raumtemperatur beobachtet man drei Resonatormoden der Ordnung m = 3, 4, und 5 mit den entsprechenden Energien von 133, 163, und 190 meV(vgl. Abb. 6.11 (a)). Die gemessene Linienbreite der m = 3 Mode beträgt 0.25 meV (FWHM), die der zentralen m = 4 Mode lediglich 0.10 meV. Diese Werte zeigen die sehr hohe Finesse des Resonators von 400, wobei die Ordnung der Mode mit berücksichtigt wurde. In Abb. 6.11 (a) ist das berechnete Reflexionsspektrum als gestrichelte Linie eingezeichnet. Dieses stimmt sehr gut mit der gemessenen Reflexionskurve überein. Aufgrund des 1 mm dicken BaF<sub>2</sub> Substrates zeigen sich innerhalb des Stopbandes zusätzliche Interferenzen mit einem energetischen Abstand von 0.5 meV. Aufgrund der schnellen Abnahme der Energielücke von PbSe mit fallender Temperatur von 279 meV bei 300 K bis 146 meV bei 1.8 K werden bei tiefen Temperaturen die hochenergetischen Resonatormoden durch Interbandabsorption des PbSe laseraktiven Materials gedämpft [93]. Dadurch wurde bei einer Temperatur von 60 K die m = 4 Mode bei 158 meV von 0.10 meV bei Raumtemperatur auf 0.13 meV verbreitert, wie in Abb. 6.11 (b) zu erkennen ist. Bei 60 K ist die m = 3Mode noch nicht gedämpft, was sich an der innerhalb der Meßfehler unveränderten Linienbreite zeigt. Weiterhin ist bei 60 K die transmittierte Intensität der Mode m = 4 aufgrund der Dämpfung viel geringer als bei der ungedämpften m = 3 Mode bei 128 meV. Die m = 5 Mode ist bei 60 K bereits so stark gedämpft, daß sie nicht mehr zu beobachten war. Bei einer Temperatur von 1.8 K wurde nur noch die m = 3 Mode nachgewiesen, da alle energetisch höher liegenden Resonanzen durch die Absorption des PbSe nicht mehr beobachtet werden konnten. Wie in Abb. 6.11 zu erkennen ist, verschieben sich die Resonatormoden mit einer Rate von 22  $\mu eV/K$ 



Abbildung 6.11: Infrarote Reflexions- und Transmissionsmessungen an der VCSEL Probe S1 innerhalb des Stopbandes bei 300 K (a) und 60 K (b). Weiterhin sind die Ordnungen m und Linienbreiten der drei Resonatormoden angegeben. Die gestrichelte Linie in (a) gibt die berechnete Reflexionskurve wieder.

mit sinkender Temperatur zu niedrigeren Energien. Dies läßt sich durch den mit sinkender Temperatur zunehmenden Brechungsindex des Materials im Resonator erklären. Abbildung 6.12 zeigt das Emissionsspektrum beider VCSEL Proben S1 und S2 bei einer Temperatur von 1.8 K und einer Pumpleistung von 130 mW als offene Kreise. Die mit sinkender Photonenenergie steigende durchgezogene Linie zeigt den hochenergetischen Ausläufer der spontanen Lumineszenz von PbSe. Die Nachweisempfindlichkeit bei dieser Vergleichsmessung war um einen Faktor 2000 größer als bei der Messung der VCSEL Spektren.

Die Emission der Mode m = 4 von Probe S1 liegt bei 156.5 meV (7.92  $\mu m$ ) und für Probe S2 bei 158.2 meV (7.84  $\mu m$ ). Eine längere Emissionwellenlänge wurde mit VCSELs bislang noch nicht erreicht. Die beobachtete Linienbreite beider VCSEL Emissionen beträgt 1.6 nm (31  $\mu eV$ ) und wurde anhand einer Gaussanpassung ermittelt. Abbildung 6.12 (a) zeigt die angepaßten Kurven als durchgezogene Linien. Korrigiert man die gemessenen Linienbreiten mit dem Auflösungsvermögen des Spektrometers von  $\frac{\nu}{\Delta \nu} = 6400$ , so erhält man als tatsächliche Linienbreite 0.9 nm, entsprechend 18  $\mu eV$ . Solch schmale Emissionslinien ( $\frac{\nu}{\Delta \nu} = 7200$ ) sind für spektroskopische Anwendungen sehr wichtig und mehr als eine Größenordnung kleiner als typische Werte für gepulste IV-VI VCSELs. Als Linienbreiten für einen gepulst angeregten PbTe VCSEL findet man 23 nm [94] und 37 nm für einen PbSe VCSEL [95].

Wie für stimulierte Emission zu erwarten, ist die Linienbreite der emittierten Strahlung kleiner als die der entsprechenden ungepumpten Resonatormode. Bemerkenswert ist, daß die Linienbreite der Emission sogar um einen Faktor 5 kleiner ist als die der ungedämpften m = 4 Mode bei 300 K (siehe Abb. 6.11 (a)). Weiterhin ist anzumerken, daß die Intensität des emittierten Lichts mehrere Größenordnungen stärker ist, als die spontane Photolumineszenz des PbSe.

Neben der eben erwähnten ultra- schmalen Linienbreite und hohen Intensität der emittierten Strahlung ist die Existenz einer Laserschwelle ein klarer Hinweis auf stimulierte Emission. Dies zeigt Abb. 6.12 (b), in welcher die emittierte Leistung als Funktion der Anregungsleistung bei einer Temperatur von 1.8 K für beide Proben S1 und S2 gezeigt ist. Beide Proben weisen spontane Emission für sehr kleine Anregungsleistungen auf. Oberhalb der Schwelle steigt die emittierte Leistung steil an. Die Pumplaserstrahlung besitzt auf der Probe einen Fokusdurchmesser von 200  $\mu m$ . Als externe Laserschwellen wurden für Probe S1 80  $W/cm^2$  und für Probe S2 140  $W/cm^2$  erhalten. Da die Pumpstrahlung zu 63% an den Bragg- Spiegeln



Abbildung 6.12: (a) CW Emissionsspektren der zwei VCSEL Proben S1 und S2 bei einer Temperatur von 1.8 K und einer Pumpleistung von 130 mW. Weiterhin ist der hochenergetische Teil der spontanen Lumineszenz von PbSe eingezeichnet. (b) Emittierte Leistung der VCSEL Proben S1 und S2 als Funktion der Anregungsleistung bei 1.8 K. Die Pfeile geben die Schwellenwerte an. (c) Emittierte Leistung der Probe S1 als Funktion der Temperatur bei einer konstanten Pumpleistung von 130 mW.

reflektiert wird, errechnet man als interne Laserschwellen nur  $25 W/cm^2$  für S1 und  $52 W/cm^2$  für Probe S2. Diese Werte sind zwei Größenordnungen kleiner als jene

für gepulst angeregte IV-VI VCSELs in vorherigen Arbeiten [94, 87]. Selbst im Vergleich zu CW emittierenden Typ II Antimonid VCSELs mit einer Laserschwelle von 940  $W/cm^2$  bei einer Wellenlänge von 2.9  $\mu m$  [96], sind die hier gemessenen Schwellen bemerkenswert klein. Für Anregungsleistungen oberhalb dieser Laserschwellen beobachtet man stimulierte Emission, was in Abb. 6.12 (b) durch den steilen Anstieg der emittierten Leistung zu erkennen ist. Bei einer Temperatur von 1.8 K und einer Anregungsleistung von 130 mW liegt die emittierte Leistung für Probe S1 über 160  $\mu W$ . Die Laserschwelle, welche für Probe S1 erhalten wurde, ist kleiner als jene für Probe S2, was dadurch erklärt wird, daß die entsprechende Resonatormode von Probe S1 näher an dem Maximum der spontanen Emission des PbSe laseraktiven Materials liegt als für Probe S2 (vergleiche Abb. 6.12 (a)). Dies bewirkt einen höheren Verstärkungsfaktor für Probe S1.

Abbildung 6.12 (c) zeigt die emittierte Leistung von Probe S1 als Funktion der Temperatur bei einer konstanten Anregungsleistung von 130 mW. Mit steigender Temperatur schiebt sich das Maximum der spontanen Emission des PbSe laseraktiven Materials in Richtung der m = 4 Resonatormode (siehe Abb. 6.12 (a)). Dies erklärt die Zunahme der emittierten Leistung unterhalb von 30 K. Bei 30 K liegt das Maximum der spontanen Lumineszenz des PbSe energetisch an der selben Stelle wie die Resonatormode, was sich in maximaler Leistung widerspiegelt. Die emittierte Leistung beträgt 350  $\mu W$  bei 30 K, was einer Konversionsrate von 0.27 % bei einer relativ niedrigen CW Anregungsleistung von 130 mW entspricht. Oberhalb von 30 K nimmt die emittierte Intensität ab, da sich das Maximum der Photolumineszenz des PbSe über die Resonatormode hinweg zu höheren Energien verschoben hat. Für Temperaturen höher als 57 K bricht die Laseremission zusammen, da es keinen hinreichenden Überlapp der spontanen Photolumineszenz mit der Resonatormode mehr gibt. Für Probe S2 konnte aufgrund der energetisch höher liegenden Emissionslinie eine maximale Arbeitstemperatur von 80 K erreicht werden.

In Abb. 6.13 sind die Spektren der emittierten Laserlinie von Probe S1 für verschiedene Anregungsleistungen bei einer Temperatur von 1.8 K gezeigt. Die durchgezogenen Linien geben Gaussanpassungen an die experimentellen Daten wieder, welche durch die gefüllten Symbole dargestellt sind. Hier verdeutlicht sich, daß sich die Linien mit kleiner werdender Pumpleistung leicht zu niedrigeren Energien verschieben. Dies läßt sich mit dem Einfluß der photoangeregten freien Ladungsträger auf den



Abbildung 6.13: Stimulierte Emissionsspektren von VCSEL Probe S1 bei 1.8 K als Funktion der Pumpleistung. Werte unterhalb der Anregungsleistung: gemessene Linienbreiten; Werte in Klammern: tatsächliche Linienbreiten unter Berücksichtigung der Spektrometerauflösung. Durchgezogene Linien: Gaussanpassungen an die experimentellen Daten (volle Symbole). Das spontane Emissionsspektrum bei einer Pumpleistung von 19 mW ist aufgrund der Übersichtlichkeit vergrößert und als durchgezogene Linie gezeichnet.

Brechungsindex erklären [88]. Für Anregungsleistungen unterhalb der Laserschwelle, was in Abb. 6.13 dem Spektrum für 19 mW entspricht, springt diese spontane Linie zurück zu höheren Energien, da das Fehlen der stimulierten Emission eine höhere Ladungsträgerdichte erlaubt als für diese Pumpleistung aus dem Verlauf der anderen Spektren zu erwarten gewesen wäre. Dies ist, unabhängig von der Laserschwelle aus Abb. 6.12 (b), ein Zeichen für das Einsetzen von stimulierter Emission. Der Einfluß der Dichte photoangeregter Ladungsträger auf den Brechungsindex des Halbleitermaterials konnte bislang an keinem IV-VI VCSEL beobachtet werden und wurde hier erstmals aufgrund der geringen Linienbreite der Emission vermessen. Des weiteren zeigen die in Abb. 6.13 angedeuteten Linienbreiten eine Verringerung der Laserlinienbreite mit steigender Pumpleistung, was typisch für stimulierte Emission ist. In Abb. 6.11 (a) wurde für eine Photonenenergie von 190 meV, entsprechend einer Wellenlänge von 6.5  $\mu m$ , die m = 5 Resonatormode gemessen. Prinzipiell sollte es



Abbildung 6.14: Emittierte Intensität der Probe S1 bei einer Temperatur von 115 K aus der Mode m = 5.

möglich sein, mit steigender Temperatur das Maximum der spontanen Lumineszenz des PbSe mit der energetischen Lage dieser Resonatormode zur Deckung zu bringen und dadurch Laseremission aus der m = 5 Mode zu erhalten. Tatsächlich konnte innerhalb eines sehr schmalen Temperaturbereichs um die 115 K Emission aus dieser Mode beobachtet werden.

Abbildung 6.14 zeigt das erhaltene Spektrum mit einer Linienbreite von 0.3 meV. Diese ist um einen Faktor 10 größer als die der Emission aus der m = 4 Mode, was nach Abb. 6.11 (a) durch die breite Resonatormode m = 5 des Stopbandes plausibel erscheint. Die Emissionslinie ist mit 0.3 meV deutlich schmäler als die Breite der passiven Resonatormode von 0.9 meV. Das ist ein Hinweis darauf, daß es sich bei dieser Linie ebenfalls um stimulierte Emission handelt. Der Temperaturbereich, in dem diese Emission zu beobachten ist, ist extrem klein, so daß es nicht möglich war die Laserschwelle zu bestimmen, da selbst eine geringe Aufheizung der Probe durch die Pumpstrahlung zu einen Veränderung der Verstärkung führte. Die instabilen Eigenschaften dieser Mode sind auf die spektrale Lage am Rand des Stopbandes zurückzuführen. Dennoch sollte es prinzipiell möglich sein, einen VCSEL für diese Wellenlänge zu optimieren und damit höhere Arbeitstemperaturen zu erreichen.

## 6.4 Gepulste und kontinuierliche Emission aus VCSEL Strukturen

In dieser Arbeit ist es erstmals gelungen, IV-VI VCSELs mit Hilfe einer kontinuierlich emittierenden (CW) Strahlungsquelle optisch zu pumpen. Die Ergebnisse daraus wurden in Kapitel 6.3 vorgestellt. Hier wird die Emission eines VCSELs bei gepulster und CW Anregung verglichen. Bei der untersuchten Probe handelt es sich um Probe S1 (MBET 1753#1) aus dem vorhergehenden Kapitel. Deshalb wird ihr Aufbau an dieser Stelle nicht nochmals dargestellt.

Das Experiment zur Messung der Photolumineszenz entspricht jenem aus Kapitel 4.1 in Vorwärtsrichtung. Zur CW Anregung der VCSEL Struktur diente wieder der CO- Laser mit einer Energie von 1894  $cm^{-1}$  (5280 nm). Dabei wurde die Leistung mit Hilfe geeigneter Modenblenden auf unter 1.3 W beschränkt, um Zerstörungen an der Probe zu vermeiden. Im gepulsten Betrieb ist der Laser durch einen rotierenden Spiegel auf allen Linien gütegeschaltet. Die so erzeugten Laserpulse besitzen eine Halbwertsbreite von 360 ns bei einer Wiederholrate von 150 Hz. Um Zerstörungen an der Probe zu vermeiden, wurden die Pulsspitzenleistungen auf weniger als 1 kW beschränkt. Der Nachweis der Photolumineszenz erfolgte durch ein Spektrometer gefolgt von einem HgCdTe Detektor. Wie im vorherigen Kapitel ist die integrierte emittierte Intensität mit Hilfe eines kalibrierten Detektors und eines InSb Kantenfilters gemessen worden. Für alle in diesem Kapitel durchgeführten Messungen befand sich die Probe in superfluidem Helium bei einer Temperatur von 1.8 K. Abbildung



Abbildung 6.15: Vergleich der Emissionslinie der VCSEL Probe S1 bei kontinuierlicher Anregung mit 400 mW Leistung und gepulster Anregung mit 400 mW Pulsspitzenleistung. Durchgezogene Linie: Anpassung einer Lorentzlinie an die experimentellen Daten (gefüllte Symbole). ACHTUNG: 0.10  $cm^{-1}$  ist das Auflösungsvermögen des Spektrometers.

6.15 zeigt die stimulierte Emission der Mode m = 4 bei 1262.25  $cm^{-1}$  (7.92  $\mu m$ )<sup>1</sup>. Die Anregung erfolgte dabei zum Einen kontinuierlich mit 400 mW Leistung und zum Anderen gepulst mit einer Pulsspitzenleistung von ebenfalls 400 mW. Die Linienbreiten wurden durch Anpassung von Lorentzlinien (durchgezogene Linien) an die

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>In diesem Abschnitt werden die Photonenenergien in  $cm^{-1}$  angegeben und nicht wie bisher in meV, da diese Einheit besser zur Beschreibung der extrem scharfen Linien geeignet ist.

133

experimentellen Daten (volle Symbole) bestimmt. Die damit erhaltene Linienbreite für CW Anregung beträgt lediglich  $0.10 \ cm^{-1}$  ( $12 \ \mu eV$ ) und ist damit noch kleiner als im vorherigen Kapitel beschrieben, da hier die Anregung mit einer höheren Leistung von 400 mW erfolgte. Nach Abb. 6.13 führt eine höhere Anregungsleistung zu schmäleren Emissionslinien, was im Einklang mit dem Meßwert von  $0.10 \ cm^{-1}$  aus Abb. 6.15 steht. Diese erhaltene Linienbreite ist jedoch exakt die experimentell durch Vermessen einer Linie des CO- Lasers<sup>2</sup> bestimmte Auflösung des verwendeten Doppelmonochromators von  $\nu/\Delta\nu = 12000$ , weshalb die tatsächliche Linienbreite der CW Emission signifikant kleiner als  $0.10 \ cm^{-1}$  ( $0.6 \ nm$ ) ist. Die vorhandene optische Ausrüstung konnte die Linienbreite dieser Emission nicht auflösen. Für spektroskopische Anwendungen sind solche ultra- schmalen Linien sehr wichtig. Wie bereits im vorhergehenden Kapitel erwähnt, ist die Linienbreite der Emission bei weitem schmäler als die Linienbreite der dazugehörigen ungepumpten Resonatormode.

Bei gepulster Anregung verbreitert sich diese Emissionslinie auf 0.36  $cm^{-1}$ , obwohl die Pulsspitzenleistung von 400 mW gleich der CW Anregungsleistung ist. Korrigiert man diesen Wert mit der Spektrometerauflösung, so erhält man eine tatsächliche Linienbreite von 0.34  $cm^{-1}$ . Mit zunehmender Pulsspitzenleistung nimmt die Linienbreite bis auf 0.81  $cm^{-1}$  zu, was sich nach [88] mit Hilfe dynamischer Linienverbreiterung erklären läßt. Diese verbreiterte Linie ist jedoch noch immer schmäler als die Breite der ungepumpten Resonatormode.

Die emittierte Leistung als Funktion der Anregungsleistung ist in Abb. 6.16 in doppel- logarithmischer Auftragung gezeigt. Der Anstieg bei kleinen Pumpleistungen ist spontaner Emission zuzuordnen. Ab 25 mW, was der externen Laserschwelle entspricht, setzt stimulierte Emission ein, wie anhand des kleinen Bildes mit linearen Achsen zu erkennen ist. Die emittierte CW Leistung der stimulierten Emission nimmt oberhalb der Schwelle im doppel- logarithmischen Maßstab linear zu und erreicht bei einer CW Anregung von 1.2 W ihren Maximalwert von 4.8 mW. Dies ist die bislang höchste CW Leistung, die aus einem IV-VI VCSEL im mittleren infraroten Spektralbereich beobachtet werden konnte. Ab 10 W Pumpleistung erfolgte die Anregung gepulst. Bei 500 W gepulster Anregung wurde eine Pulsspitzenleistung der Emission von 23 W gemessen. Zur Berechnung der Konversionsrate mußte bei

 $<sup>^2 {\</sup>rm Durch}$  Differenzfrequenzmischung der Linien zweier CO- Laser wurden deren Linienbreite zu kleiner 5MHz bestimmt [97]



Abbildung 6.16: Kontinuierliche und gepulste Emission als Funktion der Anregungsleistung bei einer Temperatur von 1.8 K im doppel- logarithmischem Maßstab. Offene Symbole: spontane Emission; gefüllte Symbole: stimulierte Emission. Eingefügtes Bild: Position der Schwelle in linearem Maßstab.

dieser Laserprobe berücksichtigt werden, daß beide Bragg- Spiegel identisch sind und deshalb die emittierte Leistung auf beiden Seiten der Probe, also in Vorwärtsund Rückwärtsrichtung emittiert wird. Dieser Sachverhalt wurde mit Hilfe eines Experimentes eindrucksvoll bewiesen, indem die emittierte Leistung in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung gleichzeitig gemessen wurde. Die somit erhaltenen Konversionsraten betragen für CW Emission 0.8% und für gepulste Emission 9%.

## 6.5 Vertikal emittierende Laserstrukturen im Magnetfeld

In diesem Kapitel wird der Einfluß eines Magnetfeldes in Faraday- Konfiguration auf die stimulierte Emission der beiden in Kapitel 6.3 vorgestellten Proben S1 (MBET 1753#1) und S2 (MBET 1753#2) untersucht. Der experimentelle Aufbau zur Photolumineszenzmessung entspricht jenem aus Kapitel 4.1 in Vorwärtsgeometrie. Als anregende Lichtquelle diente die Strahlung des CO- Lasers mit einer Energie von 1894  $cm^{-1}$ . Bei  $T = 1.8 \ K$  lag die Emission der Probe S1 bei 1262.25  $cm^{-1}$  (156.5 meV) und die der Probe S2 bei 1275.97  $cm^{-1}$  (158.2 meV).

In einem longitudinalen Magnetfeld erwartet man aufgrund der Konzentration der Zustandsdichte auf die Landauniveaus einen Anstieg der emittierten Laserleistung. Zur Bestimmung der integrierten emittierten Intensität wurde die Photolumineszenz mit Hilfe eines Hohlspiegels direkt nach dem Kryostaten auf den Detektor fokussiert, wobei Laserstreulicht durch ein InSb Kantenfilter unterdrückt wurde. Abbildung 6.17 zeigt die auf diese Weise gemessene Intensität als Funktion des Magnetfeldes bei einer Temperatur von 1.8 K und kontinuierlicher Anregung. Für beide Proben nimmt die emittierte Leistung mit steigendem Magnetfeld ab und erreicht bei 12 kG ein lokales Minimum. Mit weiter zunehmenden Feld steigt die Emission an, um bei 23.5 kG ein Maximum zu erreichen. Die dort erhaltene Intensität ist von der bei B = 0 nur unwesentlich verschieden. Mit weiter wachsendem Feld sinkt die Emission rasch und verschwindet bei Probe S1 bei einem Magnetfeld von 45 kG und bei Probe S2 bei einem Wert von 40 kG.

In Abb. 6.17 sind zusätzlich die Magnetfelder durch vertikale Pfeile markiert, bei denen die niedrigsten Landauniveaus in PbSe energetisch mit der Photonenenergie der emittierten Strahlung übereinstimmen. Wie sich daraus erkennen läßt, findet man das erste Minimum bei dem resonanten Magnetfeld der n = 1 Landauniveaus. Bei Probe S2 in Bild (b) läßt sich sogar die Auflösung beider Übergänge für das 0<sup>0</sup>und 70.53<sup>0</sup>- Tal erahnen. Auch in Abb. 6.17 (a) erkennt man bei 10 kG eine Schulter. Mit weiter steigendem Feld erreicht das n = 0 Landauniveau die Photonenenergie. Für Probe S1 sind beide Täler zu erkennen, wobei für Probe S2 schon beim 0<sup>0</sup>- Tal die Emission vollkommen verschwindet. Für höhere Magnetfelder als 50 kG ist die Energielücke so weit geöffnet, daß keine Zustände mehr für Lichtemission in die Resonatormode vorhanden sind.



Abbildung 6.17: Emittierte Intensität der Probe S1 (a) und S2 (b) als Funktion des Magnetfeldes bei einer Temperatur von 1.8 K. Genaue Bedeutung der vertikalen Pfeile siehe Text.

An den Minima bei etwa 10 kG erkennt man, daß offensichtlich die Verluste im Resonator durch Interbandabsorption in die n = 1 Landauniveaus beider Täler schwerer wiegen als die Steigerung des Verstärkungsfaktors durch die Landauquantisierung.

Für eben gezeigte Experimente ist die Photolumineszenz direkt auf den Detektor fokussiert worden. Um den Einfluß eines longitudinalen Magnetfeldes auf das Spektrum der Emission zu untersuchen, wurde die Photolumineszenz durch einen Monochromator spektral zerlegt und danach mit Hilfe eines HgCdTe Detektors registriert. Für diese Untersuchungen bei 1.8 K kam ein durch einen rotierenden Spiegel gütegeschalteter CO- Laser im gepulsten Betrieb zum Einsatz. Beispielhaft werden die an Probe S1 erzielten Resultate diskutiert. Abbildung 6.18 zeigt das experimentelle Spektrum ohne Magnetfeld als volle Kreise. Das Maximum der Emission befindet sich bei einer Energie von 1262.25  $cm^{-1}$ . Aus einer Lorentzanpassung



Abbildung 6.18: Spektrum der Emission von Probe S1 bei 1.8 Kund einem longitudinalen Magnetfeld von 18.9 kG. Der Nachweis erfolgte unpolarisiert,  $\sigma^+$  bzw.  $\sigma^-$  zirkular polarisiert. Volle Symbole: Meßwerte; Linien: Lorentzanpassungen

ergibt sich die Linienbreite zu  $0.36 \ cm^{-1}$ . Bei Anlegung eines longitudinalen Magnetfeldes von 18.9 kG spaltet die emittierte Linie symmetrisch auf. Die Meßwerte (volle Dreiecke) wurden durch Lorentzlinien angepaßt (Linie). Die Linienbreite der Emission bei 1263  $cm^{-1}$  beträgt  $0.35 \ cm^{-1}$  und jene bei 1261.5  $cm^{-1} \ 0.38 \ cm^{-1}$ . Innerhalb der Meßfehler sind die drei beobachteten Linien mit und ohne Magnetfeld gleich breit.

Zur Überprüfung der Polarisation der aufgespalteten Linie wurde in den Nachweisstrahlengang ein  $\lambda/4$ - Fresnel- Rhombus gefolgt von einem Linearpolarisator positioniert. Mit dieser Konfiguration ist es möglich links- ( $\sigma^{-}$ ) bzw. rechtszirkular ( $\sigma^{+}$ ) polarisiertes Licht nachzuweisen. In dem hier verwendeten Versuchsaufbau zeigt der Wellenvektor  $\vec{k}$  des Lichtes antiparallel zu  $\vec{B}$ . Blickt man nun von hinten entlang der Richtung von  $\vec{k}$ , so bedeutet  $\sigma^{+}$ - Licht rechtszirkular polarisiertes Licht, d.h. der elektrische Feldvektor dreht sich im Uhrzeigersinn. Für  $\sigma^-$  ist dies entsprechend vertauscht. Mit Hilfe dieser Nachweisoptik wurde festgestellt, daß die höherenergetische Linie zirkular  $\sigma^+$  und die niederenergetischere zirkular  $\sigma^-$  polarisiert ist (siehe Abb. 6.18). Zur Kontrolle dieser Überlegung wurde eine Vergleichsmessung der Interbandabsorption von PbMnTe durchgeführt, wo  $\sigma^+$ - und  $\sigma^-$ - Übergänge durch die Austauschwechselwirkung zwischen freien Ladungsträgern und Mn- Ionen in genau bekannter Weise aufgespalten sind [98].

Abbildung 6.19 (a) zeigt Spektren der Emission bei verschiedenen Magnetfeldern. Für jedes Magnetfeld wurde je einmal  $\sigma^+$  und anschließend  $\sigma^-$ - Licht nachgewiesen.



Abbildung 6.19: (a) Aufspaltung der Emissionslinie bei Anlegen eines longitudinalen Magnetfeldes. Der Nachweis erfolgte getrennt für  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisiertes Licht. (b) Energetische Position der Maxima der  $\sigma^+$  bzw.  $\sigma^-$  polarisierte Emission als Funktion des Magnetfeldes. Kleines Bild: Energiedifferenz  $\Delta \nu$  als Funktion des Magnetfeldes.

Dabei zeigt sich, daß die Aufspaltung der Laserlinie linear mit dem Magnetfeld
anwächst. Die  $\sigma^+$  Emission wandert dabei zu höheren Energien, während sich die  $\sigma^-$  Emission zu niedrigeren Energien verschiebt. Der Unterschied der Intensitäten der beiden zirkular polarisierten Strahlen nimmt mit steigendem Magnetfeld zu. So konnte die  $\sigma^-$  polarisierte Linie lediglich bis zu einem Feld von 38 kG beobachtet werden, während die  $\sigma^+$  Emission erst ab dem aus Abb. 6.17 (a) bekannten Feld von  $B = 45 \ kG$  verschwindet. Ein solches Verhalten läßt sich dadurch erklären, daß sich mit steigendem Magnetfeld die Position des Ferminiveaus relativ zu den Landauniveaus verschiebt und dadurch manche Übergänge nicht mehr möglich sind. Dies erkennt man in den Spektren an kleiner werdenden Intensitäten der beobachteten Linien.

In Abb. 6.19 (b) ist die energetische Position der Maxima der Emission als Funktion des Magnetfeldes bei einer Temperatur von 1.8 K (volle Symbole) zusammen mit Ausgleichsgeraden aufgetragen. Das kleine Bild in Abb. 6.19 (b) zeigt den energetischen Abstand  $\Delta \nu$  der Emissionsmaxima als Funktion des Magnetfeldes sowie eine lineare Anpassung.

Um zu klären, ob die beobachtete Aufspaltung durch die Bandstruktur des aktiven Materials, z.B. durch die Spinaufspaltung der Energiebänder verursacht oder eine Eigenschaft der Probe ist, wurde die niederenergetischere Resonatormode m = 3 aus Abb. 6.11 (a) bei einer Temperatur von 1.8 K als Funktion des Magnetfeldes vermessen. Zur Beobachtung der transmittierten Intensität dieser ungepumpten Mode bei einer Energie von 1038  $cm^{-1}$  (9.6  $\mu m$ ) wurde ein Globar verwendet. Die gemessene Transmission der Mode zeigte mit zunehmenden Magnetfeld ebenfalls eine Aufspaltung. Bei  $B = 68 \ kG$  beträgt diese 2.6  $cm^{-1}$  und ist damit etwa halb so groß wie die der stimulierten Emission, die nach Abb. 6.19 (b) 2.4  $cm^{-1}$  bei 35 kG beträgt. Da diese passive Mode m = 3 im Magnetfeld auch eine Aufspaltung zeigt, kann ein Zusammenhang der stimulierten Emission mit der Beobachtung zweier Emissionslinien ausgeschlossen werden.

Vielmehr ist der Unterschied der Brechungsindizes des Materials der aktiven Zone für  $\sigma^+$ - und  $\sigma^-$ - Licht, der auch den Faradayeffekt bewirkt, für die Aufspaltung verantwortlich. Dadurch besitzt jede Resonatormode für diese beiden Polarisationen unterschiedliche Resonanzfrequenzen, und es werden zwei Emissionen beobachtet. Ohne Magnetfeld existiert kein Unterschied in den Brechungsindizes, und es ist nur eine Linie zu detektieren. Mit steigendem Magnetfeld nimmt der Unterschied der Brechzahlen zu, und der energetisch Abstand der beiden vermessenen Linien steigt an, wie an den Messungen in Abb. 6.19 zu erkennen ist.

Innerhalb des Resonators befindet sich eine 2.4  $\mu m$  dicke PbEuSe Pufferschicht mit 6% Eu und 1.4  $\mu m$  PbSe als laseraktives Material. Um zu entscheiden, welche dieser beiden Substanzen für die beobachtete Aufspaltung hauptsächlich verantwortlich ist, wurde der Faradayeffekt von reinem PbEuSe der entsprechenden Eu- Konzentration und PbSe gemessen. Bei einem Magnetfeld von 10 kG erhält



Abbildung 6.20: Gemessene Faradaydrehung an (a) PbEuSe ( $x_{Eu} = 6\%$ ) bei einer Wellenlänge von 5.3  $\mu m$  und Temperaturen von 1.8 und 20 K und (b) PbSe bei 9.2  $\mu m$  und T = 1.8 K.

man aus der beobachteten Linienaufspaltung unter der Annahme, daß sie von der PbSe Schicht verursacht ist, einen Unterschied der Brechungsindizes für rechts- und linkszirkular polarisiertes Licht für diese VCSEL Struktur bei einer Wellenlänge von 7.9  $\mu m$  (1265  $cm^{-1}$ )  $\Delta \nu = 0.006$ . Würde die Aufspaltung der Resonatormode durch die PbEuSe Schicht verursacht werden, so müßte deren Brechungsindexunterschied 0.004 betragen. Würde man annehmen, daß beide Schichten in gleichem Maße

beitragen, so ergäbe sich  $\Delta n$  zu 0.002.

Die untersuchte PbEuSe Schicht hatte eine Dicke von 10  $\mu m$ . Bei einer Eu-Konzentration von 6% liegt die Energielücke bei 3.5  $\mu m$  (354.5 meV) bei 1.7 K. Zur Messung des Faradayeffektes wurde zunächst die CO- Laserstrahlung bei einer Wellenlänge von 5280 nm verwendet. Abbildung 6.20 (a) zeigt die Drehung der Polarisationsebene des linear polarisierten Lichts des CO- Lasers als Funktion des Magnetfeldes für die PbEuSe Referenzschicht. PbEuSe ist paramagnetisch und die Faradaydrehung läßt sich durch eine Brillouinfunktion beschreiben. Für ein Feld von 60 kG wurde die Polarisationsebene des einfallenden Lichts um 1.2<sup>0</sup> gedreht, bei 10 kG 0.5<sup>0</sup>. Dies entspricht bei 10 kG einer Brechzahldifferenz von 0.0015 von rechts- und linkszirkular polarisiertem Licht und kann damit den von 0.006 für die VCSEL Struktur nicht erklären.

Die emittierte Linie des hier untersuchten VCSELs S1 lag bei ca. 7.9  $\mu m$ . Für eine weitere Faradayeffektmessung wurde eine Wellenlänge von 9.2  $\mu m$  aus einem CO<sub>2</sub>-Laser benutzt, die energetisch näher an der Emission der VCSEL Probe liegt. Bei einer Temperatur von 1.8 K wurde an der PbEuSe Schicht eine Drehung von 0.6<sup>0</sup> bei 60 kG beobachtet, entsprechend einer Brechzahldifferenz von 0.0005 bei 10 kG. Dieser Wert ist um einen Faktor 10 kleiner als der aus der Aufspaltung der VCSEL Emission ermittelte.

Um die Faradaydrehung des PbSe bei 1.8 K zu untersuchen kam eine 19  $\mu m$  dicke Probe zum Einsatz. Das überraschende Ergebnis zeigt Abb. 6.20 (b). Bei einem Magnetfeld von 25 kG beträgt die Drehung bereits 8.5<sup>0</sup>. Dies sind bei einem Feld von 10 kG 3.4<sup>0</sup> und wesentlich mehr als für die PbEuSe Schicht beobachtet wurde. Der daraus berechnete Unterschied der Brechzahlen für die beiden zirkularen Polarisationen beträgt 0.009 und ist damit dem für den VCSEL ermittelten Wert von 0.006 sehr nahe. Dies läßt den Schluß zu, daß die in der VCSEL Emission beobachtete Aufspaltung auf die PbSe Schicht zurückzuführen ist. Die Faradaydrehung und damit  $\Delta n$  ist proportional zur Magnetisierung [23]. Zwar ist diese im PbEuSe wesentlich größer als im PbSe, jedoch liegt die Photonenenergie sehr nahe an der Energielücke des PbSe, was über den Resonanznenner im Matrixelement eine sehr große Änderung der Brechungsindizes bewirkt.

Ein weiterer Hinweis auf die Tatsache, daß das PbEuSe einen vernachlässigbaren Einfluß auf die Linienaufspaltung hat, folgt aus der in Abb. 6.21 (b) dargestellten



Abbildung 6.21: (a) Differenz der zirkularen Brechungsindizes als Funktion der Wellenlänge bei 1.8 K und 10 kG. Senkrechter Strich: Energielücke von PbSe. (b) Energetische Aufspaltung der Emissionslinie der VCSEL Probe S1 bei  $B = 15.1 \ kG$  als Funktion der Temperatur. Die durchgezogenen Linie ist eine lineare Anpassung an die experimentellen Daten (volle Symbole).

Temperaturabhängigkeit. PbEuSe ist paramagnetisch. Der Brechungsindexunterschied ist wie oben erwähnt proportional zur Magnetisierung, die im Paramagneten ein Curie- Verhalten zeigen sollte. Beobachtet wird hingegen eine lineare Abnahme. Auch die Linearität der Aufspaltung mit dem Magnetfeld (siehe Abb. 6.19 (b)) weist auf PbSe als Ursache hin, da das paramagnetische PbEuSe ein Verhalten gemäß einer Brillouinfunktion zeigen sollte.

Die Diskrepanz zwischen dem aus der Faradaydrehung bei 9.2  $\mu m$  ermittelten Wert  $\Delta n = 0.009$  und dem Wert aus der VCSEL Emission von 0.006 erklärt sich aus der Wellenlängenabhängigkeit der Brechungsindizes. Um diese Wellenlängenabhängigkeit zu studieren wurde mit Hilfe zweier CO<sub>2</sub>- Laser und optischer Vierwellenmischung in InSb der Faradayeffekt an der PbSe Referenzschicht zusätzlich bei 8.97, 8.68 und 8.41  $\mu m$  bei 1.8 K gemessen. Bei 10 kG ergab sich für 8.97  $\mu m$  ein Unterschied der Brechungsindizes von links- und rechtszirkular polarisiertem Licht zu 0.018, bei 8.68  $\mu m$  zu 0.028 und bei 8.41  $\mu m$ zu 0.012. In Abb. 6.21 (a) sind die Unterschiede der Brechungsindizes von rechtsund linkszirkular polarisiertem Licht für die untersuchten Wellenlängen graphisch dargestellt. Die senkrechte Linie markiert dabei die der Energielücke des PbSe entsprechende Wellenlänge. Befindet man sich mit der Messwellenlänge des Lichts oberhalb dieser Linie, so nimmt die Brechzahldifferenz mit Annäherung an die Energielücke zu. Für Energien oberhalb der Energielücke ist eine Messung des Faradayeffektes nur sehr nahe bei  $E_g$  möglich, da für Wellenlängen deutlich oberhalb starke Interbandabsorption zu beobachten ist. Mit Hilfe der VCSEL Struktur war es dennoch möglich, den Brechungsindexunterschied bei einer Wellenlänge von 7.91  $\mu m$  zu bestimmen.

Am Rande sei erwähnt, daß der Unterschied im Vorzeichen der Faradaydrehung von PbSe und PbEuSe (siehe Abb. 6.20) darauf zurückzuführen ist, daß PbSe diamagnetisch, PbEuSe paramagnetisch ist.

Die durchgeführten Experimente zeigen, daß die beobachtete Aufspaltung der Emission des VCSELs durch das PbSe aktive Material aufgrund des Faradayeffektes verursacht wird. Der lineare Zusammenhang zwischen dem energetischem Abstand der aufgespalteten Linien bei dem VCSEL und dem Magnetfeld aus Abb. 6.19 wird durch den linearen Zusammenhang der Faradaydrehung des PbSe in Abb. 6.20 (b) erklärt, da danach die Änderung des Brechungindizes mit steigendem Magnetfeld linear erfolgt.

Der energetische Abstand der Emissionslinien des hier untersuchten VCSELs wird mit steigender Temperatur kleiner. Dieses Verhalten zeigt sich in Abb. 6.21 (b). Bei einem longitudinalen Magnetfeld von 15.1 kG wurde der energetische Unterschied der beiden Emissionslinien als Funktion der Temperatur vermessen. Wie zu erkennen ist, sinkt die Aufspaltung von 2.4  $cm^{-1}$  bei einer Temperatur von 1.8 K auf 0.5  $cm^{-1}$  bei 50 K. Die Meßwerte (volle Symbole) wurden durch eine lineare Funktion angepaßt (durchgezogene Linie).

## 7 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit steht die Untersuchung von niedrigdimensionalen Halbleiterstrukturen mit magnetooptischen Methoden im Vordergrund.

Dabei beschäftigt sich Kapitel 5 mit den elektronischen Eigenschaften von Quantenpunkten, bestehend aus III-V Halbleitern. Neben der Messung der Photolumineszenzspektren wurden Hanle- Effekt Experimente zur Bestimmung der Elektronenspinlebenszeiten durchgeführt.

Bei der ersten Probenserie steht der Einfluß der Dotierung auf InAs Quantenpunkte in einer AlGaAs Matrix im Mittelpunkt. So zeigt sich, daß die erhaltenen Hanle-Kurven für undotierte Quantenpunkte aus einer linearen Überlagerung von zwei Lorentzlinien bestehen. Mit Hilfe von Exzitonen- und Trionenrekombinationsprozessen lassen sich diese beiden simultanen Beiträge zur Hanle- Kurve verstehen. Für p- dotierte Quantenpunkte muß eine Überlagerung von drei Lorentzlinien herangezogen werden, um die gemessenen Kurven anzupassen. Die drei diesen Lorentzlinien zugeordneten Prozesse lassen sich durch Rekombination in unterschiedlich stark geladenen Quantenpunkten erklären. Für n- dotierte InAs Quantenpunkte besitzt die entsprechende Hanle- Kontur die Form einer einzelnen Lorentzkurve. Die daraus abgeleitete Elektronenspinlebenszeit von 1100 ps ist die längste in dieser Serie beobachtete.

Beide Proben der zweiten Serie unterscheiden sich in der Zusammensetzung der Quantenpunkte, die in der einen Probe aus InAs, in der anderen aus  $In_{0.5}Ga_{0.5}As$ bestehen. Speziell bei diesen Proben zeigt sich, daß die Photolumineszenzintensität der InAs Quantenpunkte im Vergleich zu jener der GaAs Deckschicht sehr klein ist. Die Probenhersteller bemühen sich, die emittierte Intensität aus den Quantenpunkten zu erhöhen, um weiterführende Experimente wie optisch detektierte Kernspinresonanz zu ermöglichen.

Bei der dritten Probenserie wird der Einfluß eines Matrixmaterials mit direkter bzw. indirekter Energielücke auf die elektronischen Eigenschaften der Quantenpunkte untersucht. Dazu befanden sich die InAs Inseln in einer  $Al_xGa_{1-x}As$  Matrix mit unterschiedlichen Aluminiumkonzentrationen x. Es wurde gezeigt, daß die Spinlebensdauer für Elektronen in Quantenpunkten innerhalb einer GaAs Matrix mit direkter Energielücke nur 4 ps beträgt. Mit steigendem Aluminiumgehalt wechselt die Energielücke von AlGaAs von direkt zu indirekt. Für das Matrixmaterial AlAs steigert sich die Spinlebensdauer auf 1300 ps. Dies ist eine der längsten in dieser Arbeit beobachteten Spinrelaxationszeiten, weshalb an dieser Probe der optische Nachweis von Kernspinresonanzen versucht worden sind. Die beobachteten Signale stammten jedoch von der GaAs Deckschicht. Für weitergehende Untersuchungen sollte versucht werden, die Intensität der Photolumineszenz zu erhöhen, um durch Verbesserung des Signal- Rausch- Verhältnisses an den InAs Quantenpunkten ein Kernspinresonanzsignal zu finden. Für die Zukunft sollte dieses Ziel nicht aus den Augen verloren werden, da mit Hilfe der Quadrupolaufspaltung des <sup>75</sup>As- Kerns die Verspannung der Quantenpunkte direkt meßbar wäre. Aus den relativen Intensitäten der Kernspinresonanzsignale würde sich weiterhin das Eindringen der Quantenpunktwellenfunktion in das Matrixmaterial quantitativ bestimmen lassen.

Kapitel 6 beschäftigt sich mit dem Materialsystem der IV-VI Halbleiter. Da aus vorhergehenden Arbeiten unklar war, ob es an der Oberfläche von PbSe Quantenpunkten in  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  zur Bildung des ternären Systems  $PbSe_xTe_{1-x}$  kommen könnte und beobachtete Lumineszenzlinien diesem Material zuzuordnen sind, wurde dieses System mit Hilfe von Photolumineszenz-, Magnetotransmissions- und CARS-Messungen untersucht und die Bandparameter bestimmt. Zur Beschreibung dieses Systems erweist sich das theoretische Modell von Wei *et al.* [10] als passend, da der Übergang der Bandparameter von PbSe zu PbTe kontinuierlich verläuft.

PbSe Quantenpunkte zeigen eine sehr schwache Lumineszenzintensität. Um diese zu erhöhen, wurden PbSe Quantenpunkte innerhalb einer vertikal emittierenden Resonatorstruktur gewachsen. Das emittierte Laserlicht dieser nulldimensionalen Strukturen wurde mit dem zwei- und dreidimensionaler aktiver Materialien verglichen. Die erwartete Zunahme der Lasereffizienz bei Verwendung von nulldimensionalen aktiven Zonen konnte jedoch nicht beobachtet werden.

Aus der Untersuchung dieser Resonatorstrukturen ergab sich ein anwendungsnahes Projekt, das sich mit vertikal emittierenden Laserstrukturen (VCSEL) beschäftigte. So konnte erstmals die kontinuierliche Emission eines IV-VI VCSELs beobachtet und detailliert vermessen werden. Dabei zeigt sich, daß die Linienbreiten bei kontinuierlicher Emission schmäler sind als bei gepulster Anregung. Selbst mit einem Doppelmonochromator gelang es nicht, die ultra-schmale Emissionslinie des VCSELs bei kontinuierlicher Anregung aufzulösen. Die Aufspaltung dieser schmalen Emissionslinie in einem longitudinalen Magnetfeld wurde ebenfalls erstmals beobachtet. Es zeigt sich, daß die Polarisation der beiden durch das Magnetfeld entstandenen Emissionslinien entgegengesetzt zirkular ist. Die Aufspaltung wird durch den Unterschied der Brechungsindizes für rechts- und linkszirkular polarisiertes Licht in einem Magnetfeld in Faraday- Konfiguration verursacht. Im Resonator konnte dieser Unterschied bei Lichtwellenlängen bestimmt werden, bei denen wegen der starken Interbandabsorption Faradayeffekt- Messungen nicht möglich waren.

Die Mikroresonatoren erwiesen sich nicht nur für die technologische Anwendung in Halbleiterlasern für das mittlere Infrarote, sondern auch für die Grundlagenforschung als nützliche Hilfsmittel.

## 8 Abstract

The goal of this work is the investigation of low dimensional semiconductor systems by magneto- optical methods. Chapter 5 describes the electronic properties of quantum dots consisting of III-V semiconductors. Beneath the measurement of photoluminescence spectra also Hanle- effect experiments are presented for determining the electron spin lifetimes. The influence of doping on InAs quantum dots embedded in AlGaAs is the subject of the first series of samples. It is shown that the measured Hanle- curves for undoped quantum dots consist of a linear superposition of two Lorentzians. The two according contributions can be understood by exciton- and trionrecombination processes. For fitting the measured Hanle- curves for p- doped quantum dots, a linear superposition of three Lorentzians had to be used. These three processes are explained by recombinations in differently charged quantum dots. The dependence of the degree of circular polarization on a transverse magnetic field for ndoped InAs quantum dots is described by a single Lorentzian. The deduced electron spin lifetime is 1100 ps and the longest in this series. The two samples in the second series differ in the composition of the quantum dots, where the ones in the first sample consist of InAs and those in the second sample of  $In_{0.5}Ga_{0.5}As$ . The samples show, that the intensity of the photoluminescence light emitted by the quantum dots is very weak compared to the one of the GaAs top layer. The samples manufacturer tries to increase the emitted intensity from the quantum dots in order to make further experiments, such as optically detected nuclear spin resonance possible. The electronic properties of quantum dots embedded in a semiconductor with direct or indirect energy gap are analysed by Hanle- effect- measurements on InAs islands in  $Al_xGa_{1-x}As$  matrix with different Al- concentrations x. This third series of samples shows that the electron spin lifetime in quantum dots within a GaAs matrix with direct energy gap is only 4 ps. With increasing Al- content the energy gap of AlGaAs changes from direct to indirect. The spin lifetime in quantum dots embedded in AlAs as matrix material is increased to 1300 ps. This is one of the longest spin lifetimes observed in this work and therefore the optical detection of nuclear magnetic resonances has been tried on this sample. However, the observed signals are related

to the GaAs top layer. It should be tried to increase the intensity of the photoluminescence from the quantum dots for further experiments in order to improve the signal- to- noise ratios and to find signals of nuclear magnetic resonances in InAs quantum dots. Thereby, it would be possible to measure the strain of the quantum dots by the quadrupol splitting of the <sup>75</sup>As nuclear spin resonance. Furthermore the penetration of the quantum dot wave function into the matrix material could be deduced from the relative intensities of the nuclear spin resonance signals. Chapter 6 deals with the material system of IV-VI semiconductors. From previous works it is not clear if on the surface of PbSe quantum dots in  $Pb_{1-x}Eu_xTe$  the tenary system  $PbSe_{x}Te_{1-x}$  is created and observed luminescence lines can be attributed to this material. Therefore this ternary system was investigated by photoluminescence, magnetotransmission and CARS- measurements to determine the band parameters. The theoretical model of Wei *et al.* [10] seems to describe this system quite well, as the transition of the band parameters from PbSe to PbTe is continuous. PbSe quantum dots show a very weak luminescence intensity, which is increased by growing the PbSe quantum dots within a vertical cavity surface emitting resonator. The emitted laser light of these zerodimensional structures was compared with the one of twoand threedimensional active regions. The expected increase in laser efficiency for the zerodimensional active region could not be observed. In a next step vertical cavity surface emitting laser structures (VCSELs) were investigated. Within this project continuous wave emission from IV-VI VCSELs was observed for the first time. It is shown that the linewidth with continuous emission is smaller than with pulsed operation. Even with a double monochromator it is not possible to resolve the ultra narrow emission line of the VCSEL in continuous wave operation. Furthermore the splitting of this narrow emission line in a longitudinal magnetic field is measured for the first time. It is shown, that the circular polarization of the both emission lines, created by the magnetic field, is opposite. The splitting is explained by the difference in the refractive indices for right- and left- hand circularly polarized light in a magnetic field in Faraday- configuration. With VCSELs it is possible to measure this difference even at wavelengths, where Faraday- effect- measurements are not possible because of strong interband absorption. Therefore micro resonators are not only interesting for applications in semiconductor lasers for the midinfrared, but are also a suitable tool for basic research.

## Literaturverzeichnis

- [1] J. M. Ziman. *Priciples in the Theory of Solids*. Cambridge Univ. Press, (1972).
- [2] Y. T. et al., Electr. Lett. **31**, 136–137 (1995).
- [3] O. Madelung. Semiconductor Basic Data. Springer, (1996).
- [4] G. Bauer und H. Krenn, Handbook of Optical Constants of Solids Seiten 517– 523 AND 535–546 (1985).
- T. Schwarzl, Mid-infrared vertical-cavity surface-emitting lasers based on IV-VI semiconductors, Doktorarbeit, Institut für Halbleiterphysik, Johannes Kepler Universität, Linz, (2003).
- [6] C. A. Nanney, P. H. Schmidt, J. H. Wernick und J. P. Garno, J. Physique 29(C4) (1968).
- [7] G. Bauer, H. Burkhard, H. Heinrich und A. Lopez-Otero, J. Appl. Phys. 47, 1721–1723 (1976).
- [8] H. Krenn, S. Yuan, N. Frank und G. Bauer, Phys. Rev. B. 57, 2393 (1998).
- [9] S. Yuan, H. Krenn, G. Springholz und G. Bauer, Phys. Rev. B 47, 7213 (1993).
- [10] S.-H. Wei und A. Zunger, Phys. Rev. B 55, 13605 (1997).
- [11] D. Mitchell und R. Wallis, Phys. Rev. **151**, 581 (1966).
- [12] R. Bernick und L. Kleinman, Solid State Commun 8, 569 (1970).
- [13] J. Dimmock. The physics of semimetals and narrow gap semiconductors. Oxford Pergamon Press, 319, (1971).
- [14] M. Adler, C. R. Hewes und S.D.Senturia, Phys. Rev. B 7, 5186 (1973).
- [15] H. Burkhard, G. Bauer und W. Zawadzki, Phys. Rev. **B** 19, 5149 (1979).
- [16] G. Bauer, H. Pascher und W. Zawadzki, Semicond. Sci. Technol. 7, 703–723 (1992).

- [17] H. Pascher, Appl.Phys. B **34**, 107 (1984).
- [18] H. Pascher, G. Bauer und R. Grisar, Phys. Rev. B 38, 3383 (1988).
- [19] I. Kang, Electronic and optical properties of lead sulphide and lead selenide nanocrystal quantum dots, Dissertation, Cornell University, (1998).
- [20] Landoldt-Börnstein, New Series. Springer Verlag.
- [21] P. Wachter, CRC Crit. Rev. in Solid State Sciences 3, 189–241 (1972).
- [22] J. Schoenes, Z. Physik B **20**, 345–368 (1975).
- [23] H. Krenn, W. Herbst, H. Pascher, Y. Ueta, G. Springholz und G. Bauer, Phys. Rev. B 60, 8117 (1999).
- [24] F. Geist, W. Herbst, C. Mejia-Garcia, H. Pascher, R. Rupprecht, Y. Ueta, G. Springholz und G. Bauer, Phys. Rev. B 56, 13042 (1997).
- [25] Y. Ueta. Dissertation. Universität Linz, Institut für Halbleiterphysik, (1997).
- [26] F. Geist. Dissertation. Universität Bayreuth, (1996).
- [27] G. Bastard, Phys. Rev. B 24, 5693 (1981).
- [28] G. Bastard, Phys. Rev. B **25**, 7584 (1982).
- [29] M. Kriechbaum. Envelope Function Calculation for Superlattices, Band 67. Springer-Verlag Berlin, (1986).
- [30] M. Kriechbaum, H. Pascher, P. Röthlein, C. Clemens und G. Bauer, Superlattices and Microstructures 5, 93 (1989).
- [31] F. Long, W. E. Hagston und P. Harrison. Breakdown of the envelope function/effective mass approximation in narrow quantum wells. In *The Proceedings* of the 23rd International Conference on the Physics of Semiconductors, Seite 1819. World Scientific, (1996).
- [32] G. Springholz und G. Bauer, Phys. Rev. **B** 48, 10998–11009 (1993).

- [33] E. Grodzicka, W. Dobrowolski, T. Story, Z. Wilamowski und B. Witkowska. In H. W. Schock und T. C. Walter, Herausgeber, *Proceedings of the Thenth International Conference on Ternary and Multinary Compounds*. Akademie Verlag, Berlin, (1996).
- [34] M. Aigle, Optische Untersuchungen an niedrigdimensionalen Bleichalkogenidstrukturen, Doktorarbeit, Experimentalphysik I, Universität Bayreuth, Bayreuth, (2001).
- [35] P. Schittenhelm, C. Engel, F. Findeis, G. Abstreiter, A. A. Darhuber, G. Bauer,
  A. O. Kosogov und P. Werner, J. Vac. Sci. Technol. B 16, 1575–1581 (1998).
- [36] D. Leonhard, M. Krishnamurthy, C. Reeves, S. P. Denbaars und P. M. Petroff, Appl. Phys. Lett. 63, 3203–3205 (1993).
- [37] M. Pinczolits, G. Springholz und G. Bauer, Appl. Phys. Lett. 73, 250 (1998).
- [38] D. Bimberg, M. Grundmann und N. Ledenstov. *Quantum Dot Heterostructures*. J. Wiley and Sons, (1999).
- [39] K. Karrai, Nature **405**, 926 (2000).
- [40] Private Notizen, 13th International Winterschool on New Developments in Solid State Physics.
- [41] G. Springholz, V. Holy, M. Pinczolits und G. Bauer, Science 282, 734 (1998).
- [42] G. Springholz, M. Pinczolits, P. Mayer, V. Holy, G. Bauer, H. Kang, und L. Salamanca-Riba, Phys. Rev. Lett. 84, 4669 (2000).
- [43] W. Heiss, T. Schwarzl, J. Roither, G. Springholz, M. Aigle, H. Pascher, K. Biermann und K. Reimann, Progress in Quantum Electronics 25(5-6), 193 (2001).
- [44] D. Dragoman und M. Dragoman. Advanced Optoelectronic Devices. Spinger, (1999).
- [45] A. Ishida, S. Matsuura, M. Mizuno, Y. Sase und H. Fujiyasu, Journal of Applied Physics 63, 4572–4 (1988).
- [46] K. Krenn, S. Yuan, G. Springholz und G. Bauer, Phys. Rev. B 47, 7213 (1993).

- [47] R. P. Stanley, R. Houdre, U. Oesterle, M. Gailhanou und M. Ilegems, Appl. Phys. Lett. 65, 1883 (1994).
- [48] P. Y. Yu und M. Cardona. Fundamentals of Semiconductors. Springer Verlag, (1995).
- [49] G. Lasher und F. Stern, Phys. Rev. **133**, A553 (1964).
- [50] R. Rupprecht und H. Pascher, Phys. Rev. B 50, 16931 (1994).
- [51] T. Uenoyama und L. J. Sham, Phys. Rev. B 42, 7114 (1990).
- [52] A. Kastler, Le Journal de Physique et le Radium 11(255) (1950).
- [53] M. I. Dyakonov, V. I. Perel., F. Meier und B. P. Zakharchenya. Optical Orientation. Elsevier, Amsterdam, (1984).
- [54] M. Krapf, Doktorarbeit, Universität, Bayreuth (1991).
- [55] G. E. Pikus und A. N. Titkov. *Optical Orientation*. (1984).
- [56] M. I. Dyakonov und V. I. Perel, Soviet Physics JETP 38, 177 (1974).
- [57] V. L. Berkovits, A. I. Ekimov und V. I. Safarov, Soviet Physics JETP 1, 169 (1974).
- [58] A. W. Overhauser, Phys. Rev. **92**, 411 (1953).
- [59] G. Denninger. Festkörperprobleme / Advances in Solid State Physics, Band Band 30, Seite 113. (1990).
- [60] A. Abragam. The principles of Nuclear Magnetism. Clarendon Press, Oxford, (1978).
- [61] I. Solomon, Phys. Rev. **99**(2), 559 (1955).
- [62] W. Hanle, Zeitschrift für Physik **30**, 93 (1924).
- [63] R. R. Parsons, Phys. Rev. Lett. **23**(20), 1152 (1969).
- [64] D. Paget, V. L. Berkovits, F. Meier und B. P. Zakharchenya, Kapitel 9, Seite 381. North-Holland, Amsterdam (1984).

- [65] R. Grisar, H. Burkhard, G. Bauer und W. Zawadzki. Seite 405. Int. Conf. Narrow Gap Semincond., Warszawa, (1978).
- [66] U. Smith, R. L. Aggarwal, T. F. Tao und B. Lax, J. Nonmetals 1, 311 (1973).
- [67] H. Pascher, Habilitation, Universität Würzburg (1983).
- [68] M. Schreiner. Dissertation, Universität Bayreuth. (1996).
- [69] A. W. Mantz, J. P. Maillard, W. B. Roh und K. N. Rao, J. Mol. Spectr. 57, 155 (1975).
- [70] T. Y. Chang, Opt. Commun. **77**(2) (1970).
- [71] F. Guffarth, R. Heitz, A. Schliva, O. Stier, A. R. Kovsh, V. M. Ustinov, N. N. Ledenstov und D. Bimberg, Phys. Stat. Sol. (b) 224, 61–65 (2001).
- [72] Dr. Konstantin Zhuravlev, private Mitteilung.
- [73] S. Adachi, J. Appl. Phys. **58**(3), R1 (1985).
- [74] J. J. Finley, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, A. D. Ashmore, C. Baker und A. F. G. Monte, Phys. Rev. B 66, 153316 (2002).
- [75] X. Marie, T. Amand, P. L. Jeune, M. Paillard, P. Renucci, L. E. Golub, V. D. Dymnikov und E. L. Ivchenko, Phys. Rev. B 60, 5811 (1999).
- [76] I. Hapke-Wurst, U. Zeitler, R. J. Haug und K. Pierz, Physica E 12, 802–805 (2002).
- [77] V. K. Kalevich, M. N. Tkachuk, P. L. Jeune, X. Marie und T. Amand, Phy. Solid State 41, 789 (1999).
- [78] R. J. Epstein, D. T. Fuchs, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff und D. D. Awschalom, Appl. Phys. Lett. 78(6), 733 (2001).
- [79] A. V. Efanov, K. S. Zhuravlev, T. S. Shamirzaev, W. Kellner und H. Pascher, JETP 77, 561 (2003).
- [80] J. Fürst, H. Pascher, T. S. Shamirzaev, K. S. Zhuravlev und V. Abalmassov, Veröffentlichung in Vorbereitung.

- [81] Z. Alferov, Proc. 25th Int. Conf. Phys. Semicond., Eds. N. Miura and T. Ando, Osaka 2000, p. 14.
- [82] Y. Arakawa und H. Sakaki, Appl. Phys. Lett. (40), 939 (1982).
- [83] M. Tacke, Infrared Phys. Technol. **36**, 447 (1995).
- [84] T. Schwarzl, W. Heiss, G. Springholz, M. Aigle und H. Pascher, Electr. Lett. 36, 322 (2000).
- [85] Z. Shi, G. Xu, J. McCann, X. M. Fang, N. Dai, C. L. Felix, W. W. Bewley,
  I. Vurgaftman und J. R. Meyer, Apll. Phys. Lett. 76, 3688 (2000).
- [86] G. Springholz, T. Schwarzl, W. H. M. Aigle und H. Pascher, Appl. Phys. Lett. 76, 1807 (2000).
- [87] F. Zhao, H. Wu, L. Jayasinghe und Z. Shi, Appl. Phys. Lett. 80, 1129 (2002).
- [88] W. Heiss, T. Schwarzl, G. Springholz, K. Biermann und K. Reimann, Appl. Phys. Lett. 78, 862 (2001).
- [89] G. Springholz, T. Schwarzl, W. Heiss, G. Bauer, M. Aigle, H. Pascher und I. Vavra, Appl. Phys. Lett. 79, 1225 (2001).
- [90] C. L. Felix, W. W. Bewley, I. Vurgaftman, J. R. Meyer, L. Goldberg, D. H. Chow und E. Selvig, Appl. Phys. Lett. 71, 3483 (1997).
- [91] C. L. Felix, W. Bewley, I. Vurgaftman, J. R. Lindle, J. R. Meyer, H. Z. Wu, G. Xu, S. Khosravani und Z. Shi, Appl. Phys. Lett. 78, 3770 (2001).
- [92] M. Boeberl, W. Heiss, T. Schwarzl, K. Wiesauer und G. Springholz, Appl. Phy. Lett. 82(23) (2003).
- [93] T. Schwarzl, W. Heiss, G. Springholz, H. Krenn, T. Fromherz, A. Raab und I. Vavra, Phys. Rev. B 65(245321) (2002).
- [94] J. Fürst, H. Pascher, T. Schwarzl, M. Böberl, W. Heiss, G. Springholz und G. Bauer, Appl. Phys. Lett. 81, 208 (2002).

- [95] H. Z. Xu, F. Zhao, A. Majumdar, L. Jayasinghe und Z. Shi, Electron. Lett. 39(659) (2003).
- [96] W. W. Bewley, C. L. Felix, I. Vurgaftman, E. H. Aifer, J. R. Meyer, L. Goldberg, J. R. Lindle, D. H. Chow und E. Selvig, IEEE Photon. Technol. Lett 10(660) (1998).
- [97] Persönliche Mitteilung von Prof. Dr. H. Pascher.
- [98] H. Pascher, E. J. Fanter, G. Bauer, W. Zawadski und M. V. Ortenberg, Solid State Communication 48, 461 (1983).

Teile dieser Arbeit wurden publiziert in:

- J. Fürst, H. Pascher, T. Schwarzl, M. Böberl, W. Heiss, G. Springholz, G. Bauer Midinfrared IV-VI vertical-cavity surface-emitting lasers with zero-, two-, and threedimensional systems in the active regions Appl. Phys. Lett. 81, 208 (2002)
- W. Heiss, M. Böberl, T. Schwarzl, G. Springholz, J. Fürst, H. Pascher Applications of lead-salt microcavities for mid-infrared devices IEE Proc.-Optoelectron., 150, 332 (2003)
- J. Fürst, H. Pascher, T. Schwarzl, M. Böberl, G. Springholz, G. Bauer, W. Heiss Continuous-wave emission from a midinfrared IV-VI vertical-cavity surface-emitting lasers Appl. Phys. Lett. 84, 3268 (2004)
- 4. J. Fürst, T. Schwarzl, M. Böberl, H. Pascher, G. Springholz, W. Heiss Continuous wave and pulsed emission from a vertical-cavity surface-emitting laser in the 8 μm midinfrared spectral range IEEE Journal of Quantum Electronics, Vol. 40, No. 8, August 2004
- 5. J. Fürst, H. Pascher, V. A. Shalygin, L. E. Vorobjev, D. A. Frisov, A. A. Tonkikh, N. K. Polyakov, Yu. B. Samsonenko, G. E. Cirlin, V. M. Ustinov Polarized photoluminescence of excitons in n-, p- and undoped InAs-InGaAs quantum dots Eingereicht bei Semiconductor Science and Technology
- 6. A. V. Efanov, T. S. Shamirzaev, K. S. Zhuravlev, J. Fürst, H. Pascher Spin orientation of geminate excitons in high purity AlGaAs layers Wird veröffentlicht in Proceedings of the 27<sup>th</sup> International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS27,2004)
- 7. J. Fürst, T. Schwarzl, M. Böberl, H. Pascher, G. Springholz, W. Heiss Magnetic field tunable circularly polarized emission from midinfrared IV-VI vertical emitting lasers Eingereicht bei Applied Physics Letters

8. J. Fürst, H. Pascher, V. A. Abalmassov, T. S. Shamirzaev, K. S. Zhuravlev Spin lifetime from Hanle- Effect measurements in samples with InAs quantum dots embedded in different  $Al_xGa_{1-x}As$  matrices. Eingereicht bei Semiconductor Science and Technology

## Danksagung

Herrn Prof. Dr. Pascher danke ich für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die interessante Aufgabenstellung. Seine Unterstützung und Diskussionsbereitschaft bei allen auftretenden Fragen war mir eine enorme Hilfe.

Die vorliegende Arbeit wäre nicht möglich gewesen ohne geeignete Proben. Dabei wurden die InAs Quantenpunktproben von den Arbeitsgruppen von Dr. Vadim A. Shalygin (technische Universität St. Petersburg) und Dr. Konstantin Zhuravlev (Russian Academy of Science, Novosibirsk) zur Verfügung gestellt.

Die untersuchten vertikalen Laserstrukturen stammten vom Institut für Halbleiterphysik der Universität Linz.

Dafür und für hilfreiche und interessante Diskussionen und Ratschläge danke ich den beteiligten Mitarbeitern der Institute. Besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. Bauer, Prof. Dr. Springholz, Prof. Dr. Heiss, Dipl. Phys. Michaela Böberl und Dr. Thomas Schwarzl von der Universität Linz für die seit Jahren bestehende gute und sehr erfolgreiche Zusammenarbeit.

Allen derzeitigen und früheren Mitarbeitern am Lehrstuhl Experimentalphysik I danke ich für das ausgesprochen angenehme und kameradschaftliche Arbeitsklima. Den technischen Mitarbeitern des Lehrstuhls und den universitären Einrichtungen danke ich für die technische Unterstützung, besonders der Elektronikwerkstatt für

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) danke ich für die finanzielle Förderung.

das unermüdliche Engagement in Sachen Lasernetzteile!

Weiterhin möchte ich mich bei meinen Eltern bedanken, ohne deren finanzielle Unterstützung mein Studium nicht möglich gewesen wäre.

Nicht zuletzt danke ich meiner Frau und meinem Sohn für ihre Unterstützung.