## Räumliche und spektrale Untersuchung der Resonanzfluoreszenz von Halbleiterstrukturen

Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.) der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Rostock



Traditio et Innovatio

vorgelegt von

Gerolf K. G. Burau, geboren am 13. März 1979 in Rostock,

aus Willershagen

Rostock, 24. Februar 2010

URN: urn:nbn:gbv:28-diss2010-0083-7

<u>Gutachter:</u>

Prof. Dr. Heinrich Stolz, Universität Rostock Prof. Dr. Claus Klingshirn, Universität Karlsruhe

Tag der Verteidigung:

28. April 2010

## Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung		
<b>2</b>	Opt	tische Eigenschaften von Halbleitern	3
	2.1	Halbleiterstrukturen	3
		2.1.1 Exzitonen	5
		2.1.2 Mott-Übergang und Elektron-Loch-Plasma	7
		2.1.3 Phonon	8
		2.1.4 Exziton Phonon Kopplung	10
	2.2	Quantenfilme	11
		2.2.1 Herstellung von Quantenfilmen	12
		2.2.2 Quantenfilmexzitonen	14
	2.3	Lichtemission aus Quantenfilmen	16
		2.3.1 Photolumineszenz	17
		2.3.2 Exzitonische Resonanzfluoreszenz	18
3 Grundlagen der angewandten Mikroskopie			
	3.1	Unendlich Mikroskopobjektiv	21
	3.2	Räumliche Auflösung	22
		3.2.1 Abbildungsfehler durch Planplatte	26
4	Exp	perimenteller Aufbau	29
	4.1	Prinzipieller Aufbau	29
		4.1.1 Strahlaufweitung und Fokussierung	30
	4.2	$4\pi$ -Mikroskop-Kryostat	32
		4.2.1 Temperaturabweichung	34
	4.3	CCD Detektoren	35
	4.4	Spektrometer	35
	4.5	Verwendeter Laser (Ein-Moden-Laser)	36
<b>5</b>	Unt	tersuchungen an Quantenfilmexzitonen	39
	5.1	Anregungsfläche	39
		5.1.1 Anregungsdichte	41
	5.2	Photolumineszenz	42

#### INHALTSVERZEICHNIS

	5.2.1 Temperaturabhängigkeit der Photolumineszenz			43
	5.3 Resonanzfluoreszenz			47
	5.4 Mottübergang und Elektron-Loch-Plasma			52
		5.4.1	Spektrale Untersuchungen	52
		5.4.2	Theoretische Beschreibung und Berechnung	58
		5.4.3	Räumliche Untersuchungen	63
5.5 Temperaturabhängigkeit der Resonanzfluoreszenz			eraturabhängigkeit der Resonanzfluoreszenz	69
		5.5.1	Einfluß der unterschiedlichen Quantenfilme	71
		5.5.2	Korrektur des Untergrunds	75
5.6 Räumliche Verteilung der Resonanzfluoresz			liche Verteilung der Resonanzfluoreszenz	77
		5.6.1	Temperaturabhängigkeit der räumlichen Verteilung	77
		5.6.2	Temperaturabhängiger räumlicher Resonanzscan	81
		5.6.3	Modell zur Simulation der Messung	84
		5.6.4	Räumlich und spektral hochaufgelöste Resonanzfluoreszenz	89
6	Tra	nsmiss	ionsmessung an Quantenfilmen	95
	6.1	Probe	npräparation	96
	6.2	Photo	lumineszenz-Spektren	98
7	untersuchungen an Micropillars	101		
	7.1	Anreg	ungsschema	105
	7.2	Räum	lich aufgelöste Emission	108
	7.3	Photo	lumineszens-Spektren	111
8	3 Zusammenfassung und Ausblick			115
Li	Literaturverzeichnis			

# Abbildungsverzeichnis

<ol> <li>2.1</li> <li>2.2</li> <li>2.3</li> <li>2.4</li> <li>2.5</li> <li>2.6</li> <li>2.7</li> </ol>	Bändermodell von direkten Halbleitern.Debye-Modell für GaAsSchematischer Aufbau und PL-Spektren von der Probe #1294.Schematische Darstellung lokalisierter Exzitonen im Quantenfilm.Schematische Darstellung der optischen Anregung und DetektionSchematische Darstellung der PL-Anregung.Schematische Darstellung der resonanten Anregung.	4 10 13 14 16 17 18
3.1 3.2 3.3 3.4 3.5	Mikroskopobjektiv mit Tubuslinse	22 24 24 27 28
<ol> <li>4.1</li> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> </ol>	Schematische Darstellung der Größe der Anregungsfläche in Abhängig- keit des Laserstrahldurchmessers	30 31 33 34 36
5.1 5.2 5.3	Anregungsfläche bei einer Temperatur von 8 Kelvin	39 40 42
5.4 5.5 5.6	Photolumineszenz der bulk-Struktur, den 19.8 nm und 15.2 nm QW in Abhängigkeit von der Probentemperatur	43 44 46

5.7	Der ermittelte $E_g(T=0)$ Parameter für die Anpassung des Pässler- Modells	46
5.8	Räumliche Verteilung eines Resonanzscans bei $T = 5K$ .	48
5.9	Räumlicher Resonanzscan des 19,8 nm QWs bei einer Temperatur von 5 Kelvin.	49
5.10	Resonanzscanvergleich von jeweils drei "exzitonischen Zuständen" an zwei unterschiedlichen Anregungsorten des 19.8 nm QWs	50
5.11	Resonanzfluoreszenz-Spektren für eine isolierte exzitonische Insel- lokalisierung bei unterschiedlichen Anregungsleistungen.	53
5.12	Resonanzfluoreszenz-Spektren für eine isolierte exzitonische Insel- lokalisierung bei unterschiedlichen Anregungsleistungen.	54
5.13	Anregungsdichte in Abhängigkeit von der Anregungslaserleistung.	55
5.14	Absorptionsvermögen in Abhängigkeit von der Anregungslaserlei- stung.	57
5.15	Absorptionsvermögen in Abhängigkeit von der Anregungsdichte.	57
5.16	Theoretische Berechnungen des imaginären Anteils der Suszepti- bilität.	58
5.17	Theoretisch berechnete Energieverschiebung in Abhängigkeit von	
	der Anregungsleistung.	60
5.18	Theoretisch berechnete Energieverschiebung in Abhängigkeit von	
	der Anregungsdichte.	60
5.19	Experimentell ermittelte Energieverschiebung in Abhängigkeit von	
	der Anregungsleistung.	61
5.20	Experimentell ermittelte Energieverschiebung in Abhängigkeit von der Anregungsdichte.	61
5.21	Spektrenverteilung an unterschiedlichen Orten der Anregungsfläche des 19.8 nm QWs.	64
5.22	Räumliche Verteilung unterschiedlicher exzitonischer Insellokalisie-	
	rungen bei unterschiedlichen Anregungsleistungen	66
5.23	Intensität vier unterschiedlicher exzitonischer Insellokalisierungen	
	in Abhängigkeit von der Anregungsleistung	67
5.24	Räumliche Intensitätsverteilung in y-Richtung der Anregungs- bzw.	
	Emissionsfläche bei minimaler und maximaler optisch resonanter	
	Anregung für die zwei unterschiedlichen exzitonischen Zustände.	68
5.25	RF in Abhängigkeit von der Temperatur.	69
5.26	RF-Energieverschiebung in Abhängigkeit von der Temperatur	70
5.27	Unterschiedliche resonante Anregung des 2s-Zustands und Unter-	
	suchung der Absorptionskante.	71
5.28	Resonante Anregung 1s-Exziton des 9.9 nm QWs	73
5.29	Bulk-Korrektur-Funktionen.	75
5.30	Gegenüberstellung der Ergebnisse der bulk Korrektur	76
5.31	Temperaturabhängigkeit der resonanten Emissionsintensität	78
5.32	Räumliche Verteilung der RF bei unterschiedlichen Temperaturen.	79

#### ABBILDUNGSVERZEICHNIS

5.33	Räumliche Verteilung der RF bei einer Temperatur von 27 K	80
5.34	Räumliche Verteilung der RF bei unterschiedlichen Temperaturen	
	und Anregungsenergien.	83
5.35	Modell der räumlichen Verteilung der RF bei unterschiedlichen	
	Temperaturen	87
5.36	Spektrale Verteilung der RF bei unterschiedlichen Temperaturen .	90
5.37	Mittelwert bzw. Summe der vorherigen Spektren.	91
5.38	Spektraler Vergleich verschiedener Emissionsorte.	92
5.39	Spektraler Vergleich zweier verschiedener Emissionsorte	92
6.1	Schematische Darstellung der QW Probe #M941 und Probenan-	
	regung	96
6.2	Refl. Spektren der QW-Probe #M941.	98
6.3	"Transmissions"-PL-Spektren der QW-Probe $\#\mathrm{M941.}$	99
7.1	Micropillar Aufnahme mit einem Elektronenmikroskop	102
7.2	Schematische Darstellung der seitlichen Micropillaranregung	105
7.3	Seitliche Ansicht der 1.5 $\mu$ m Micropillars	107
7.4	Ansicht von vorne der 1.5 $\mu$ m Micropillars	107
7.5	Ansicht von vorne der 1.5 $\mu$ m Micropillars bei optischer Anregung.	108
7.6	Intensitäts-Höhendarstellung des PL eines direkt optisch seitlich	
	angeregten Micropillars.	110
7.7	Schnitt der Intensitäts-Höhendarstellung wie Abb. 7.6.	110
7.8	PL-Spektren eines einzeln optisch angeregten 1.5 $\mu$ m Micropillars	
	und diversen Quantenpunkten aus der aktiven Schicht.	111
7.9	PL-Emissionsspektrum für drei unterschiedliche Mikroresonatoren.	112
7.10	PL-Emissionsspektrum eines gekoppelten Quantenpunkt-Resonator-	
	mode-Systems eines 1.5 µm Mikroresonators.	112

## Kapitel 1

## Einleitung

In vielen Bereichen der Halbleiterphysik bzw. Halbleiteroptik, werden niederdimensionale Halbleiterstrukturen wie Quantenfilme (2D), Quantendrähte (1D) und Quantenpunkte (0D) eingesetzt. Diese Strukturen bewirken die Einschränkung der "Bewegungsfreiheit" der Ladungsträger. Dadurch ist es möglich effiziente spektral schmalbandige Halbleiterlaser herzustellen.

Bei der Herstellung von Quantenfilmen kommen verschiedene Wachstumsverfahren wie z. B. die Molekularstrahlepitaxie zum Einsatz. Hierbei werden kontinuierlich atomare Halbleiterschichten aufgewachsen. Bei diesem Verfahren entstehen atomare Schichtdickefluktuationen, die auch als Unordnung des Quantenfilms bezeichnet werden. Dieser Prozess ist zunächst rein zufällig und von den Wachstums- und Materialbedingungen abhängig. Durch diese Unordnung entstehen wie in einem Fallenpotenzial [1] lokalisierte Exzitonen (gebundene Elektron-Loch-Paare), die sich auf die Effizienz der Emission auswirken. Durch Optimierung der Wachstumsverfahren und speziellen Ätzverfahren können die Effizienz verbessert und die Fallenpotenziale gezielt angeordnet werden.

Um die hieraus durch optische Anregung entstehenden lokalisierten Exzitonen zu untersuchen und gegebenenfalls zu programmieren, ist eine resonant verstärkende optische Anregung, wie aus der Atomphysik bekannt, notwendig. Da die räumliche (einige nm) und spektrale (einige  $\mu$ eV) Ausdehnung der lokalisierten Exzitonen sehr gering ist, wird für die Detektion ein räumliches und spektral hoch auflösendes System, sowie ein spektral sehr schmalbandiger Anregungslaser benötigt. Dies ist notwendig um einzelne Exzitonen zu adressieren und nach [2, 3, 4] zu selektieren, um die Verschränkung bzw. Kopplung benachbarter und entfernt lokalisierter Exzitonen zu untersuchen und somit die quantenmechanische Wellenfunktion dieser zu beschreiben.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit solchen ungeordneten Quantenfilmen und untersucht die Wechselwirkung der lokalisierten Exzitonen untereinander und mit den Phononen (Gitterschwingungen des Halbleitermaterials). Hierbei wird unter Berücksichtigung hochauflösender räumlicher und spektraler Abbildung und Detektion unter anderem untersucht, ob es sich bei den beobachteten räumlich ausgedehnten Intensitätsverteilungen der resonant angeregten lokalisierten Exzitonen um ein "Zwei-Niveau-System" wie bei Atomen handelt. Hierzu wurde eigens ein spezieller Durchflußkryostat mit zwei internen hochauflösenden identischen Mikroskopobjektiven, mit denen es möglich ist, die Emission aus dem Quantenfilm in beide Raumrichtungen zu messen, entwickelt und gebaut. Daher wird dieser Kryostat auch als  $4\pi$ -Mikroskopkryostat bezeichnet. Gleichzeitig wird die Phonon-Wechselwirkung mit den lokalisierten Exzitonen über die Temperaturabhängigkeit untersucht und beschrieben. Es wird auch gezeigt, inwiefern die Temperaturabhängigkeit und die unterschiedliche räumliche Ausdehnung der lokalisierten Exzitonen einen Einfluß auf die radiative Kopplung und auf daraus folgende Dephasierungsprozesse oder "Superfluoreszenz" der lokalisierten Exzitonen hat.

Im letzten Teil der Arbeit wird die optische Anregung und resonante Kopplung von Halbleiter-Säulen-Mikroresonatoren (engl. Micropillar) mit Quantenpunkten behandelt. Hierbei wird untersucht, inwiefern die räumliche und spektrale Mode im Durchmesser verschiedener Mikroresonatoren mit unterschiedlich stark gekoppelten Quantenpunkten verteilt ist. Zur direkten seitlichen optischen Anregung eines einzelnen Mikrosäulenresonators wurde der  $4\pi$ -Mikroskopkryostat mittels eines dritten Mikroskopobjektivs erweitert.

Die Grundlagen im Kapitel 2, Kapitel 3 und die Erläuterungen zum experimentellen Aufbau in Kapitel 4 dienen zum Verständnis der prinzipiellen Problematik des Verhaltens der Licht-Materie-Wechselwirkung, insbesondere für Halbleitersysteme und deren experimentelle Untersuchbarkeit. Hierbei wird auch besonders auf die räumliche Abbildung mittels Mikroskopobjektiven und der daraus resultierenden Beeinflussung der Qualität der Messergebnisse eingegangen.

### Kapitel 2

## Optische Eigenschaften von Halbleitern

Im Folgenden werden die grundlegenden Begrifflichkeiten und deren Zusammenhänge, die für das Grundverständnis und die Diskussion der Ergebnisse dieser Arbeit von Bedeutung sind, näher erläutert. Die Darstellung dieser allgemeinen Sachverhalte wird mit konkreten Beispielen untermauert. D. h. hierzu werden die konkreten Halbleiterstrukturen und die notwendigen technischen Hilfsmittel, welche in den Experimenten Verwendung fanden, mit in die Darstellungen und die Berechnungen einbezogen, damit später in der Diskussion der Ergebnisse auf diese Bezug genommen werden kann.

#### 2.1 Halbleiterstrukturen

Halbleiter zeigen sowohl elektrisch leitende sowie auch nichtleitende Eigenschaften [5]. Ist die Temperatur nahe bzw. bei dem absoluten Nullpunkt (T = 0 K), so ist das Valenzband vollständig mit Elektronen besetzt und das Leitungsband ist im Gegensatz dazu leer. In diesem Fall handelt es sich um einen Isolator, da keine Ladungsträger ins Leitungsband gelangen können. Zwischen Valenzband und Leitungsband befindet sich ein verbotenes Band oder auch Bandlücke (engl. band gap) genannt, diese ist bei Halbleitern kleiner als bei Isolatoren. Die Breite dieses verbotenen Bandes ist die Bandlückenenergie ( $E_g$ ). Durch die Zufuhr von Energie in Form von Wärme oder Licht, werden Elektronen vom Valenzband in das Leitungsband gehoben (Abb. 2.1 (a)). Dabei hinterlässt das angeregte Elektron ein Loch (engl. hole (h)), dieses hat eine positive Ladung, was daher auch als Defektelektron bezeichnet wird. Mit zunehmender Temperatur wird die Bandlücke kleiner und somit nimmt die elektrische Leitfähigkeit der Halbleiter zu.

Die Bandstrukturen der verschiedenen Halbleiter und die daraus folgenden elektrischen und optischen Eigenschaften unterscheiden sich stark voneinander. Halbleiter werden daher bezüglich der Lage des Valenzbandes zum Leitungsband im zwei Gruppen unterschieden (direkte und indirekte Halbleiter).

**Direkte Halbleiter:** Hier liegt im Impulsraum von Elektron und Loch das Maximum des Valenzbandes unter dem Minimum des Leitungsbandes (Abb. 2.1 (a)), daher besitzen Elektron und Loch den gleichen Impuls. D. h. das Maximum des Valenzbandes und das Minimum des Leitungsbandes liegen bei  $\mathbf{k} = 0$  "übereinander". Dieser Punkt wird in der Brillouin-Zone auch als  $\Gamma$ -Punkt bezeichnet. Durch ein Photon mit relativ geringem Impuls kann daher ein Elektron aus dem Valenzband in das Leitungsband gebracht werden, allerdings muss die Energie des Photons mindestens der Bandlückenenergie entsprechen

$$E_{Photon} = \hbar \cdot \omega = E_g. \tag{2.1}$$

Das Elektron kann auch wieder in das Valenzband zurückfallen, dies geschicht unter Aussendung eines Photons. Es wird hier von Rekombination gesprochen, da dies der Umkehrprozess zu der optischen Anregung ist (Gl. 2.1).

Direkte Halbleiter sind z.B. GaAs, InAs und InP. Diese Halbleiter sind Verbindungshalbleiter aus Ga bzw. In aus der III-Hauptgruppe und As, P aus der V-Hauptgruppe, daher wird GaAs auch als III-V-Halbleiter bezeichnet.



Abbildung 2.1: Schematische Darstellung: (a) Bänder eines direkten Halbleiters ( $V_{Max}$  und  $L_{Min}$  liegen bei  $\mathbf{k} = 0$  im gleichen Punkt  $\Gamma$ ); (b) Energieniveaus eines Exzitons im direkten Halbleiter ( $\infty$ : Kontinuumszustände).

Indirekte Halbleiter: Hier ist im Impulsraum das Maximum des Valenzbandes in Bezug auf das Minimum des Leitungsbandes verschoben, sie liegen somit nicht in einem gemeinsamen Punkt. Daher muss zusätzlich zur Photonenenergie

#### 2.1. HALBLEITERSTRUKTUREN

das Elektron seinen Impuls  $(p = \hbar \cdot k)$  ändern, um die Bandlücke zu überwinden. Dieser Impuls ist größer als der Photonenimpuls und wird durch ein Phonon (Gitterschwingung) bereitgestellt. Indirekte Halbleiter sind z. B. Si, GaP und AlAs.

Halbleiterstrukturen: Aufgrund der unterschiedlichen räumlichen Dimension von Halbleitern unterscheiden sich diese stark in ihren elektrischen und optischen Eigenschaften. Dabei wird bei sehr dicken Schichten von den dreidimensionalen Halbleiterstrukturen oder auch Volumenhalbleitern gesprochen. Der Quantenfilm (engl. quantum well -QW-) ist eine zweidimensionale Halbleiterstruktur (siehe Abschnitt 2.2). Als Quantendraht (engl. quantum wire) werden eindimensionale Halbleiterstrukturen bezeichnet und die nulldimensionale Halbleiterstruktur wird Quantenpunkt (engl. quantum dot) genannt.

#### 2.1.1 Exzitonen

Wie in Abschnitt 2.1 (Abb. 2.1) beschrieben, ensteht in einem Halbleiter durch die Absorption eines Photons ein Elektron-Loch-Paar. Dabei ziehen sich Elektron und Loch über die Coulomb Wechselwirkung gegenseitig an. Das Elektron-Loch-Paar stellt somit ein Quasiteilchen dar und wird Exziton (engl. exciton) genannt. Das Exziton ist näherungsweise äquivalent zum Wasserstoffatom, da dieses auch nur ein Elektron besitzt. Das Loch (h) repräsentiert hierbei den Kern des Wasserstoffatoms. Die Bindungsenergie bzw. die Energieeigenwerte der Exzitonen in Volumenhalbleitern (Abb. 2.1 (b)) lassen sich somit analog zur Bindungsenergie des Wasserstoffatoms durch die abgewandelte Rydberg Gleichung [5] aufstellen

$$E_{Ex,3D,n} = \frac{\tilde{m} \cdot e^4}{32 \cdot \pi^2 \cdot \varepsilon^2 \cdot \varepsilon_0^2 \cdot \hbar^2} \cdot \frac{1}{n^2}, \quad n = 1, 2, 3, \dots$$
(2.2)

mit n der Hauptquantenzahl, e der Elementarladung,  $\varepsilon$  der Dielektrizitätskonstante im Halbleiterkristall,  $\hbar = h/2\pi$  dem Planckschen Wirkungsquantum. Die reduzierte Masse  $\tilde{m}$  wird aus der effektiven Masse von Elektron  $(m_e^*)$  und Loch  $(m_h^*)$  gebildet

$$\tilde{m} = \frac{m_e^* \cdot m_h^*}{m_e^* + m_h^*}.$$
(2.3)

Die effektiven Massen bei GaAs sind  $m_e^* = 0.07 \cdot m_e$  und  $m_h^* = 0.5 \cdot m_e$ , wobei hier  $m_e$  die Ruhemasse des Elektrons ist. Die Energien dieser gebundenen Exzitonzustände liegen somit unterhalb der Unterkante des Leitungsbandes. Diese Art von Exzitonen unterliegen einer schwachen Bindung und sind frei beweglich, sie werden Wannier-Exzitonen genannt. Die Energieniveaus entsprechen einem bestimmten Zustand im Schalenmodell. D.h. ein Exziton besitzt für die Hauptquantenzahlen n = 1, 2, 3 einen 1s-, 2s- und 3s-Zustand, wie im quantenmechanischen Atommodel für das Wasserstoffatom. Die Bindungsenergie des 1<br/>s-Grundzustands ist bein=1

$$E_{Ex,3D,n=1} = \frac{\tilde{m} \cdot e^4}{32 \cdot \pi^2 \cdot \varepsilon^2 \cdot \varepsilon_0^2 \cdot \hbar^2} = \frac{e^2}{8 \cdot \pi \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon \cdot a_{Ex}},$$
(2.4)

wobei  $a_{Ex,3D}$  der "Bohrsche" Radius des Exzitons im 1s-Grundzustand ist

$$a_{Ex,3D} = \frac{4 \cdot \pi \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon \cdot \hbar^2}{\tilde{m} \cdot e^2}.$$
(2.5)

Die Lebensdauer von Exzitonen in direkten Volumenhalbleitern liegt etwa im ns bis  $\mu s$  Bereich. D. h. nach dieser Zeit fällt das Elektron durch Aussenden eines Photons wieder ins Valenzband. Dieser Prozess wird auch Strahlungsrekombination genannt. Bei indirekten Volumenhalbleitern liegt die Lebensdauer etwa im  $\mu s$  bis ms Bereich.

In Halbleitern können sich auch in Analogie zum Wasserstoffmolekül exzitonische Moleküle die sogenannten Biexzitonen oder auch XX-Exzitonen bilden, die aus zwei Elektron-Loch-Paaren in kovalenter Bindung bestehen.

Ein wesentlicher Punkt bei der Betrachtung des Exzitons als Quasiteilchen und der daraus folgenden Analogie zum Wasserstoffatom ist auch noch die Berücksichtigung der Spinquantenzahl. Diese ist ausschlaggebend für die Wahrscheinlichkeit, welche Energie ein Teilchen bei einer bestimmten Temperatur hat. D.h. Elektronen  $e^-$  und Löcher  $e^+$  haben im ungebundenen Zustand jeweils einen halbzahligen Spin und sind somit Fermionen und unterliegen der Fermiverteilung

$$f_{Fermi}(E) = \frac{1}{\exp\left(\frac{E-\mu}{k_B \cdot T}\right) + 1},$$
(2.6)

 $\mu$  ist hierbei das chemische Potenzial. Das Wasserstoffatom hat einen ganzzahligen Spin ist somit ein Boson und unterliegt der Boseverteilung

$$f_{Bose}(E) = \frac{1}{\exp\left(\frac{E-\mu}{k_B \cdot T}\right) - 1}.$$
(2.7)

Im Grenzfall für große Energien geht die Fermi- und Bose-Verteilung in die Boltzmann-Verteilung über. Die Summe der beiden Fermionen des Exzitons ergibt einen ganzzahligen Spin, daher müssten Exzitonen ebenfalls Bosonen sein und der Boseverteilung unterliegen. Die Besetzungswahrscheinlichkeit gibt somit die Wahrscheinlichkeit an, mit der jedes Energieniveau besetzt wird.

Die Dichte der zu besetzenden Energieniveaus ist die Zustandsdichte  $\varrho(E)$ . Die Zustandsdichte hängt stark von der Quantisierung der Raumrichtung (Dimensionsreduzierung) der Halbleiterstruktur ab.

3D	2D	1D	0D
(Volumenhalbleiter)	(Quantenfilm)	(Quantendraht)	(Quantenpunkt)
$\varrho(E) \propto \sqrt{E}$	$ \varrho(E) \propto \sum_{n} \Theta(E - E_n) $	$\varrho(E) \propto \sum_{n} \frac{1}{\sqrt{E-E_n}}$	$\varrho(E) \propto \sum_{n} \delta(E - E_n)$

Tabelle 2.1: Gegenüberstellung der Zustandsdichten für unterschiedliche dimensionsreduzierte Halbleiterstrukturen, mit  $\Theta$  der Stufenfunktion und  $\delta$  der Deltafunktion.

Je mehr die Bewegung der Elektronen durch die Dimensionsreduzierung der Halbleiterstruktur eingeschränkt wird, desto mehr spalten sich die Leitungs- und Valenzbänder in immer schmaler werdende überlappende Unterbänder auf. Die Zustandsdichte von Quantenfilmen entspricht einer Stufenverteilung oder auch Treppenverteilung. Bei Quantenpunkten verhält sich  $\rho(E)$  wie die Deltafunktion  $\delta$ , somit existieren diskrete Energieniveaus, wie bei einzelnen Atomen.

Die Ladungsträgerkonzentration der Elektronen und Löcher für ein bestimmtes Energieniveau ergibt sich aus dem Integral über die Multiplikation der Besetzungswahrscheinlichkeit mit der Zustandsdichte.

#### 2.1.2 Mott-Übergang und Elektron-Loch-Plasma

Im vorangegangenen Kapitel wurden die gebundenen Elektron-Loch-Paare betrachtet. Nun gibt es aber auch noch ungebundene also freie Elektron-Loch-Paare, die ebenfalls im Halbleiter existieren und ein Elektron-Loch-Plasma bilden. Die Existenz dieser beiden unterschiedlichen Zustände hängt von der Ladungsträgerdichte n ab. Die kritische Dichte, bei der die Exzitonen ionisieren also die Bindungsenergie aufgebrochen wird, ist die Mottdichte  $n_{Mott}$ .

gebundene Ladungsträger  $\leftarrow n_{Mott} \rightarrow$  ungebundene Ladungsträger (Exzitonen) (Elektron-Loch-Plasma)

Ein sehr stark vereinfachtes Modell, das diesen Übergang beschreibt, ist das Kugelmodell [6, 7]. Hierbei nimmt das Exziton durch seinen Radius  $a_{Ex}$  ein Volumen im Raum ein. Mit zunehmender Exzitonendichte nimmt somit auch das Volumen zu und der begrenzte Raum wird mehr und mehr ausgefüllt. Wenn die Bedingung

$$n_{Mott} \cdot a_{Ex}^3 \simeq 1, \tag{2.8}$$

erreicht ist, d. h. wenn das Raumvolumen komplett ausgefüllt ist, kommt es zur Ionisation der Exzitonen. Danach besteht nur noch ein Elektron-Loch-Plasma aus freien Ladungsträgern. Dieses Modell ist für das prinzipielle Verständnis recht sinnvoll, aber für eine konkrete Berechnung nicht geeignet. Eine genauere Beschreibung des Mott-Übergangs ist die Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkung [8, 9]. Das Abschirmpotenzial oder auch Debye-Potenzial für zwei Ladungen  $e_a$  und  $e_b$  ist dann

$$V_{a,b}^D(r) = \frac{e_a \cdot e_b}{4 \cdot \pi \cdot \varepsilon_0 \cdot r} \cdot \exp(-\kappa \cdot r), \qquad (2.9)$$

$$\kappa^2 = \frac{e^2 \cdot n_{Mott}}{\varepsilon \cdot \varepsilon_0 \cdot k_B \cdot T},\tag{2.10}$$

wobei  $\kappa^2$  der inverse Abschirmradius ist. Die numerische Lösung der effektiven Schrödinger-Gleichung für die kritische Dichte also der Mott-Dichte ist nach [10]

$$\frac{1}{\kappa_{Mott}} = 0.84 \cdot a_{Ex}.$$
(2.11)

Der Mottübergang ist somit nicht nur von der Dichte abhängig wie in Gl. 2.8, sondern auch von der Temperatur. Die Erhöhung der Dichte führt zur Absenkung der Kontinuumskante. Hierzu muss allerdings noch erwähnt werden, dass dieses Modell eigentlich auch nur für höhere Temperaturen geeignet ist. Nach neueren Rechnungen wird der genauere Wert der theoretischen Mottdichte bei tieferen Temperaturen durch das Modell der dynamischen Abschirmung [11, 12] besser wiedergegeben.

Ist die Mott-Dichte erreicht, sind die gebundenen Zustände im Kontinuum der Streuzustände verschwunden. Die Exzitonen sind dann vollständig ionisiert und es existiert nur noch ein ungebundenes Elektron-Loch-Plasma. Dieser Prozess wird auch Druckionisation genannt.

Im Elektron-Loch-Plasma kann Absorption durch quantisierte Dichteschwankungen der Ladungsträger (Plasmonen oder auch von Plasmaschwingungsquanten) zustande kommen. Bei der optischen Anregung äußert sich der Mott-Übergang mit einem drastischen Wechsel der optischen Absorption der Exzitonen, was zum Verschwinden der exzitonischen Absorptionslinie führt.

#### 2.1.3 Phonon

Die auftretenden Gitterschwingungen in kristallinen Festkörpern werden in der Quantisierung auch als Phononen bezeichnet. Hierbei wird zwischen zwei verschiedenden Phononenarten unterschieden:

- akustische Phononen: Gitteratome einer Basis bewegen sich bzw. schwingen in Phase.
- optische Phononen: Gitteratome einer Basis bewegen sich bzw. schwingen gegenphasig. Die Schwingungsfrequenz liegt hier im infraroten oder im sichtbaren Lichtbereich.

#### 2.1. HALBLEITERSTRUKTUREN

Das Verhalten der **akustischen Phononen** bei "thermischer Anregung" kann als Überlagerung von Schallwellen, also elastischen ebenen Wellen beschrieben werden. In dem *Debye-Modell* kann dieses Verhalten über die Berechnung der spezifischen Wärmekapazität  $C_V$  des Kristalls [5]

$$C_V = 9 \cdot N \cdot k_B \cdot \left(\frac{T}{T_D}\right)^3 \cdot \int_0^{\frac{T_D}{T}} \frac{x^4 \cdot \exp(x)}{(\exp(x) - 1)^2} \, dx,$$
 (2.12)

bestimmt werden, wobe<br/>iNdie Phononenanzahl bzw. Oszillatoranzahl<br/>,Tdie Temperatur des Kristalls und  $T_D$  die material<br/>spezifische Debye-Temperatur ist. Hierbei wird der Kristall einem isotropen homogenen elastischen Kontinuum mit<br/> longitudinalen  $c_l$  und transversalen  $c_t$ Schallwellen gleichgesetzt. Som<br/>it gilt für die Debye-Temperatur

$$T_D^{-3} \propto c_{eff}^{-3} := \frac{1}{3} \cdot c_l^{-3} + \frac{2}{3} \cdot c_t^{-3},$$
 (2.13)

wobei  $c_{eff}$  die effektive Schallgeschwindigkeit ist. Die Debye-Temperatur ist durch die größte auftretende Phononenfrequenz der sogenannten Debyegrenzfrequenz  $\omega_D$  und die Debye-Geschwindigkeit  $v_D$  bestimmt

$$T_D = \frac{\hbar \cdot \omega_D}{k_B} = \frac{\hbar \cdot v_D}{k_B} \cdot \sqrt[3]{\frac{6 \cdot \pi^2 \cdot N}{V}}, \qquad (2.14)$$

mit V dem Volumen.  $T_D$  ist somit ein Maß für die Härte des Festkörpers. Für kubische Festkörper mit der Gitterkonstante  $a \operatorname{kann} \frac{V}{N} = a^3$  gesetzt werden. Die *Debye-Temperatur* ist von dem Material des Festkörpers und der Temperatur T abhängig.

In 2.2 (a) ist der allgemeine Verlauf der spezifischen Wärmekapazität in Abhängigkeit von der Temperatur und der *Debye-Temperatur* dargestellt. Es ist deutlich ein nichtlineares Verhalten der Wärmekapazität in Abhängigkeit von den Phononenschwingungen zu beobachten. Im Niedertemperaturbereich  $(T \ll T_D)$  ist die "Phononische" spezifische Wärmekapazität

$$C_V = \frac{12 \cdot \pi^4}{5} \cdot \left(\frac{T}{T_D}\right)^3 \cdot N \cdot k_B, \qquad (2.15)$$

somit gibt es eine direkte Verbindung zwischen  $C_V$ , der Temperatur sowie dem Volumen V pro Atom. Im Hochtemperaturbereich  $(T \gg T_D)$  nähert sich

$$C_V = 3 \cdot N \cdot k_B, \tag{2.16}$$

an. Dies entspricht genau dem Dulong-Petit-Gesetz.

In Abb. 2.2 (b) ist nach [13] das temperaturabhängige Verhalten der *Debye-Temperatur* für GaAs aufgetragen. Auch hier ist ein stark nichtlineares Verhalten unterhalb von 160 Kelvin zu beobachten, das sich selbstverständlich auf Gl. 2.12 auswirkt. Oberhalb von 160 Kelvin bleibt die *Debye-Temperatur* konstant bei 360 Kelvin.



Abbildung 2.2: (a) Allgemeiner auf Eins normierter Verlauf der spezifischen Wärmekapzität von Festkörpern in Abhängigkeit von der Temperatur nach dem *Debye-Modell*. (b) Temperaturabhängiger Verlauf der *Debye-Temperatur* für GaAs nach [13].

#### 2.1.4 Exziton Phonon Kopplung

Da sich die betrachteten Exzitonen in einem Kristall ausbilden, besteht zwischen den Exzitonen und dem Atomgitter eine temperaturabhängige Wechselwirkung bzw. Kopplung.

Die Exziton-Phononenkopplung ist somit temperaturabhängig. Dies hat eine Linienverbreiterung der exzitonischen Emissionslinie zur Folge [14]

$$\Gamma(T) = \Gamma_0 + \gamma_{akP} \cdot T + \gamma_{LOP} \cdot \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar \cdot \omega}{k_B \cdot T}\right) - 1},$$
(2.17)

mit  $\gamma_{akP}$  dem Kopplungsparameter für die Kopplung der Exzitonen an die akustischen Phononen,  $\gamma_{LOP}$  der Kopplungskonstante für die Kopplung der Exzitonen an die longitudinal optischen Phononen und  $\overline{h \cdot \omega}$  der mittleren longitudinal optischen Phononenenergie.  $\Gamma_0$  ist die natürliche homogene exzitonische Linienbreite entsprechend einer Lorentzkurve, die durch die Energie-Zeit-Unschärfe für T = 0K bestimmt ist

$$\Gamma_0 = \frac{2 \cdot \hbar}{\tau_{Ex}},\tag{2.18}$$

wobei  $\tau_{Ex}$  die exzitonische Lebensdauer ist.

Für  $k_B \cdot T \ll \overline{h \cdot \omega}$ , kann an Stelle der Boseverteilung die Boltzmannverteilung für die longitudinal optischen Phononen gesetzt werden,

$$\Gamma(T) = \Gamma_0 + \gamma_{akP} \cdot T + \gamma_{LOP} \cdot \exp\left(-\frac{\overline{\hbar \cdot \omega}}{k_B \cdot T}\right).$$
(2.19)

#### 2.2 Quantenfilme

Quantenfilme sind Doppelheterostrukturen mit einer Dicke von nur einigen Nanometern. Bei einer Doppelheterostruktur wie z. B. AlGaAs/GaAs/AlGaAs liegt ein direkter Halbleiter mit einer kleineren Bandlücke zwischen zwei gleichen Halbleitern mit einer größeren Bandlücke. Dadurch werden die Ladungsträger in ein begrenztes gemeinsames Gebiet gezwungen. Durch die unterschiedliche Bandlückenenergie entsteht somit ein Potentialtopf. Um mechanische Spannungen zwischen den Halbleiterschichten zu vermeiden, werden Halbleiter mit der gleichen Gitterkonstante (z. B.  $a_{GaAS} = 0.56533$  nm) verwendet. Die Dicke, ab wann es sich nicht mehr um einen Volumenhalbleiter sondern um einen Quantenfilm handelt, hängt von der temperaturabhängigen De-Broglie-Wellenlänge ab. D.h. bei bzw. unterhalb dieser Wellenlänge, die einer Quantenfilmdicke entspricht, sind die Beziehungen für den Volumenhalbleiter zwischen Energie und Impuls nicht mehr gültig, da es sich dann um gequantelte Energien handelt. Daraus folgt eine Quantisierung der Bewegung der Ladungsträger in Wachstumsrichtung (z-Richtung). Die freie Bewegung der Ladungsträger in x- und y- Richtung bleibt erhalten. Diese Halbleiterstruktur besitzt demzufolge nur zwei Dimensionen und durch die Quantisierung wird das Valenzband in Subbänder aufgespalten [15]. Diese Subbänder werden auch als Schwerloch (engl. heavy hole -hh-) und Leichtloch (engl. light hole -lh-) bezeichnet.

#### 2.2.1 Herstellung von Quantenfilmen

Die Herstellung von Quantenfilmen erfolgt durch Schichten eines Halbleiters auf einen anderen Halbleiter. Dieses Verfahren wird als Epitaxie bezeichnet. Je nach dem auf welches Substrat das Halbleitermaterial aufgewachsen wird, handelt es sich dann um *Homoepitaxie (Substrat besteht aus dem gleichen Halbleitermaterial)* oder um *Heteroepitaxie (Substrat besteht aus einem anderen Halbleitermaterial)*. Es gibt unterschiedliche Techniken der Epitaxie, die ihre Vor- und Nachteile haben:

**Molekularstrahlepitaxie:** (engl. Molecular Beam Epitaxy -MBE-) Hier treffen die Molekularstrahlen des jeweiligen Halbleitermaterials im Hochvakuum auf ein Substrat. Dies geschieht für die jeweiligen Doppelheterostrukturen stufenweise in Atomlagen.

**Flüssigphasenepitaxie:** (engl. Liquid Phase Epitaxy -LPE-) Hierbei wird eine gesättigte Lösung mit dem entsprechenden Halbleitermaterial, die im direkten Kontakt mit dem Substrat steht, abgekühlt.

**Gasphasenepitaxie:** (engl. Vapour Phase Epitaxy -VPE-) Hierbei werden Gase mit der Zusammensetzung der benötigten Halbleiter kontrolliert auf das Substrat gedampft.

Die in dieser Arbeit verwendete Probe #1294 (Abb. 2.3) ist in der Universität Bochum von Frau S. Eshlaghi [16] mittels Molekularstrahlepitaxie hergestellt worden und besitzt mehrere GaAs-Quantenfilme unterschiedlicher Dicke (Mehrfachquantenschichtstruktur). Die Quantenfilme liegen getrennt voneinander, jeweils zwischen AlAs/GaAs-Übergittern. Bei der Methode der Molekularstrahlepitaxie treten Schwankungen von einzelnen Atomlagen an den Grenzflächen auf. Hierbei entstehen "atomare" Stufen an den Grenzflächen zwischen den Halbleiterschichten. Diese Grenzflächenrauhigkeit hat eine Schichtdickenfluktuation zur Folge. Die Schwankung der Schichtdicke führt zu Unordnung im Quantenfilm [17, 18, 19], und hat Auswirkungen auf die optischen Eigenschaften.



Abbildung 2.3: Schematischer Aufbau (oben) und durch HeNe-Laser erzeugte PL-Spektren von der GaAs-Quantenfilmprobe #1294 aus Bochum (unten).

#### 2.2.2 Quantenfilmexzitonen

In Quantenfilmen ist die Bewegung der Exzitonen in Wachstumsrichtung (z-Richtung) quantisiert (siehe Abschnitt 2.2), daher existieren im Quantenfilm Schwerloch- und Leichtloch-Exzitonen. Ein weiterer Unterschied zu Exzitonen in dreidimensionalen Halbleitern ist, dass die Bindungsenergie bei den Quantenfilmexzitonen von der Dicke  $L_z$  des Quantenfilms abhängt, d.h. die 1s-Bindungsenergie kann im Quantenfilm bis zum Vierfachen größer sein ( $E_{Ex,2D} = 4 \cdot E_{Ex,3D}$ ), als beim Volumenhalbleiter [15]. Im gleichen Zusammenhang reduziert sich der exzitonische Radius auf die Hälfte,  $a_{Ex,2D} = \frac{1}{2} \cdot a_{Ex,3D}$ .



Abbildung 2.4: Schematische Darstellung lokalisierter Exzitonen im Quantenfilm mit  $L_z$  der unterschiedlichen Quantenfilmdicke. (a) Quantenfilminseln für glatte Grenzflächen mit unterschiedlichen "atomaren"-Stufen, die größer als  $a_{Ex}$  sind. (b) Gemittelte Quantenfilminseln über "atomaren"-Stufen, die kleiner als  $a_{Ex}$  sind. (c) Entsprechende Lokalisierungspotenziale mit den jeweiligen Wellenfunktionen  $\Psi$  für die ersten zwei exzitonischen Energieniveaus.

Wie schon in Abschnitt 2.2.1 erwähnt, treten durch den Wachstumsprozess Unordnungseffekte im Quantenfilm auf. D. h. durch die Schichtdickenfluktuation des Quantenfilms bilden sich unterschiedlich lokalisierte Exzitonen (Quantenfilmexzitonen) bzw. Quantenfilminseln aus. Durch Wachstumsunterbrechungen entstehen sehr glatte Grenzflächen mit monoatomaren Stufen, die einer größeren Ausdehnung als dem Bohrschen Radius des Exzitons entsprechen. Hierdurch entstehen unterschiedlich diskrete lokalisierte Exzitonen (Abb. 2.4 (a)). Die spektrale Linie dieser einzelnen Zustände entspricht dann einer homogen verbreiterten Lorentzkurve. Sind allerdings die Ausdehnungen der "atomaren" Stufen kleiner als der Bohrsche Radius des Exzitons (Abb. 2.4 (b)), entstehen Mittelungseffekte mit inhomogener spektraler Linienverbreiterung. Diese inhomogene spektrale Linienverbreiterung kommt durch die sehr dicht nebeneinander liegenden Stufen-Niveaus. In diesem Fall handelt es sich um starke Unordnung. Bezogen auf die Quantenfilmdicke macht sich die Unordnung bzw. die relative Dickenänderung und somit die entstehende inhomogene Linienverbreiterung bei dünneren Quantenfilmen wesentlich stärker bemerkbar als bei dickeren Quantenfilmen. Es wird daher auch im Allgemeinen zwischen starker bzw. schwacher Unordnung von Quantenfilmen unterschieden.

Das Lokalisierungspotenzial eines Quantenfilmexzitons in dem Fall der Unordnung entspricht somit einem eindimensionalen Kastenpotenzial [20, 19] mit der Breite  $L_z$ , was der jeweiligen Schicht- bzw. Quantenfilmdicke entspricht (Abb. 2.4 (c)). Aus dieser Annahme ergibt sich aus der allgemeinen zeitunabhängigen Schrödingergleichung

$$-\frac{\hbar^2}{2 \cdot m} \cdot \nabla^2 \cdot \Psi(\vec{r}) + V(\vec{r}) \cdot \Psi(\vec{r}) = E \cdot \Psi(\vec{r}), \qquad (2.20)$$

mit E der Energie,  $\Psi$  der Wellenfunktion und V dem Potential, die 1-dimensionale Schrödingergleichung

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\cdot m}\cdot\frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(z)\right]\cdot\Psi(z) = E\cdot\Psi(z).$$
(2.21)

Die Energieeigenwerte oder auch exzitonische Energieniveaus sind dann

$$E_{Ex,n} = \frac{\hbar^2}{2 \cdot m} \cdot \left(\frac{n \cdot \pi}{L_z}\right)^2, \qquad n = 1, 2, 3, ...,$$
 (2.22)

und somit quantisiert. Die quantisierte normierte exzitonische Wellenfunktion lautet dann

$$\Psi_{Ex,n} = A \cdot \sin\left(\frac{n \cdot z \cdot \pi}{L_z}\right)^2, \qquad n = 1, 2, 3, \dots \qquad (2.23)$$

Durch die Unordnung im Quantenfilm sind somit die Exzitonen unterschiedlich lokalisiert mit entsprechenden quantisierten Energien und Wellenfunktionen. Da diese Lokalisierung durch den Wachstumsprozess willkürlich ist, sind auch die exzitonischen Energien und entsprechenden Wellenfunktionen willkürlich diskret verteilt.

#### 2.3 Lichtemission aus Quantenfilmen

Bei der optischen Anregung einer Quantenfilmprobe mit einem Laser unter einem beliebigen Anregungswinkel  $\Theta$  wird ein Teil des Anregungslichtes reflektiert und ein Teil transmittiert (Abb. 2.5). Diese Anteile werden als primäre Emission bezeichnet (PE).



Abbildung 2.5: Schematische Darstellung der optischen Anregung einer Quantenfilmprobe unter einem beliebigen Anregungswinkel  $\Theta$  und Detektion der Sekundäremission aus dem QW mit Mikroskopobjektiven.

Ein weiterer Anteil entsteht durch die Erzeugung (optische Laseranregung) von Exzitonen und deren Rekombination (Emission) sowie durch Laserlichtstreuung an Phononen und Ladungsträgern bzw. Exzitonen. Dieser Anteil wird als Sekundäremission bezeichnet (SE). Die Sekundäremission strahlt im vollen  $4\pi$  Raumwinkel (*Steradiant*) ab, allerdings ist die Detektion durch den Öffnungswinkel  $2 \cdot \varphi$  des Mikroskopobjektivs begrenzt. Um möglichst den gesamten Raumwinkel zu detektieren, müssen daher zwei Objektive mit einem jeweiligen Raumwinkel von  $2\pi$  (*Steradiant*) verwendet werden.

Die Lichtstreuung wird in zwei unterschiedlichen Streuprozessen unterschieden:

- (1) Rayleigh-Streuung: *elastische Streuung*, bei der die Energie des einfallenden bzw. absorbierten Photons gleich der Energie des gestreuten bzw. emittierten Photons ist. Somit handelt es sich hierbei um einen "zweistufigen" Prozess.
- (2) Raman-Streuung: *unelastische Streuung*, bei der die Energie des einfallenden bzw. absorbierten Photons ungleich der Energie des gestreuten bzw. emittierten Photons ist. Hierbei erfolgt die Emission des "gestreuten" Photons über einen Zwischenprozess. Dieser Übergang kann als virtueller Zustand verstanden werden. Somit handelt es sich hierbei um einen "dreistufigen" Prozess.

#### 2.3.1 Photolumineszenz

Photolumineszenz (PL) entsteht durch die Rekombination von einem Elektron-Loch-Paar, das zuvor durch ein Photon mit höherer Energie erzeugt wurde.



Abbildung 2.6: Schematische Darstellung der optischen Anregung mit PL-Emission, wobei  $E_1$  z. B. eine Phononenenergie ist.

D.h. die Elektronen fallen aus dem Leitungsband in das Valenzband, dadurch

werden Photonen emittiert (Abb. 2.6). Hierbei handelt es sich um inkohärentes Licht.

#### 2.3.2 Exzitonische Resonanzfluoreszenz

Resonanzfluoreszenz (RF) bezeichnet den Fall der resonanten Anregung. D. h. die Anregungsenergie des Lasers ist gleich der Emissionsenergie des bzw. der exzitonischen Zustände ( $E_{Laser} = E_2 - E_0$ , Abb. 2.7). Durch die resonante Anregung der Exzitonen wird der Prozeß der Rayleigh-Streuung verstärkt, daher wird in diesem Fall auch von resonanter Rayleigh-Streuung (RRS) gesprochen. Die Resonanzfluoreszenz setzt sich somit aus der RRS und der Photolumineszenz der Exzitonen zusammen.



Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der optischen resonanten Anregung mit RF-Emission  $E_{Laser} = E_2 - E_0$ .  $E_1$  entspricht z. B. einer Phononenenergie.

Durch die Probenbeschaffenheit gibt es Unordnungen, die zu inkohärenten- und kohärenten Anteilen in der SE bzw. RF führen. Der inkohärente Anteil entsteht hierbei durch unelastische Sreuung an Exzitonen und Phononen. Der kohärente Anteil entsteht durch die elastische Streuung des kohärenten Laserlichtes an den lokalisierten Quantenfilmexzitonen. Somit handelt es sich bei der RRS um den kohärenten und bei der Photolumineszenz um den inkohärenten Anteil der Resonanzfluoreszenz. Die jeweiligen kohärenten und inkohärenten Anteile der Resonanzfluoreszenz aus ungeordneten Quantenfilmen können mittels Speckle-Analyse ermittelt werden [21, 22], da die Resonanzfrequenzen der Quantenfilmexzitonen zufällig verteilt sind. Eine einfache Beschreibung liefert das Modell des *zufällig verteilten lokalisierten Oszillators (engl. random oscillator)*, wobei die Exzitonen in diesem Fall einem lokalisierten Oszillator gleichgesetzt werden. Bei der optischen Anregung mit Laserlicht, das die gleiche Frequenz wie die Resonanzfrequenz der Quantenfilmexzitonen besitzt, wird das Laserlicht elastisch gestreut. Die Phasenbeziehung dieses elastisch gestreuten Lichtes ist willkürlich aber fest im Bezug zum anregenden Laserlicht. Da die RRS rein statistischer Natur ist, gibt es verschiedene Streumoden, die konstruktiv und destruktiv interferieren. Dadurch entstehen wiederum richtungsabhängige Fluktuationen der Intensität, hierbei handelt es sich um Speckle, die nicht durch die Oberflächenrauhigkeit, sondern durch die elastische Streuung an lokalisierten Quantenfilmexzitonen entstehen.

Die Speckle-Muster stellen demzufolge den kohärenten Anteil der RF dar. Der inkohärente Anteil der RF ist der Untergrund der Speckle. Er wird auch als inkohärenter Offset der Speckle bezeichnet.

Bei der resonanten Anregung von einzelnen Atomen mit Erhöhung der Intensität tritt eine spektrale Aufspaltung der Resonanzfluoreszenz auf, das sogenannte *Mollow-Triplett* [23]. Dieses Verhalten sollten demzufolge auch die einzeln lokalisierten Exzitonen im Quantenfilm zeigen, wenn es sich bei den Quantenfilmexzitonen, wie bei den Atomen um ein Zwei-Niveau-System handelt. In [24, 25] konnte die *Mollow-Triplett*-Aufspaltung schon für einen Quantenpunkt im Mikroresonator beobachtet werden.

In [26] ergaben Messungen, dass die exzitonische RF aus Quantenfilmen bei großen Anregungsfeldstärken Seitenbanden aufweisen, die den *Mollow-Tripletts* von der RF von Zwei-Niveau-Atomen ähnlich sind. Nach [26] lässt sich die Rabi-Frequenz

$$\Omega_R = 2\hbar^{-1} |\mathbf{d}_{21} \mathbf{E}| \tag{2.24}$$

berechnen, wobei  $\mathbf{d}_{21}$  das gegebene Dipolmoment und  $\mathbf{E}$  die gegebene Feldstärke der Exzitonen ist. Der spektrale Abstand der Seitenbanden vom Rayleigh-Anteil entspricht der Rabi-Frequenz.

Allerdings ist in diesem Experiment über eine Vielzahl von unterschiedlich lokalisierten und resonant angeregten Exzitonen gemittelt worden. In [22] wurde beobachtet, dass es sich bei diesem Ergebnis offenbar um Mittelungseffekte handelt. Dies wird unter anderem in der vorliegenden Arbeit näher experimentell untersucht.

Im Gegensatz zum Zwei-Niveau-System wurde in [18] ein Modell auf Grundlage eines Drei-Niveau-Systems für die Beschreibung der RF von Quantenfilm- bzw. Quantenpunkt-Exzitonen vorgestellt, das allerdings noch ein zu einfaches Modell darstellt, da es unter anderem die Phononenstreuung bzw. Phononenwechselwirkung nicht berücksichtigt. Daher wird in der vorliegenden Arbeit auch die Phononenwechselwirkung experimentell näher untersucht.

### Kapitel 3

## Grundlagen der angewandten Mikroskopie

#### 3.1 Unendlich Mikroskopobjektiv

In der Mikroskopie wird unterschieden zwischen endlichen und unendlichen Mikroskopobjektiven. Die endlichen Mikroskopobjektive haben gleich am Ausgang eine Sammellinse, die mit dem Linsensystem eine feste Einheit bildet und in einem festen Abstand ein Bild erzeugt.

Unendlich- oder auch Fluoreszenz-Mikroskopobjektive besitzen eine variable Abbildungslinse, die sogenannte Tubus- oder auch Feldlinse. Der Vorteil hierbei ist, dass das Bildfeld erst ins Unendliche abgebildet wird, somit können z.B. Filter oder Strahlteiler zwischen Objektivausgang und Tubuslinse gestellt werden, ohne dass hierbei Abbildungsfehler entstehen. Ein weiterer Vorteil ist die flexible Einstellmöglichkeit des Vergrößerungsfaktors

$$\zeta = \frac{f_{TL}}{f_{MO}},\tag{3.1}$$

 $f_{MO}$  bezeichnet die Brennweite des Mikroskopobjektivs und  $f_{TL}$  die Brennweite der Tubuslinse. Für den halben Öffnungswinkel des Mikroskopobjektivs ( $\varphi$ ) und der Tubuslinse ( $\varphi'$ ) gilt hier die Abbesche Sinusbedingung [27, 28]

$$n \cdot \sin(\varphi) = \zeta \cdot n' \cdot \sin(\varphi'), \qquad (3.2)$$

wobei n die Brechzahl im Objektraum und n' die Brechzahl im Bildraum ist. Der Sinus des halben Öffnungswinkels multipliziert mit der Brechzahl wird auch als numerische Apertur bezeichnet

$$NA = \sin(\varphi) \cdot n. \tag{3.3}$$

Da das Mikroskopobjektiv aus mehreren unterschiedlichen Linsen besteht, liegt die abbildende Hauptebene vor dem vorderen Linsenscheitel. Im Fall der Nikon Tubuslinse, die aus zwei Linsen besteht liegt die abbildende Hauptebene H' hinter dem vorderen Linsenscheitel (Abb. 3.1). Die Brennweite  $f_{MO}$  sollte nicht mit dem Arbeitsabstand (auch Arbeitsdistanz -AD-, engl. working distance -WD-) verwechselt werden, da der Arbeitsabstand der Abstand des vorderen Linsenscheitels zum Objekt ist.



Abbildung 3.1: Nikon-Mikroskopobjektiv mit Tubuslinse, H und H' sind die Hauptebenen der Tubuslinse, die aus zwei Linsen besteht.

#### 3.2 Räumliche Auflösung

Zur Untersuchung der Unordnung in Quantenfilmen wird die hochauflösende Mikroskopie verwendet. Hierzu wird das Emissionslicht der lokalisierten Exzitonen, die in erster Nährung kleinsten Punkstrahlern entsprechen, räumlich oder spektral auf einem CCD-Detektor abgebildet. Da die Unordnung und die Ausdehnung der Exzitonen im nm Bereich liegen, ist daher für die Abbildung ein hochauflösendes Mikroskopobjektiv notwendig.

Die theoretisch erreichbare laterale Auflösungsgrenze bei der Abbildung eines einzelnen Punktes  $P = (x - x_0, y - y_0)$  aus dem Objektraum mit der Intensitätsverteilung  $I(x - x_0, y - y_0)$  in den Bildraum  $P' = (x' - x'_0, y' - y'_0)$  ist durch die Beugung des Lichtes an den Linsendurchmesser D (Aperturblende) bestimmt. Diese beugungsbegrenzte Auflösung kann durch die Punktübertragungsfunktion (engl. *point spread function*, *PSF*) oder auch Punktverwaschungsfunktion erhalten werden, die der lateralen Intensitätsverteilung eines Airy-Scheibchens (Beugungsscheibchens) entspricht (Abb. 3.2 (a)).

Die durch die Abbildung im Bildraum entstehende Intensitätsverteilung I'(x' -

#### 3.2. RÄUMLICHE AUFLÖSUNG

 $x_0',y-y_0')$  für ein Mikroskopobjektiv mit Tubuslinse lässt sich nach [29] als Besselfunktion erster Ordnung  $J_1$  darstellen

$$I'(x'-x'_{0},y'-y'_{0}) = I'_{0} \cdot \left(\frac{2J_{1}\left[\left(2\pi R'\sqrt{(x'-x'_{0})^{2}+(y'-y'_{0})^{2}}\right)/(\lambda f')\right]}{\left(2\pi R'\sqrt{(x'-x'_{0})^{2}+(y'-y'_{0})^{2}}\right)/(\lambda f')}\right)^{2}, \quad (3.4)$$

wobei R' der ausgeleuchtete Radius der Tubuslinse,  $\lambda$  die Wellenlänge des Punktstrahlers,  $f' = f_{TL}$  die Brennweite der Tubuslinse und  $I'_0$  die Ausgangs-Intensitätsamplitude ist. Bildseitig ist der Punkt P' und somit die laterale räumliche Auflösungsbegrenzung im Vergleich zum Objektseitigen Punkt P' um den Faktor  $\zeta$  (Gl. 3.1) vergrößert abgebildet.

Mit der Halbwertsbreite (FWHM) der Intensitätsverteilung  $I'(x' - x'_0) = I'(y' - y'_0)$  und unter Verwendung der Abbeschen Sinusbedingung (Gl. 3.2) lässt sich die laterale räumliche Auflösungsbegrenzung einnes einzelnen Punktes P mittels Abbildung eines Mikroskopobjektivs (NA) inklusive Tubuslinse (NA') ermitteln (Abb. 3.2 (a))

$$\Delta a(3dB) = \frac{0,51 \cdot \lambda}{NA}.$$
(3.5)

Die laterale Auflösungsbegrenzung zweier dicht beieinander liegenden Punkte (Abb. 3.2 (b) oben), gibt das *Rayleigh-Kriterium* an

$$\Delta a = \frac{0, 61 \cdot \lambda}{NA}.\tag{3.6}$$

D. h. die beiden Punkte P1 und P2 können gerade noch dann getrennt von einander aufgelöst werden, wenn das erste Minimum des ersten Beugungsbildes (I'(x1')) mit dem Maximum des zweiten Beugungsbildes (I'(x2')) übereinanderliegt (Abb. 3.2 (b) unten).

Die Auflösung hängt somit stark von der Emissionswellenlänge und der numerischen Apertur ab. In Abb. 3.3 ist das räumliche Auflösungsvermögen  $\Delta a$  für verschiedene handelsübliche Trocken-Mikroskopobjektive in Abhängigkeit von der Wellenlänge dargestellt. Wobei der rote Punkt auf der Linie für das im Experiment verwendete Nikon 100x (NA 0.8) Mikroskopobjektiv, die räumliche Auflösungsbegrenzung bei 812 nm von  $\Delta a = 620$  nm kennzeichnet. Bei der gleichen Wellenlänge beträgt  $\Delta a(3dB) = 518$  nm.

Eine Möglichkeit die räumliche Auflösungsgrenze zu verbessern, ist die Abbildung der einzelnen Bildpunkte (die den Beugungsscheibchen aus Gl. 3.4 entsprechen), auf eine geeignete Punktlochblende PB ( $PB < 0.25 \cdot (2 \cdot \Delta a)$ ). Dies wird in der Konfokalen Mikroskopie [30] genutzt, um hierdurch das umgebende Streulicht der umliegenden Punkte und die schwächeren Beugungsringe auszublenden bzw.





Abbildung 3.2: Mittels PSF bestimmte theoretische laterale räumliche Auflösungsgrenze. (a) Für einen einzelnen Punkt ( $\Delta a(3dB)$  räumliche Auflsungsgrenze). (b) Für zwei dicht beieinander stehende Punkte die noch gerade räumlich aufgelöst werden können ( $\Delta a$  Rayleigh-Kriterium).



Abbildung 3.3: Auflösungsvermögen unterschiedlicher Mikroskopobjektive. Der rote Punkt auf der Linie für das im Experiment verwendete Nikon 100x (NA 0.8) Mikroskopobjektiv, kennzeichnet die Auflösungsbegrenzung bei 812 nm von  $\Delta a = 620$  nm.

#### 3.2. RÄUMLICHE AUFLÖSUNG

zu unterdrücken. Dadurch erhöht sich das Kontrastverhältnis des einzeln abgebildeten Punktes zum Untergrund. Für diesen Fall reduziert sich das laterale räumliche Auflösungsvermögen auf

$$\Delta a_{\text{Konfokal}} = \frac{0, 37 \cdot \lambda}{NA}.$$
(3.7)

Für eine numerische Apertur von 0.8 und einer Wellenlänge von 812 nm beträgt  $\Delta a_{\text{Konfokal}} = 376$  nm.

Die angegebenen Kriterien für die laterale räumliche Auflösungsbegrenzung sind theoretisch berechnete Werte. Zusätzlich können sich noch Abbildungsfehler des optischen Linsensystems auf die Auflösung negativ bemerkbar machen. Außerdem hängt das Kontrastverhältnis (Signal zu Rauschverhältnis) des zu untersuchenden Objekts stark von der Qualität der Auflösung ab. D. h. wenn das zu untersuchende Objekt aus einzelnen weit entfernten leuchtenden Bildpunkten besteht, ist die räumliche Auflösung wesentlich besser, als bei einer sehr dichten Struktur, wie es z. B. bei biologischen Objekten der Fall ist. Aus diesem Grund ist es immer sinnvoll die tatsächlich wirkende Punktübertragungsfunktion experimentell zu bestimmen. Hierzu eignen sich besonders leuchtende Quantenpunkte, die in einer geringen räumlichen Dichte auf dem Probensubstrat verteilt sind.

Neben den Trockenobjektiven gibt es auch noch die Immersionsobjektive, bei denen sich zwischen der Probe und der Frontlinse eine Flüssigkeit (meistens Ol) befindet. Diese Immersionsflüssigkeit sorgt durch den höheren Brechungsindex für eine höhere NA und somit für eine bessere Auflösung. Allerdings können diese Objektive nicht für die Quantenfilmproben verwendet werden, da die Proben in einem Kryostat auf tiefe Temperaturen (bis zu 4 Kelvin) gekühlt werden. Daher werden auch meistens Trockenobjektive mit großem Arbeitsabstand verwendet, da die Probe im Kryostaten hinter einem Fenster an einem Kühlfinger befestigt ist. Da die numerische Apertur mit größerem Arbeitsabstand kleiner wird, ist hiermit auch die Auflösungsbegrenzung eingeschränkt. Es gibt zwar die Möglichkeit, bei Trockenobjektiven mit Immersionslinsen zu arbeiten, um die Auflösung zu erhöhen. Allerdings muss die Linse hierzu direkt auf der Probe befestigt werden, wodurch der Probenort sehr stark eingeschränkt ist. Zusätzlich entsteht durch die Immersionslinse bei der optischen Anregung Streulicht, dass bei der resonanten Anregung für eine Erhöhung des Rayleighpeaks sorgt und sich somit störend auf die Messung auswirkt.

#### 3.2.1 Abbildungsfehler durch Planplatte

Leider entspricht die tatsächliche Auflösungsgrenze eines Trockenobjektivs nicht der ideal berechneten Auflösungsbegrenzung, da bei der Abbildung Abbildungsfehler entstehen. Der wesentlichste Abbildungsfehler ist der Öffnungsfehler oder auch Längsaberration genannt. Auf die chromatischen, also Farbfehler wird hier nicht näher eingegangen, da mit monochromatischem Licht gearbeitet wird. Obwohl die Objektive bezüglich der Linse-Abbildungsfehler korrigiert sind, entstehen Öffnungsfehler durch das Fenster im Kryostaten. Dieser Fehler lässt sich nach [31] als Funktion der Längsaberration

$$\Delta s = d \cdot \left(\frac{1}{n} - \sqrt{\frac{1 - NA^2}{n^2 - NA^2}}\right),\tag{3.8}$$

darstellen, hierbei ist d die Dicke des Kryostatenfensters und n der Brechunsindex des Glases. Weiterhin lässt sich die maximale Dicke  $\Delta d$  der Planparallelplatte berechnen, bei der noch kein wesentlicher Öffnungsfehler entsteht

$$\Delta d = \frac{2 \cdot \lambda}{\left(\frac{1}{n} - \sqrt{\frac{1 - NA^2}{n^2 - NA^2}}\right) \cdot NA^2}.$$
(3.9)

In Abb. 3.4 sind die beiden Beziehungen in einem Graph dargestellt, wobei in (b) einmal mit dem Brechungsindex von Quarzglas ( $n_{QG}$  bei zwei unterschiedlichen Wellenlängen) und mit dem Brechungsindex von GaAs ( $n_{GaAs}$  bei einer Wellenlänge von 812 nm) gerechnet wurde. Es ist eine deutliche Abhängigkeit des Öffnungsfehlers von der NA zu erkennen. In Abb. 3.5 ist der Strahlengang achsnaher und achsferner Lichtstrahlen ausgehend von einem fokussierenden Mikroskopobjektiv (mit entsprechenden numerischen Aperturen) durch eine planparallele Glasplatte und des daraus entstehenden Öffnungsfehlers bzw. Längsaberration dargestellt. Die anderen Abbildungsfehler, die durch Linsen entstehen werden durch das Mikroskopobjektiv, dass hierzu aus mehreren unterschiedlichen Linsen besteht korrigiert. Zur vereinfachten Darstellung in Abb. 3.5 wurde das Mikroskopobjektiv einer dünnen "korrigierten" Linse gleichgesetzt.

In den Abbildungen 3.4 und 3.5 ist deutlich zu erkennen, dass der Öffnungsfehler für kleine numerische Aperturen keine wesentliche Bedeutung hat. Bei größeren numerischen Aperturen hat der Öffnungsfehler dagegen sehr große Auswirkungen, so dass die Brennweite der achsfernen Lichtstrahlen deutlich weiter von der idealen Brennweite des abbildenden optischen Systems entfernt ist. Die von der Planparallelplatte bzw. des Kryostatenfensters hervorgerufene Längsaberration führt demzufolge zu einer rotationssymmetrischen Zerstreuungsfigur um den paraxialen Bildpunkt und somit zu einer verschlechterten Auflösungsbegrenzung. Dieser Fehler wird im Zusammenhang mit der optischen Anregung durch ein Kryostatenfenster im allgemeinen vernachlässigt, obwohl die gängigen Kryostatenfenster eine Dicke zwischen 2 mm bis 4 mm besitzen. In der Biologie ist dieses Problem hinreichend durch die Deckglässchenkorrektur bekannt.



Abbildung 3.4: (a) Längsaberration (Öffnungsfehler) in Abhängigkeit der Dicke einer planparallelen Glasplatte (Kryostatenfenster); (b) zulässige Dicke einer Planparallelplatte (Kryostatenfenster) ohne bedeutende Wirkung eines Öffnungsfehlers



28 KAPITEL 3. GRUNDLAGEN DER ANGEWANDTEN MIKROSKOPIE

Abbildung 3.5: Strahlengang achsnaher und achsferner Lichtstrahlen (mit entsprechenden numerischen Aperturen) durch eine planparallele Glasplatte und daraus entstehenden Öffnungsfehlern (Längsaberration). MO: Mikroskopobjektiv (vereinfachte dünne Linse); KF: Kryostatenfenster bzw. Planparallelplatte; BP: idealer Brennpunkt; d: Dicke der Planplatte;  $\Delta$ s: Längsaberration
# Kapitel 4

# Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wird der experimentelle Aufbau und die verwendeten Apparaturen, die zur Messung der Ergebnisse der vorliegenden Arbeit benötigt wurden näher erläutert. Insbesondere der  $4\pi$ -Mikroskopkryostat, der in dieser Arbeit entstanden ist und zum Gelingen der Ergebnisse geführt hat, wird in Abschnitt 4.2 ausführlich dargestellt.

## 4.1 Prinzipieller Aufbau

In Abb. 4.2 ist der prinzipielle Aufbau des Versuches schematisch dargestellt. Als Anregungslaser wurden je nach der Dicke des GaAs-Quantenfilms zwei Ein-Moden-Laser (Abschitt 4.5) mit einer Wellenlänge von  $\lambda_{L1} = 765$  nm bis 800 nm und  $\lambda_{L2} = 800$  nm bis 855 nm mit einer Linienbreite  $\Delta\lambda$  von 2.2 fm zur resonanten Anregung verwendet. Der Laserstrahl wurde über Spiegel zu einem Linsensystem welches zur Aufweitung des Laserstrahls diente zur Anregungslinse L3 geführt. Diese fokussiert den Laserstrahl auf die Probe und bestimmt somit die Größe der Anregungsfläche (Abschnitt 4.1.1). Damit sich die Probe nicht durch den Anregungslaser zu stark erwärmt, wurden zur Intensitätsabschwächung Grauglasfilter und ein Chopper verwendet. Die Probe wurde in einem speziellen Helium-Durchfluss-4 $\pi$ -Mikroskopkryostat gehaltert und mit flüssigem Helium auf eine Temperatur von bis zu 4.5 Kelvin gekühlt(Abschnitt 4.2).

Damit die gesamte Laserleistung in die Probe gelangt, muss der Laserstrahl unter dem Brewsterwinkel

$$\Theta_B = \arctan\left(\frac{n_2}{n_1}\right) = \arctan\left(\frac{3,67}{1}\right) = 75^\circ, \tag{4.1}$$

auf die Probe treffen (mit  $n_1 = 1$ , Brechungsindex von Vakuum und  $n_2 = 3,67$ , Brechungsindex von GaAs, bei  $\lambda = 811$  nm), da sonst zu viel Licht an der Probenoberfäche reflektiert wird und sich die Intensität des Rayleighpeaks erhöhen würde. Das aus der Probe emittierte Licht wurde mit einem hochauflösenden Mikroskopobjektiv der Firma Nikon eingesammelt und parallelisiert (kollimiert).

Damit so wenig wie möglich an Intensität des kollimierten Lichts verloren geht, wurde ein Linsenaufbau (L5, L6, L7) nach dem Köhlerschen Beleuchtungsprinzip [31] berechnet und aufgebaut. Hierzu ist in unserer Arbeitsgruppe in Zusammenarbeit mit Martin Borm ein mathematisches Programm zur Berechnung der optimalen Linsenkonfiguration und Abbildungsqualität in Bezug auf maximale Probenemissions-Intensitätsausbeute entstanden.

Zur Untersuchung einzelner "Emissionsflecken" diente wahlweise eine Punktlochblende (engl. Pinhole) in der Zwischenabbildung. Für die räumliche Detektion der Resonanzfluoreszenz wurde eine peltiergekühlte CCD Kamera mit einer Pixelgröße von 6.45  $\mu m$  x 6.45  $\mu m$  verwendet. Zur spektralen Detektion diente ein hochauflösendes Spektrometer SPEX 1250M (Abshnitt 4.4 und 4.3).

#### 4.1.1 Strahlaufweitung und Fokussierung

Um eine möglichst kleine Anregungsfläche mit einer hohen Anregungsdichte zu erhalten, wird im allgemeinen eine kurzbrennweitige Sammellinse benötigt.



Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Größe der Anregungsfläche W' in Abhängigkeit des Laserstrahldurchmessers W.

Da allerdings in unserem Fall die Brennweite durch den Durchmesser des  $4\pi$ -Mikroskopkryostaten vorgegeben war, musste der Strahl aufgeweitet werden. Der Durchmesser W' der Anregungsfläche kann durch die Gaußstrahl-Optik berechnet werden

$$W' = 4 \cdot \frac{\lambda \cdot f}{\pi \cdot W} , \qquad (4.2)$$

mit W dem Durchmesser des Laserstrahls. Somit wird der Durchmesser der Anregungsfläche kleiner, je größer der Durchmesser des Laserstrahls gewählt wird (Abb. 4.1). Bei  $\lambda = 812$  nm,  $f_{L3} = 160$  mm und W = 18 mm ist  $W' = 9.2 \ \mu m$ .



MO1 und MO2: Mikroskopobjektiv Nikon CFI LU PLAN EPI ELWD 100X NA = 0.80 f = 2mm; L4: Nikon-Tubuslinse (f = 200 mm); L5, L6 und L7: Köhler-Linsen-System; L8 und L9: Abbildungslinse (f =Laser); L1 und L2: Linsensystem zur Aufweitung des Laserstrahls; L3: Anregungslinse (f = 160 mm); 400 mm); CCD: 6,45  $\mu$ m CCD-Sensor; CCD\*: 26  $\mu$ m CCD-Sensor.

### 4.2 $4\pi$ -Mikroskop-Kryostat

Um den Anforderungen der hohen räumlichen Auflösung gerecht zu werden, mussten Mikroskopobjektive mit einer hohen numerischen Apertur verwendet werden. Hierfür wurden Unendlich-Objektive der Firma Nikon (CFI LU Plan Epi ELWD 100X) mit einer Brennweite  $f_{Nikon}$  von 2 mm, NA = 0.8 und einem Arbeitsabstand von 3.5 mm verwendet. Die Nikon Tubuslinse hat eine Brennweite  $f_{TL}$  von 200 mm, daraus ergibt sich nach Gl. 3.1 eine Vergrößerung  $\zeta$  um den Faktor 100 mit einer Auflösungsbegrenzung  $\Delta a$  von 620 nm (nach Gl. 3.6).

Da der Arbeitsabstand sehr klein in Bezug auf den Abstand von herkömmlichen Kryostaten-Fenstern zur Probe ist, gab es nur die Möglichkeit die Mikroskopobjektive in den Kryostaten zu installieren. Gleichzeitig würde hiermit das Problem des Öffnungsfehlers (Abschnitt 3.2 Gl. 3.8 und 3.9) bezugnehmend auf die Dicke des Kryostatenfensters elimeniert werden. Allerdings sind die kommerziellen Objektive nur für normale Luftdruckbedingungen gebaut. Im Kryostat ist jedoch ein Isoliervakuum von ca.  $10^{-7}$  mbar zur Abschirmung der Wärmeübertragung vorhanden. Damit beim Evakuieren nicht ein Überdruck zwischen den einzelnen Linsen im Objektiv entsteht und somit die optischen Eigenschaften verändern würden, musste sichergestellt werden, dass zwischen den Linsen eine luftdurchlässige Verbindung besteht. Hierzu wurden Röntgenaufnahmen und Testmessungen in einer Vakuumkammer durchgeführt. Es stellte sich heraus, dass die Linsen mit einem Kitt, der feine Kapillare besitzt eingesetzt sind. Durch die Kapillaren kann das Objektiv innerhalb einer Woche evakuiert werden, somit bleiben die spezifischen optischen Eigenschaften erhalten.

Desweiteren sollte der Kryostat für Korrelationsmessungen gleichzeitig in "Reflektion" und "Transmission" betrieben werden können. Dazu mussten zwei Mikroskopobjektive im Kryostaten angebracht werden und sie mussten unabhängig voneinander in x,y,z-Richtung justierbar sein. Die Probe musste ebenfalls in x,y-Richtung verstellbar sein, damit unterschiedliche Probenorte während der Messung angefahren werden konnten. Da mit einer 100-fachen optischen Vergrößerung gearbeitet wird, muss der Kryostat auch sehr stabil gegenüber Vibrationen sein, da sonst das "Bild wackelt".

Für diese anspruchsvollen Anforderungen wurde im ersten Schritt zusammen mit der Firma CRYO VAC ein  $4\pi$ -Mikroskop-Kryostat entwickelt und gebaut. Allerdings hat sich bei den ersten Messungen gezeigt, dass der Kryostat noch einige starke Konstruktionsfehler hatte. Daher musste dieser im zweiten Schritt zusammen mit unserer mechanischen Werkstatt komplett überarbeitet werden, damit unsere hohen Anforderungen erfüllt wurden. Im dritten Schritt konnte ebenfalls mit unserer mechanischen Werkstatt der Kryostat bezüglich der seitlichen Anregung von oben wesentlich erweitert werden. Diese Erweiterung ist für die resonante Anregung von Micropillar-Proben (Abschnitt 7.1) notwendig.

In Abb. 4.3 ist der letzte Stand des  $4\pi$ -Mikroskop-Kryostaten dargestellt. Die seitliche resonante Anregung der Quantenfilmprobe geschieht über den Brew-



Abbildung 4.3: Schematischer Aufbau des  $4\pi$ -Mikroskopkryostaten. GA: Glasfaser-Auskopplung; ST: 50/50-Strahlteilerwürfel; CCD: CCD-Kamera; PD: Photodiode; MO\*: Mikroskopobjektiv Mitutoyo M Plan Apo SL 50x; MO1 und MO2: Mikroskopobjektiv Nikon CFI LU PLAN EPI ELWD 100x; x, y, z-Mikroskopobjektivversteller; PH: Probenhalter; DK: Durchflusskryostat;  $\Delta x, y$ -Probenversteller; K: Proben-Kippversteller. sterwinkel (Abschnitt 4.1) durch ein großes seitliches Fenster. Gegenüber liegt ein identisches Fenster, durch das die Lage der Anregungsfläche auf der Probe beobachtet werden kann. Die beiden Nikon Mikroskopobjektive sind mittels Piezo-Verstelltischen in 50 nm Schritten in x,y,z-Richtung verstellbar. Die Probe befindet sich auf einer Probenhalterung, die auf dem eigentlichen Durchflusskryostaten befestigt ist. Dieser Durchflusskryostat und somit auch die Probe befinden sich auf einem motorisierten Lineartisch für die Verstellung in die x-Richtung und einem ebenfalls motorisierten Hubtisch für die y-Richtung. Gleichzeitig kann die Probe über einen internen Kippmechanismus mittels einer Mikrometerschraube von außen gekippt werden, um dadurch die eventuelle Schräglage der Probe auszugleichen.

Zur Anregung der Micropillar-Proben (Kapitel 7) dient die Glasfaserauskopplung (GA) und das Mikroskopobjektiv (MO\*) Mitutoyo M Plan Apo SL 50x. Über den 50/50 Strahlteilerwürfel (ST) kann gleichzeitig angeregt und die Anregungsleistung über eine Photodiode gemessen werden. Desweiteren kann auch gleichzeitig über eine CCD-Kamera der Anregungsort beobachtet werden.

### 4.2.1 Temperaturabweichung

Da die Probe ca. 30 mm von dem eigentlichen Kühlfinger entfernt ist, hat die Wärmestrahlung der Mikroskopobjektive und die großen Fenster des Kryostaten eine geringe Auswirkung auf die konkrete Probentemperatur. Um diesen Einfluss zu messen, wurde anstelle der Probe eine Si-Temperaturdiode befestigt und somit die korrekte Probentemperatur bestimmt.



Abbildung 4.4: Temperaturunterschied Kaltfinger- zur Probentemperatur.

In Abb. 4.4 ist die Abweichung der Kühlfingertemperatur  $T_K$  und der tatsächli-

chen Probentemperatur  $T_P$  von der eingestellten Regeltemperatur bzw. Solltemperatur  $T_S$  dargestellt. Bei tiefen Temperaturen ist die Abweichung der Probentemperatur zur Regeltemperatur am größten. Mit steigender Temperatur nimmt die Differenz kontinuierlich ab. Bei einer Temperatur von 10 Kelvin entspricht die Probentemperatur der Kaltfingertemperatur. Dieses Verhalten ist bei der Angabe der Temperatur für die in dieser Arbeit erzielten Ergebnisse zu beachten, da hier immer die Regeltemperatur ( $T_S = T_K$ ) angegeben wird. Allerdings ist die Abweichung  $\Delta T_P$  von 1 K bei der mit diesem Kryostaten zu erreichenden tiefsten Temperatur  $T_K$  von 4.5 K sehr gering im Vergleich zu herkömmlichen Durchfluss-Mikroskopkryostaten.

# 4.3 CCD Detektoren

Die räumliche Auflösung hängt nicht nur von den optischen Bauelementen ab, sondern auch von dem Auflösungsvermögen der Detektoren. Bei CCD-Sensoren ist hierfür die Pixelgröße, die spektrale Empfindlichkeit (Quantenausbeute) und das Dunkelrauschen ausschlaggebend. In den vorliegenden Experimenten wurde daher eine CCD-Kamera verwendet, die normalerweise nur in der Astronomie benutzt wird, da dort die gleichen Anforderungen gestellt werden. Die *SXV-H9* ist eine Monochrome CCD-Kamera mit einer Peltierkühlung von 253 K, um das Dunkelrauschen zu minimieren und somit das Signal zu Rauschverhältnis

$$\mathcal{P} = \frac{\text{Nutzsignal}}{\text{Rauschsignal}},\tag{4.3}$$

zu erhöhen. Der eigentliche CCD-Sensor ist der ICX285 mit einer Größe von 9 mm x 6.7 mm. Die Pixelgröße beträgt 6.45  $\mu$ m x 6.45  $\mu$ m. Die Quantenausbeute bzw. Quanteneffizienz zwischen 750 nm und 950 nm beträgt 35 % bis 10 %. Eine weitere sehr wichtige Größe ist die Farbtiefe, diese ist ein Maß für die Intensitätsauflösung. D.h. je größer die Farbtiefe ist, desto deutlicher sind die Intensitätsabstufungen zwischen einzelnen Bildpunkten in der Höhen-Intensitätsdarstellung zu unterscheiden (Abschnitt 5.1). Die Farbtiefe gibt somit die Auflösungsbegrenzung für die Intensität an. Die *SXV-H9* Kamera hat eine Farbtiefe von 16 bit, dies entspricht einer maximalen Intensität von 2<sup>16</sup> also 65536 in willkürlichen Einheiten.

## 4.4 Spektrometer

Für die spektralen Untersuchungen wurde ein hochauflösendes Czerny-Turner-Spektrometer SPEX1250M der Firma Jobin Yvon verwendet. Das holographische Reflexionsgitter (Größe: 120 mm x 140 x 20 mm) hat 1480 Furchen pro

mm und besitzt eine reflektierende Beschichtung aus Gold. Die Spiegel mit einer Brennweite von 1250 mm sind ebenfalls mit Gold beschichtet. Daher ist die Effizienz besonders hoch für Nah-Infrarot-Anwendungen. Das Spektrometer wird wahlweise mit zwei unterschiedlichen CCD-Detektoren betrieben. Die  $CCD^*$  ist eine stickstoffgekühlte Kamera mit einer Pixelgröße von 26  $\mu$ m x 26  $\mu$ m und daher sehr lichtsensitiv. Die CCD entspricht der Kamera wie in Abschnitt 4.3 mit einer Pixelgröße von  $6.45 \ \mu m \ge 6.45 \ \mu m$ . Das spektrale Auflösevermögen hängt im Wesentlichen von der Ausleuchtung des Gitters und der Breite des Eintrittspaltes ab. Es hängt aber auch vom räumlichen Auflösungsvermögen des Detektors ab, welches durch die Pixelgröße vorgegeben ist. Die spektrale Auflösungsbegrenzung ist mit der  $CCD^*$  24  $\mu eV$  pro Pixel und mit der CCD 6  $\mu eV$  pro Pixel festgelegt. Da die Quantenausbeute und das Signal-zu-Rauschverhältnis der CCD\* höher ist, mussten teilweise die Messungen mit dieser Kamera durchgeführt werden, da ansonsten die Integrationszeit zu lange gewesen wäre. Bei Signalen mit höherer Emissionsintensität kam die CCD Kamera mit der besseren spektralen Auflösung zum Einsatz.

# 4.5 Verwendeter Laser (Ein-Moden-Laser)

Zur optischen Anregung der Quantenfilme kamen zwei Ein-Moden-Laser oder auch Einzelfrequenzlaser (engl. Single Frequency Laser) in Littrow-Anordnung (Abb. 4.5) zum Einsatz.



Abbildung 4.5: Schematischer Aufbau eines Ein-Moden-Lasers in Littrow-Anordnung; LD: Laserdiode, Kollimatorlinse

Das spektral breite Licht der Laserdiode trifft auf ein Blazegitter (Littrow-Gitter [32]). Das Littrow-Gitter bewirkt, dass das Licht der 1. Ordnung wieder zurück

zur Laserdiode reflektiert und die 0. Ordnung "ausgekoppelt" wird. Da die Laserdiode an der Auskoppeloberfläche entspiegelt ist, bilden die Laserdiode und das Littrow-Gitter einen Resonator. In diesem interferiert die Welle mit sich selbst konstruktiv. Nach [33] ist der Gangunterschied

$$n \cdot l = k \cdot \frac{\lambda_k}{2}, \qquad k = 1, 2, 3, \dots$$
 (4.4)

wobe<br/>inder Brechungsindex von Luft, l die Resonatorlänge und<br/>  $n\cdot l$  die optische Weglänge ist.

Die Wellenlängen  $\lambda_k$  werden auch als Resonatormoden (longitudinale Resonatormoden) bezeichnet, da es sich bei den Wellen im Resonator um stehende Wellen handelt. Die Frequenzen zu den Resonatormoden sind nach [33]

$$f_k = k \cdot \frac{c}{2 \cdot n \cdot L},\tag{4.5}$$

wobei c die Lichtgeschwindigkeit ist.

Durch die Littrow-Anordnung wird nur eine Mode verstärkt. Dieses Laserlicht ist somit spektral sehr schmalbandig.

Da die Auskoppeloberfläche der Laserdiode nicht 100%-ig entspiegelt ist, kann ein Teil des Lichtes zurück in die Laserdiode reflektiert werden. Dadurch können Fabry-Perot-Moden entstehen, die den Ein-Moden-Betrieb des Lasers stören. Dieser instabile Effekt macht sich durch abrupte Modensprünge des Lasers bemerkbar.

Das Littrow-Gitter ist an eine Stellschraube gekoppelt. Mit dieser wird das Gitter und somit die gewünschte Wellenlänge grob eingestellt. Zur feineren Abstimmung der Wellenlänge dient ein Piezokristall, der sich hinter dem Littrow-Gitter befindet. Der modensprungfreie Durchstimmbereich hängt von der Wellenlänge und vom Injektionsstrom ab und liegt zwischen 10 GHz und 50 GHz. Je gößer der Durchstimmbereich ist, desto stärker schwankt die Ausgangsleistung, da diese vom Injektionsstrom abhängt. Zusätzlich kann die Änderung der Lasertemperatur zur Wellenlängenabstimmung verwendet werden, was ebenfalls Auswirkungen auf die Laserleistung hat.

Um sämtliche Quantenfilmschichten der verwendeten Probe #1294 anzuregen, wäre ein abstimmbares Lasersystem von 700 nm bis 813 nm notwendig. Bis jetzt gibt es allerdings keine einzelne Laserdiode, die diesen Wellenlängenbereich abdeckt. Daher kamen zwei *DL Pro* Laserköpfe und eine Steuereinheit der Firma TOPTICA Photonics AG zum Einsatz. Somit konnte mit dem *DL pro 780* der Wellenlängenbereich von 765 nm bis 800 nm für die resonante Anregung der 6.3 nm bis 9.9 nm Quantenfilme verwendet werden. Für die resonante Anregung der 12.2 nm bis 19.8 nm Quantenfilme kam der DL Pro 850 mit seinem Wellenlängenbereich von 800 nm bis 855 nm zum Einsatz. Die beiden Laserstrahlen konnten

jeweils wahlweise über einen Klappspiegel in den Anregungsstrahlengang eingekoppelt werden.

# Kapitel 5

# Untersuchungen an Quantenfilmexzitonen

# 5.1 Anregungsfläche

Der Laserstrahl wird durch eine Linse auf die Probe fokussiert. Je nach verwendeter Linse variiert die Anregungsfläche auf der Probe (Abschnitt 4.1.1). Wegen des Brewster-Winkels wird mit einem sehr schrägen und somit streifenden Lichtstrahl auf die Probe fokussiert, daraus resultiert eine elliptische Anregungsfläche.



Abbildung 5.1: (a) Anregungsfläche bei resonanter Anregung des 19.8 nm QWs der Probe #1294 bei einer Temperatur von 8 Kelvin. (b) Gaußanpassung der Untergrundverteilung. (c) RF Verteilung nach Abzug des angepassten Untergrundes. (d) Vergrößerter Ausschnitt von c.

Die Leistung des Anregungslasers ist gaußförmig verteilt, dadurch unterliegt die Emissions-Intensitätsverteilung ebenfalls einer Gaußverteilung. Zusätzlich kommen auch noch PL Beiträge der anderen Quantenfilme, insbesondere der bulk-Struktur zum Tragen. Diese beiden Einflüsse bilden einen Untergrund (engl. offset) und bewirken somit einen schwachen Kontrast der resonant angeregten punktförmigen exzitonischen Zustände des jeweiligen Quantenfilms (Abb. 5.1 (a)). Eine Kontrasterhöhung kann durch den Abzug des Untergrunds erzielt werden, hierzu wurde eine zweidimensionale elliptische Gaußfläche an die Messdaten angepasst (Abb. 5.1 (b)) und von diesen abgezogen (Abb. 5.1 (c)).

Um die Verteilung der punktförmigen Emitter ("Leuchtflecke") noch deutlicher zu machen, kann mit Hilfe der Intensität ein Höhenprofil erstellt werden, das quasi einer dritten Dimension der Auflösung entspricht.



Abbildung 5.2: Räumliche Intensitätsverteilung der korrigierten Anregungsfläche bei einer Temperatur von 8 Kelvin. Die Spitzen entsprechen einzeln angeregten exzitonischen Zuständen.

In Abb. 5.2 sind deutlich unterscheidbare Intensitätsverteilungen zu sehen. Die Gründe hierfür sind:

- Anregungsleistung: Da das Anregungsprofil des Lasers zentral die maximale Leistung hat und nach außen hin abnimmt, werden somit die Bereiche der Anregungsfläche mit unterschiedlicher Leistung angeregt. Das hat zur Folge, dass die Emission am Rand schwächer ist, als in der Mitte der Anregungsfläche.
- resonante Anregung: Die exzitonischen Zustände sind durch die Grenzflächenrauhigkeit räumlich unterschiedlich lokalisiert. D.h. sie befinden sich

#### 5.1. ANREGUNGSFLÄCHE

in unterschiedlich breiten Potentialtöpfen, dadurch besitzen sie auch verschiedene resonante Energien (Abschnitt 5.3). Bei einer festen Anregungsenergie ist somit die Emissionsintensität der Zustände unterschiedlich.

Ein Problem, das auch auftreten kann, sind Staubkörner auf der Probenoberfläche. Diese streuen das Laserlicht und haben somit eine hohe Intensität im Gegensatz zu den anderen Intensitäts-Punkten, dadurch sind diese aber auch gut zu unterscheiden. Da der Probenort während der Messung verstellt werden konnte, war es möglich, Stellen zu suchen, wo keine Staubkörner einen störenden Einfluss auf die Messungen hatten.

Die in Abb. 5.2 angegebenen Längendimensionen entsprechen nicht der "tatsächlichen" Größe der Anregungsfläche, da zur besseren Darstellung die seitlichen Ränder der Abbildung außerhalb der Anregungsfläche liegen. Die Größe der Anregungsfläche ergibt sich durch die beiden Halbwertsbreiten (FWHM) der angepassten Gaußkurven in x- und y-Richtung (Abb. 5.1) und beträgt

$$\underline{\underline{A}} = \pi \cdot \frac{x}{2} \cdot \frac{y}{2} = \pi \cdot \frac{28\mu m}{2} \cdot \frac{13\mu m}{2} = \underline{\underline{286\mu m^2}},\tag{5.1}$$

wobei x und y die Halbwertsbreiten der angepassten Gaußkurve für die entsprechende Richtung der Anregungsfläche sind.

#### 5.1.1 Anregungsdichte

Die Anregungsdichte bzw. Anregungsflächendichte hängt wesentlich von der Laserleistung  $P_{Laser}$  und der Größe der Anregungsfläche ab

$$n = \frac{P_{Laser}}{h \cdot \nu_{Laser} \cdot A} \cdot \tau \cdot \underbrace{[1 - \exp(-\alpha_0 \cdot L_z)]}_{\sim I_{INT}},$$
(5.2)

mit h dem Plankschen Wirkungsquantum,  $\nu_{Laser}$  der Laserfrequenz,  $\tau$  der exzitonischen Lebensdauer,  $\alpha_0$  dem Absorptionskoeffizienten und  $L_z$  der Quantenfilmschichtdicke.

Da der Absorptionskoeffizient temperaturabhängig ist und es trotz der Brewstergeometrie zu Reflexionen des Laserlichtes an der Probenoberfläche kommt, kann der Term  $[1 - \exp(-\alpha_0 \cdot L_z)]$  durch die normierte integrale Intensität  $I_{INT}$  speziell unter den experimentellen Bedingungen wiedergegeben werden. Die integrale Intensität ist die Fläche unter dem Emissionsspektrum und ist somit ein Maß für die tatsächliche Absorption.

# 5.2 Photolumineszenz

Um die Resonanzenergien der unterschiedlichen Quantenfilme zu bestimmen, wurden als erstes die Photolumineszenz-Spektren gemessen. Zur Anregung der Probe diente ein HeNe-Laser mit einer Energie von 1.96 eV. Die resultierenden Spektren sind in Abschnitt 2.2.1 Abbildung 2.3 dargestellt. Mit Abnahme der Quantenfilmschichtdicke ist eine deutliche Linienverbreiterung  $\Gamma_{1s}$  der PL zu sehen. Zur genaueren Bestimmung des 1s-, 2s und Bi-Exzitons (XX) sind für fünf Quantenfilme die Intensitäten in Abb. 5.3 logarithmisch dargestellt.



Abbildung 5.3: Photolumineszenz für fünf unterschiedliche Quantenfilme der Probe #1294. Die PL-Intensität ist zur deutlicheren Darstellung logarithmisch aufgetragen.

QW	$E_{1s}$	$E_{2s} - E_{1s}$	$E_{XX} - E_{1s}$	$\Gamma_{1s}$
19.8 nm	$1.52595 \ eV$	+ 4.49  meV	- 1.02 meV	0.17  meV
15.2 nm	1.53387  eV	+ 7.13 meV	- 1.15 meV	0.34  meV
12.2 nm	$1.54450 \ eV$	(+ 7.65  meV)	- 1.36 meV	0.43  meV
9.9 nm	$1.55879 \ {\rm eV}$	(+ 8.22  meV)	(- 1.44 meV)	0.88  meV
8.3 nm	1.57561  eV	(+ 9.61  meV)	(- 2.09 meV)	1.38 meV

Tabelle 4.1: Relative Abstände für das 2s- und XX-Exziton zum 1s-Exziton für die fünf Quantenfilme der Probe #1294 bei T = 5 Kelvin.

Der Abstand zwischen dem 2s- und XX-Exziton sind jeweils in Bezug auf das 1s-Exziton in Tabelle 4.1 angegeben. Bei optischer Anregung hat sich im Experiment gezeigt, daß der Abstand zwischen dem 1s-Exziton und dem XX-Exziton von der Leistung abhängig ist. D.h. mit zunehmender Anregungsleistung, nimmt auch der Abstand zu. Dies gilt aber nur für den Abstand zwischen dem 1s- und XX-Exziton. Die anderen Abstände bleiben konstant.

#### 5.2.1 Temperaturabhängigkeit der Photolumineszenz

Die Temperaturabhängigkeit der PL konnte mit dem Einmoden-Laser bei einer Energie von 1.64 eV untersucht werden. In Abb. 5.4 sind die Resultate für den 19.8 nm und 15.2 nm QW dargestellt.



Abbildung 5.4: Photolumineszenz der bulk-Struktur, den 19.8 nm und 15.2 nm QW in Abhängigkeit von der Probentemperatur bei gleichbleibender Anregungsenergie  $E_{Laser} = 1.64$  eV und Anregungsleistung  $P_{Laser} = 5 \ \mu$ W.

Bei kleinen Temperaturen (T  $\leq 12$  K) ist kein Unterschied in den Spektren zu erkennen. Bei Temperaturen größer als 12 K ist eine deutliche Linienverbreiterung des 1s- und 2s-Exzitons und eine Linienverschiebung zu niedrigen Energien bei zunehmender Temperatur zu beobachten. Gleichzeitig nimmt auch die Emissionsintensität des 2s Exzitons mit steigender Temperatur zu.

In Abb. 5.5 ist die aus dem Experiment bestimmten temperaturabhängigen PL-Linienverbreiterungen des 1s Exzitons für unterschiedliche Quantenfilme der Probe #1294 dargestellt.



Abbildung 5.5: Messwerte der PL-Linienbreite in Abhängigkeit von der Probentemperatur mit angepasster Geraden.

QW	$\Gamma_{5K}$	$\Gamma_{85K}$	$\Delta \Gamma = \Gamma_{85K} - \Gamma_{5K}$
19.8 nm	0.14  meV	0.47  meV	0.33  meV
15.2 nm	0.32  meV	0.58  meV	0.26  meV
12.2 nm	0.38  meV	0.69  meV	0.31  meV
9.9 nm	0.90  meV	1.18  meV	0.28  meV
8.3 nm	1.39  meV	1.97  meV	0.58  meV

Tabelle 4.2: Differenz der Linienverbreiterung von 5 K auf 85 K für unterschiedliche QW-Dicken der Probe #1294.

Die Messdaten lassen sich gut mit einer Geraden angleichen. Hierdurch ist eine kleine Streuung der Messdaten deutlich zu erkennen. Eine besonders signifikante Streuung der Linienbreiten ist bei dem 8.3 nm QW zu beobachten. Im Gegensatz zu den dickeren Quantenfilmen scheint auch der Anstieg der Geraden größer zu sein. In der Tabelle 4.2 sind hierzu für die minimale und die maximale Temperatur die Werte für die Linienbreite aus der Geraden und deren Differenzen  $\Delta\Gamma$  gegenübergestellt. Bei den 9.9 nm bis 19.8 nm Quantenfilmen liegt die Differenz  $\Delta\Gamma$  um 0.30 meV. Bei dem 8.3 nm QW beträgt  $\Delta\Gamma$  0.58 meV, daraus ergibt sich eine Abweichung zu den anderen QWs von 0.28 meV. Offensichtlich haben ab dieser Schichtdicke die starken Unordnungseffekte durch Grenzflächenrauhigkeit

#### 5.2. PHOTOLUMINESZENZ

einen größeren Einfluss.

Die Energieverschiebung der PL-Linie hängt im Wesentlichen mit der Bandlücke zusammen, da diese mit zunehmender Temperatur kleiner wird. Weitere Beiträge kommen von der Entropie und den Phononen. Eine genaue Beschreibung und Bestimmung dieser Energieverschiebung in Abhängigkeit von der Temperatur bietet das Pässler-Modell [34]

$$E(T) = E_g(0 \text{ K}) - \frac{\alpha \cdot \Theta_p}{2} \cdot \left[\sqrt[p]{1 + \left(\frac{2 \cdot T}{\Theta_p}\right)^p} - 1\right].$$
 (5.3)

Hierbei ist  $E_g(0 \text{ K})$  die Gapenergie bei einer Temperatur von 0 K,  $\alpha$  ist der Hochtemperaturgrenzwert der Entropie ( $\alpha \equiv S(T \to \infty)$ ),  $\Theta_p$  ist die gemittelte oder auch effektive Phononentemperatur und p ist ein materialspezifischer Parameter.

Das Modell ließ sich sehr gut mit den Werten für  $\alpha$ ,  $\Theta_p$  und p aus [34] an die experimentellen Daten anpassen (Abb. 5.6). Es mussten lediglich die Werte  $E_g(0 \text{ K})$  ermittelt werden.

In Abb. 5.7 sind diese Werte in Abhängigkeit von der QW-Dicke dargestellt. Mit abnehmender Quantenfilmdicke steigt  $E_g(0 \text{ K})$  sehr steil an. Mit zunehmender Quantenfilmdicke nähert sich  $E_g(0 \text{ K})$  dem Wert von 1.522 eV an. Über 50 nm bleibt der Wert für  $E_g(0 \text{ K})$  konstant und entspricht der Bandlückenenergie  $E_{g,3D}(T = 0 \text{ K})$  von Volumenhalbleitern. Dieses Verhalten entspricht genau der Quantisierungsbedingung für Quantenfilme, bezüglich der De-Broglie-Wellenlänge (Abschnitt 2.2).

In der Literatur [5, 34] ist für die Bandlückenenergie  $E_{g,3D,GaAs}(T = 0 \text{ K})$  der Wert von 1.519 eV angegeben. Im Vergleich mit dem ermittelten Wert von 1.522 eV,ergibt dies eine Abweichung von 30 meV. Eine Ursache hierfür ist die Mittelung der unterschiedlich lokalisierten Exzitonen. D.h. die Exzitonen haben durch die Lokalisierung unterschiedliche Energien. Da bei der PL über einen größeren Ort die Emissionsenergie gemittelt wird, verbreitert sich die Linienbreite und der Zentrale Peak, was zur ungenauen Bestimmung dieser Werte führt. Bei abnehmender Quantenfilmdicke wird dieser Effekt noch stärker. Daher ist es sinvoll, nur einzelne Insellokalisierungen von Exzitonen zu untersuchen, da hier die Mittelungseffekte reduziert sind oder gar wegfallen.



Abbildung 5.6: Messwerte der Energieverschiebung mit Anpassung des Pässler-Modells in Abhängigkeit von der Temperatur, für unterschiedliche QWs der Probe #1294.



Abbildung 5.7: Der ermittelte  $E_g(T = 0)$  Parameter für die Anpassung des Pässler-Modells an die experimentellen Daten in Abhängigkeit von der QW-Schichtdicke. Die rote Linie ist der Grenzwert  $E_{g,3D}$  für die Gapenergie des Volumenhalbleiters.

#### 5.3. RESONANZFLUORESZENZ

### 5.3 Resonanzfluoreszenz

Um räumliche Resonanzfluoreszenz an einzelnen "Leuchtflecken" zu untersuchen, wurde ein Resonanzscan durchgeführt. Hierzu wurde die Laserenergie so eingestellt, daß die "Leuchtflecken" nur schwach anfingen zu leuchten. Danach konnte die Laserenergie kontinuierlich in 13  $\mu$ eV Schritten durchgestimmt und jeweils ein Bild der gesamten Anregungsfläche aufgenommen werden. Da der Laser nicht im gesamten Abstimmbereich im Einzelmodenbetrieb lief, mußten die Modensprünge durch Verändern der Lasertemperatur eliminiert werden. Dadurch und durch die Veränderung des Laserstromes kam es zu unterschiedlichen Ausgangsintensitäten des Lasers, diese konnten durch gleichzeitiges Messen mit einem Leistungsmesser ermittelt werden. Diese Leistungsschwankungen beeinflussen die Emissionsintensitäten der Bilder durch Division der jeweilig gemessenen Anregungsleistungen normiert werden.

Eine weitere Möglichkeit ist, die Anregungsleistung durch Abstimmen eines variablen Grauglases konstant zu halten. Im Experiment führten beide Varianten zum gleichen Ergebnis. Allerdings ist die zweite Variante wesentlich zeitaufwendiger als die "Divison der Intensität".

In Abbildung 5.8 sind die einzelnen Bilder eines "räumlichen" Resonanzscans zu den jeweiligen Anregungsenergien bei einer Anregungsfläche von 3  $\mu$ m x 3  $\mu$ m dargestellt. Hierbei sind die Anregungsenergien als Differenz  $(E_{diff.} = E - E_{LR})$  zur "resonanten Anregungsenergie"  $E_{LR}$  mit der maximalen Emissionsintensität angegeben. Die Laserenergie wurde in diesem Fall schrittweise zu höheren Energien "verschoben". In der Abbildung sind sowohl räumlich getrennte als auch sehr dicht liegende und ineinanderlaufende Intensitätsverteilungen ("Leuchtflecke") der lokalisierten exzitonischen Zustände zu sehen. Die Intensität nimmt bei den meisten Zuständen mit zunehmender Anregungsenergie ab. D. h. die Resonanzenergie ist für diese Exzitonen quasi identisch. Die Intensität für einen Zustand bleibt aber während des Resonanzscans geradezu konstant, lediglich die Form verändert sich von einer kreisförmigen zu einer elliptischen Ausdehnung. Es ist deutlich zu erkennen, dass in diesem Fall mehrere Exzitonen in unterschiedlichen Potentialtöpfen sehr dicht nebeneinander lokalisiert sind. Diese sprechen offensichtlich so unterschiedlich auf den Anregungslaser an und sorgen für eine große Linienbreite. Es handelt sich somit um einen gemittelten Zustand aus mehreren lokalisierten Zuständen. Dagegen sind Zustände mit wenigen oder gar einzelnen Exzitonen kleiner und kreisförmig.

Um das spektrale resonante Verhalten und somit den Resonanzbereich der unterschiedlich großen "Leuchtflecke" zu untersuchen, wurde jeweils ein Bild an einem angeregten **"Probenort a"** zu der jeweiligen Anregungsenergie aufgenommen. Nach der Normierung der Bilder wurde für unterschiedliche "Leuchtflecken" deren Intensität in Abhängigkeit zur Anregungsenergie aufgetragen (Abb. 5.9). Bei der Energie, welche die maximale Intensität erzielt, handelt es sich um die



#### 5.3. RESONANZFLUORESZENZ

Resonanzenergie. Durch Anpassen einer Lorentzkurve an die Messdaten konnte die Halbwertsbreite FWHM (engl. full width half maximum), welche der exzitonischen 1s-Linienbreite entspricht, ermittelt werden.

In Abb. 5.9 sind für drei Zustände bzw. "Leuchtflecke" aus einem Streifen (1.3  $\mu$ m X 13  $\mu$ m) der Anregungs- bzw. Emissionsfläche das Ergebnis des Resonanzscans für den 19.8 nm QW am "**Probenort a**" dargestellt. Die Resonanzenergien und die Linienbreite dieser Zustände unterscheiden sich deutlich voneinander (Abb. 5.10 (a)), es handelt sich somit um unabhängig voneinander unterschiedlich lokaliesierte Exzitonen.



Abbildung 5.9: Räumlicher Resonanzscan des 19,8 nm QWs bei einer Temperatur von 5 Kelvin für drei "Leuchtflecken" (Intensitätsverteilungen). **oben:** räumliche Lage der drei untersuchten "Leuchtflecke" am **"Probenort a"** bei einer Anregungsenergie von  $E_{Laser} = 1.52590$  eV.

Die gleichen Messungen von ebenfalls drei "Leuchtflecken" an einem anderen Probenort ("**Probenort b**") ergaben identische Ergebnisse mit noch schmaleren Linienbreiten (Abb. 5.10 (b)).



Abbildung 5.10: Resonanzscanvergleich von jeweils drei "exzitonischen Zuständen" an zwei unterschiedlichen Anregungsorten des 19.8 nm QWs. (a) **"Probenort a"** entsprechend vorheriger Abb.; (b) **"Probenort b"** 

Differenz		Differenz	
$a_3 - a_1$	$25 \ \mu eV$	$b_3 - b_1$	$63 \ \mu eV$
$a_3 - a_2$	$15 \ \mu eV$	$b_3 - b_2$	$34 \ \mu eV$

Tabelle 4.3: Abweichung der Resonanzenergie bei verschiedenen Anregungsorten.

Die kleinste ermittelte Linienbreite beträgt  $b_3 = 15 \ \mu eV$ , dies ist das  $\frac{1}{11}$ -fache der in Abschnitt 5.2 ermittelten PL-Linienbreite  $\Gamma_{PL}$  von 170  $\mu eV$ . Die größte ermittelte Linienbreite von  $a_1 = 154 \ \mu eV$  weicht um 16  $\mu eV$  von  $\Gamma_{PL}$  ab. Die lokalisierten Exzitonen weisen nicht nur unterschiedliche Linienbreiten auf, sondern auch unterschiedliche Resonanzenergien. In der Tabelle 4.3 sind die Abweichungen zwischen der höchsten Resonanzenergie von den niedrigeren Resonanzenergien angegeben. Die Abweichungen sind unterschiedlich und liegen bei kleinen betrachteten Regionen im zweistelligen  $\mu eV$ -Bereich. Die Unterschiede über räumlich größere Distanzen liegen im dreistelligen  $\mu eV$ -Bereich. Für die beiden untersuchten Orte ist die Differenz der gemittelten Resonanzenergie

$$E_{a,Mittelwert} - E_{b,Mittelwert} = 299 \ \mu eV \approx 300 \ \mu eV. \tag{5.4}$$

Dieses Verhalten lässt sich sehr gut mit dem Modell der lokalisierten Exzitonen in unterschiedlichen Potentialtöpfen erklären (Abschnitt 2.2.2). Die Insellokalisierungen sind durch den Wachstumsprozeß, d.h. durch die Grenzflächenrauhigkeit offensichtlich völlig willkürlich angeordnet. Diese Unordnung macht sich demzufolge auch bei dickeren Quantenfilmen wie bei dem 19.8 nm QW stark bemerkbar. Die Linienbreite und räumliche Ausdehnung hängen miteinander zusammen. D.h. räumlich größer ausgedehnte Zustände besitzen eine größere Linienbreite als räumlich kleiner ausgedehnte Zustände. Je weiter die Laserenergie von der Resonanzenergie entfernt ist, desto räumlich breiter werden die "Leuchtflecke".

Da die räumliche Auflösung durch das Nikon-Mikroskopobjektiv begrenzt ist, kann nicht mit Sicherheit bestimmt werden, ob es sich bei den beobachteten Zuständen um ein einzelnes Exziton handelt. Es kann allerdings die Aussage getroffen werden, ob es sich bei dem jeweils beobachteten Zustand um eine kleinere oder größere Gruppe lokalisierter Exzitonen handelt. Diese Unterscheidung wird besonders in der Höhendarstellung der Intensität in Abb. 5.8 sichtbar.

## 5.4 Mottübergang und Elektron-Loch-Plasma

In diesem Abschnitt wird die Resonanzfluoreszenz einzelner lokalisierter exzitonischer Zustände in Abhängigkeit von der Anregungsdichte untersucht. Ausgangspunkt war die spektrale Untersuchung einzelner exzitonischer Insellokalisierungen hinsichtlich der "Mollow-Triplett" Aufspaltung der Resonanzfluoreszenz von einzelnen Atomen. Hierbei sollten sich mit zunehmender Anregungsintensität des Lasers die erst einfache spektrale Linie des resonant angeregten Exzitons immer mehr zu einem Triplett aufspalten.

Zur spektralen Messung wurde die räumliche Intensitätsverteilung der Resonanzfluoreszenz mit einer Fläche (entsprechend der in diesen dichteabhängigen Untersuchungen verwendeten Anregungsfläche) von

$$\underline{\underline{A}}_{\underline{M}} = \pi \cdot \frac{x}{2} \cdot \frac{y}{2} = \pi \cdot \frac{51\mu m}{2} \cdot \frac{19\mu m}{2} = \underline{\underline{880\mu m^2}},\tag{5.5}$$

auf einen 10  $\mu$ m Spalt des *SPEX 1250 M* abgebildet und mit der CCD Spektrometerkamera aufgenommen. Die aufgenommenen räumlich/spektralen-Spaltbilder entprechen in horizontaler Richtung ("Spaltbreite") der spektralen Verteilung und in vertikaler Richtung ("Spalthöhe" bzw. "Spaltlänge") der räumlichen Verteilung (Abschnitt 5.4.3, Abb. 5.21). Durch sukzessive Erhöhung der Anregungsintensität und der gleichzeitigen Aufnahme der daraus folgenden veränderten räumlich/spektralen-Spaltbilder konnten anregungsleistungsabhängige Wasserfalldiagramme aufgenommen werden.

Im Folgenden wird zum besseren Verständnis, als erstes das spektrale (Abschnitt 5.4.1) und danach das räumliche (Abschnitt 5.4.3) dichteabhängige Verhalten der Resonanzfluoreszenz dargestellt.

#### 5.4.1 Spektrale Untersuchungen

Für die spektralen Untersuchungen wurden jeweils mehrere einzelne leuchtende Flecke aus den räumlich/spektralen-Spaltbildern selektiert und die resultierenden Spektren analysiert.

In Abb. 5.11 und 5.12 ist jeweils ein Wasserfalldiagramm der RF-Spektren in Abhängigkeit der Anregungs- bzw. Laserleistung für eine einzelne Insellokalisierung ("Leuchtfleck") mit unterschiedlicher räumlicher Ausdehnung (**Zustand A** und **B**, Abschnitt 5.4.3) bei einer Temperatur von 4.5 K in unterschiedlichen Betrachtungsperspektiven dargestellt. Bei schwacher Anregungsleistung ist ein schmales Spektrum mit einer hohen Spitze zu sehen. Diese Spitze ist die Rayleigh-Spitze (engl. Rayleighpeak). Unterhalb dieser befindet sich die exzitonische 1s-Resonanzfluoreszenz. Mit zunehmender Anregungsleistung nimmt die RF Breite zu und es "wächst" auf der energetisch niedrigen Seite das XX-Exziton (Bi-Exziton) heraus. Die Intensität des Rayleighpeaks nimmt bis zu einem bestimmten Wert ab und die exzitonische 1s-Resonanzfluoreszenz schiebt in Bezug zur "feststehenden" Energie des Anregungslasers ( $E_0$ ) bzw. des Rayleighpeaks zu höheren Energien. Bei einer Anregungsleistung von 6 mW ist das 1s-RF-Spektrum verschwunden und der Rayleighpeak steigt wieder mit zunehmender Anregungsleistung an.



Abbildung 5.11: Resonanzfluoreszenz-Spektren für eine isolierte "exzitonische Insellokalisierung" (Zustand: A) bei unterschiedlichen Anregungsleistungen und T = 4.5 K. (Ex = Exziton)

Dieses Verhalten wiesen alle untersuchten Zustände auf, es gab lediglich Unterschiede bei welcher Anregungsleistung diese Übergänge auftraten. D. h. bei einigen Insellokalisierungen traten die beschriebenen Übergänge schon bei geringeren Leistungen und bei anderen Insellokalisierungen bei höheren Anregungsleistungen auf (Abschnitt 5.4.3). Dieses Verhalten entspricht nicht der erwarteten "Mollow-Triplett" Aufspaltung für ein Zwei-Niveau System, sondern dem dichteabhängigen Mottübergang (Abschnitt 2.1.2).



Abbildung 5.12: Resonanzfluoreszenz-Spektren für eine zweite isolierte "exzitonische Insellokalisierung" (Zustand: B) bei unterschiedlichen Anregungsleistungen und T = 4.5 K.

Um genau zu bestimmen, bei welchen Dichten die beschriebenen Ubergänge stattfinden, mußten zuerst die Anregungsleistungen in Anregungsdichten umgerechnet werden. Hierzu wurde für jedes Spektrum aus Abb. 5.12 die normierte integrale Intensität  $I_{INT}(P_{Laser})/I_{INT}(P_{Laser,max})$  für die jeweilige Anregungsleistung  $P_{Laser}$  gebildet, indem jeder Wert  $I_{INT}(P_{Laser})$  durch die integrale Intensität bei der maximalen Laserleistung (im Experiment  $P_{Laser,max} = 19$  mW) dividiert wurde. Danach wurde der jeweilige Wert der normierten integralen Intensität mit der zugehörigen Anregungsleistung in die Gleichung 5.2 eingesetzt und somit die jeweilige Flächendichte berechnet. Da der Quantenfilm eine bestimmte Dicke  $L_z$ besitzt, kann durch Division mit dieser die eigentlich wirkende Volumendichte berechnet werden. In Abb. 5.13 ist das Ergebnis dieser Rechnung graphisch dargestellt. Bis zu einer Anregungsleistung von 3 mW steigt die Anregungsdichte nichtlinear an, danach verhält sich der Anstieg linear.

Die absoluten Werte der berechneten Anregungsdichte können etwas von der tatsächlichen Dichte abweichen. Da die Anregungsleistung  $P_{Laser}$  direkt am Aus-

gang des Anregungslasers gemessen wurde, können durch eventuelle Reflexionsund Absorptionsverluste durch die Linsen, Graugläser und des Kryostatenfensters Leistungsverlust auftreten. Diese Verluste konnten durch spezielle Antireflexbeschichtungen für eine Wellenlänge von 750 nm bis 1000 nm minimiert werden. Ein weiterer Faktor ist die genaue Bestimmung der Anregungsfläche, da die Anregungsleistung gaußförmig vom Zentrum abfällt, liegt demzufolge die Hauptintensität im Zentrum der Anregungsfläche. Wenn daher nur die Halbwertsbreite berücksichtigt wird, ist die berechnete Anregungsdichte höher als die tatsächlich wirkende Dichte. Der dritte Faktor ist die exzitonische Lebensdauer  $\tau_{Ex}$ , da diese für jeden lokalisierten Zustand unterschiedlich ist (Abschn. 5.3), jedoch in der Rechnung nur ein Wert für  $\tau_{Ex}$  berücksichtigt wird, ist auch hier die Anregungsdichte nicht exakt bestimmbar. Daher werden die tatsächlichen Dichten eher etwas größer sein als die berechneten. Aus diesem Grund werden die Ergebnisse in dieser Arbeit gleichzeitig in Abhängigkeit von der Anregungsleistung und Anregungsdichte angegeben.



Abbildung 5.13: Aus der normierten integralen Intensität  $(I_{INT})$  berechnete Anregungsdichte in Abhängigkeit von der Anregungslaserleistung.

Desweiteren lässt sich aus den Messdaten der Absorptionsgrad bzw. das Absorptionsvermögen

Absorptionsvermögen ~ 
$$\frac{\text{Peak Intensität}}{\text{Anregungsleistung}} \sim \alpha(\omega_L) = \frac{\omega_L}{c} \cdot Im(\chi),$$
 (5.6)

bestimmen, wobei  $\omega_L$  die Laserfrequenz und  $\chi$  die Suszeptibilität ist. Dieses gibt den Teil der Anregungsleistung an, der am Ort der Anregungsfläche absorbiert wird und ist somit ein Maß für die vom exzitonischen Zustand absorbierte Intensität. In Abb. 5.14 ist das Absorptionsvermögen für die gemessenen Spektren in Abhängigkeit von der Anregungsleistung dargestellt. In Abb. 5.15 ist das Absorptionsvermögen gegen die Anregungsdichte aufgetragen. Zur deutlicheren Darstellung wurden beide Größen logarithmisch aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass mit zunehmender Anregungsleistung bzw. Dichte das Absorptionsvermögen konstant. Bei einer Leistung von 3 mW bleibt das Absorptionsvermögen konstant. Der leichte Anstieg ist mit dem Untergrund, resultierend aus der bulk-Struktur zu erklären. D. h. mit zunehmender Anregungsleistung steigt auch die PL-Intensität und die PL-Linienbreite der bulk-Struktur, dieses bewirkt einen kontinuierlich steigenden Untergrund der Emission von dem 19.8 nm QW und des Rayleighpeaks.

Das beobachtete Verhalten der Resonanzfluoreszenz lässt sich sehr gut mit dem Mott-Übergang (Abschnitt 2.1.2) erklären, der in diesem Fall bei einer Anregungsleistung von 3 mW bzw. bei einer Dichte von  $1.6 \cdot 10^{16}$  cm<sup>-3</sup> liegt. Unterhalb dieser Anregungsleistung bzw. Dichte existieren hauptsächlich absorbierende Exzitonen mit einer Bindungsenergie. Oberhalb dieser Dichte sind die Exzitonen ionisiert und es existiert nur noch ein Kontinuum von ungebundenen Elektronen und Löchern ("Kontinuum-Streuzustände"), also ein Elektron-Loch-Plasma.



Abbildung 5.14: Absorptionsvermögen eines "Leuchtflecks" bei resonanter Anregung in Abhängigkeit von der Anregungslaserleistung des 19.8 nm QWs.



Abbildung 5.15: Absorptionsvermögen in Abhängigkeit von der Anregungsdichte, für den gleichen Zustand wie in Abb. 5.14.

#### 5.4.2 Theoretische Beschreibung und Berechnung

Um das nichtlineare Verhalten der Resonanzfluoreszenz mit zunehmender Anregungsdichte theoretisch zu beschreiben, wurde von Herrn Dr. Günter Manzke die veränderliche Suszeptibilität  $\chi$  durch Lösung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen für den 19.8 nm Quantenfilm berechnet [35, 36, 37].



Abbildung 5.16: Theoretische Berechnungen (von Dr. Günter Manzke) des imaginären Anteils der Suszeptibilität für den 19.8 nm QW bei zwei unterschiedlichen Temperaturen. Anregungsdichten: (a)  $10^{14}$  cm<sup>-3</sup> (mit Lage der konstanten Laser-Anregungs-Energie ( $E_0$ )), (b)  $10^{15}$  cm<sup>-3</sup>, (c)  $5 \cdot 10^{15}$  cm<sup>-3</sup>, (d)  $10^{16}$  cm<sup>-3</sup>, (e)  $2 \cdot 10^{16}$  cm<sup>-3</sup>. (Ex = Exziton)

In Abb. 5.16 ist der imaginäre Anteil der Suszeptibilität, der dem exzitonischen

1s-Absorptionsspektrum (große Peaks) und dem 2s-Absorptionsspektrum (kleine Peaks, in logarithmischer Darstellung) entspricht, dargestellt. Die Energie-Skala ist hierbei als Abstand zur Bandlückenenergie  $E_q$  und in Einheiten der bulk Bindungsenergie von GaAs  $(E_{Ex}^b = 4.2 \text{ meV})$  gegeben. Die durchgezogenen Spektren sind Ergebnisse für einzelne exzitonische Insellokalisierungen (geringe inhomogene Linienbreite) und die gestrichelten Spektren sind Ergebnisse mehrerer räumlich gemittelter exzitonischer Insellokalisierungen (große inhomogene Linienbreite). Mit zunehmender Anregungsdichte verbreitert sich die Linienbreite für den exzitonischen 1s-Grundzustand, gleichzeitig schiebt die Bandkante (Kontinuumskante) zu niedrigeren Energien. Bei einer bestimmten Dichte (Mott-Ubergang) verschwindet schließlich die exzitonische Linie in der Bandkante. Dieses Verhalten entspricht dem Übergang von gebundenen Elektron-Loch-Paaren (Exzitonen) zu dem ungebundenen Elektron-Loch-Plasma. Das gleiche Verhalten gilt auch für den exzitonischen 2s-Zustand und höhere Zustände. Da dieser energetisch höher ist als der 1s-Zustand, verschwindet der 2s-Zustand schon bei kleineren Dichten in der Bandkante (Abb. 5.16, logarithmische Darstellung).

Die Mott-Dichte und somit der Mott-Ubergang hängt deutlich von der exzitonischen Linienbreite ab. D. h. bei größer räumlich ausgedehnten Insellokalisierungen handelt es sich offenbar um mehrere "dicht gepackte" Exzitonen, da hier die Linienbreite größer ist (in Abb. 5.16 gestrichelte Linie) und dadurch auch das Absorptionsvermögen geringer ist. Bei kleineren räumlich ausgedehnten Insellokalisierungen sind an diesem Ort weniger Exzitonen, daher besitzt dieser Zustand auch eine kleinere Linienbreite und ein höheres Absorptionsvermögen. Wenn es sich um ein einzelnes lokalisiertes Exziton handeln würde, dürfte spektral nur eine sehr schmale Linie mit hohem Absorptionsvermögen zu sehen sein. In diesem Fall würde vermutlich die Mollow-Triplett Aufspaltung vor dem Mott-Ubergang zu beobachten sein. Die durch Vielteilcheneffekte resultierende inhomogene Linienverbreiterung und das geringe Absorptionsvermögen wirken sich als Dämpfung auf die betrachteten Insellokalisierungen aus. Mit Zunahme der Anregungsdichte steigt die Dämpfung dieses Systems und eine Mollow-Triplett Aufspaltung ist nicht sichtbar. Zusätzlich zu der Dämpfung und des Mott-Ubergangs tritt mit zunehmender Anregungsdichte eine Energieverschiebung der exzitonischen Resonanzfluoreszenz auf. Die Richtung dieser Energieverschiebung hängt allerdings von der Probentemperatur ab. D. h. unterhalb einer bestimmten Temperatur gibt es eine Verschiebung zu höheren Energien und oberhalb dieser Temperatur tritt eine Verschiebung zu niedrigeren Energien auf. Diese Temperatur wurde für den 19.8 nm Quantenfilm theoretisch bestimmt und beträgt ca. 12 K. In [35] wurde diese Energieverschiebung für ZnSe bei gemittelten PL Messungen ebenfalls gesehen. Da es sich hierbei um ein anderes System handelt, liegt die kritische Temperatur bei ZnSe bei ca. 30 K.

In Abb. 5.17 und 5.18 sind die theoretisch berechneten Energieverschiebungen für vier unterschiedliche Temperaturen in Abhängigkeit von der Anregungsleistung bzw. Anregungsdichte dargestellt, wobei hier die relativen Verschiebungen zur



Abbildung 5.17: **Theoretisch** berechnete Energieverschiebung in Abhängigkeit von der Anregungsleistung, bei verschiedenen Temperaturen für den 19.8 nm GaAs QW.



Abbildung 5.18: **Theoretisch** berechnete Energieverschiebung in Abhängigkeit von der Anregungsdichte, bei verschiedenen Temperaturen für den 19.8 nm GaAs QW.



Abbildung 5.19: **Experimentell** ermittelte Energieverschiebung in Abhängigkeit von der Anregungsleistung, bei zwei verschiedenen Temperaturen für den 19.8 nm GaAs QW.



Abbildung 5.20: **Experimentell** ermittelte Energieverschiebung in Abhängigkeit von der Anregungsdichte, bei zwei verschiedenen Temperaturen für den 19.8 nm QW.

"feststehenden" Energie des Anregungslasers  $E_0$  angegeben werden. Bei tiefen und hohen Temperaturen nimmt die Energieverschiebung mit zunehmender Anregungsdichte stark zu. Bei Temperaturen leicht unterhalb und oberhalb der kritischen Temperatur ist der Anstieg eher gering. In Abb. 5.19 und 5.20 sind die experimentell ermittelten Energieverschiebungen dargestellt. Das Verhalten stimmt qualitativ mit den theoretischen Berechnungen überein. Allerdings weichen die absoluten Verschiebungen ca. 30% von den theoretisch ermittelten Werten ab. Dies ist in den Rechnungen begründet, da hier mit dem chemischen Potential  $\mu$  idealer (nicht wechselwirkender) Teilchen gerechnet wurde. In [11, 12] konnte für ZnSe gezeigt werden, dass das chemische Potenzial durch die Wechselwirkung stark reduziert wird. Die Energieverschiebung ist nur unterhalb des Mott-Ubergangs zu beobachten, da oberhalb des Mott-Übergangs die gebundenen Zustände aufgebrochen (ionisiert) sind und nur noch ein ungebundenes Elektron-Loch-Plasma existiert. Oder anders ausgedrückt, die Energieniveaus der Exzitonen wurden von der Bandkante "verschluckt" und es existiert nur noch ein Kontinuum von ungebundenen Elektronen und Löchern, die keine Emissionslinien aufweisen. Die resonant anregende Laserlinie wird dann von diesem Kontinuum gestreut bzw. von eventuell auftretenden Plasmonen absorbiert (im Spektrum auftretende Plasmonenbande).

#### 5.4.3 Räumliche Untersuchungen

In Abb. 5.21 ist das räumlich/spektrale-Spaltbild bei einer Anregungsleistung von 9 mW zu sehen. Die Länge enspricht der Ausdehnung ( $\Delta y = 26 \mu m$ ) eines Teils der Emissonsfläche vom Probenort in y-Richtung. Um die Details deutlicher zu erkennen, sind in dieser Abbildung nur 8 schmale Streifen mit jeweils  $1.2 \ \mu m$  Breite angegeben. Hierbei sind vier exzitonische Zustände besonders gekennzeichnet (A, B, C, D), da diese näher untersucht wurden. Die Zustände dazwischen sind ausgeblendet. Da die Anregungsleistung des Lasers Gaußförmig verteilt ist, entspricht die angegebene Anregungsleistung von  $P_{Laser} = 19$  mW nur der Leistung im Anregungszentrum. Daher sind die Anregungsleistungen für die entfernteren exzitonischen Zustände prozentual schwächer als im Anregungszentrum. Dadurch unterscheiden sich auch die entsprechenden Spektren. D. h. am Rand der Anregungsfläche entsprechen die lokalisierten exzitonischen Zustände den Spektren gebundener Elektron-Lochpaare, also den 1s-Exzitonen mit XX-Exziton und im Anregungszentrum Spektren von "E-L-Plasmen" (Abschnitt 5.4.1). Dabei unterscheiden sich die Spektren in der Form und in der Emissionsintensität. Aus diesem Grund ist es nicht ratsam über die gesamte Länge des "Spektrometer-Spaltes" zu integrieren, da ansonsten ein wenig sinnvolles verbreitertes Spektrum aus einer Summe von Exzitonen und Elektron-Loch-Plasmen entsteht (Abb. 5.21 oben). Dadurch läßt sich auch die Verbreiterung der RF-Schultern in [26] erklären, da bei diesen Messungen die Anregungsfläche wesentlich größer war und über die gesamte Spaltlänge integriert wurde.

Die Emissionsintensität in Abb. ist in Bezug zur höchsten Intensität des Zustands **D**  $I_0$  angegeben. Hierbei fällt auf, dass die Emissionsintensität vom Zustand **A** um 60 % höher ist als vom Zustand **B**, obwohl die Anregungsleistung für den Zustand **A** um 10 % geringer als für **B** ist.

Um dieses Verhalten näher zu untersuchen, wurden die jeweiligen Schnitte in der räumlichen Richtung der räumlich/spektralen-Spaltbilder in Abhängigkeit von der gemessenen Anregungsleistung aufgetragen (Abb. 5.22). In der Abbildung ist deutlich zu erkennen, dass die Intensitätsverteilungen der lokalisierten exzitonischen Zustände unterschiedlich breit sind. Insbesondere der Zustand C weist eine deutliche Verbreiterung auf. Hierbei fällt auf, dass sich die Intensitätsverteilung dieses Zustands offensichtlich aus mehreren dicht beieinander liegenden lokalisierten emittierenden Exzitonen zusammensetzt, die durch die Beugungsbegrenzung des verwendeten Mikroskopobjektivs nicht ausreichend aufgelöst werden können. Daher verändert sich die Form dieser Intensitätsverteilung von C mit zunehmender Anregungsleistung. Ab der Anregunsleistung von 3 mW bleibt die Form der räumlichen Ausdehnung erhalten.

Die räumliche Intensitätsausdehnung der anderen drei Zustände bleibt im wesentlichen erhalten. Hierbei ist der Zustand **A** am schmalsten, was darauf hinweist, dass nicht so viele andere lokalisierte Exzitonen um diesen exzitonischen Zustand verteilt sind.



Abbildung 5.21: Spaltbild der Spektrenverteilung an unterschiedlichen Orten der Anregungsfläche des 19.8 nm Quantenfilms, mit  $I_0$  der maximalen RF-Intensität. links: Ausschnitt aus "spektralem Spaltbild-Zentrum" (Rayleighpeak); rechts: einzelne RF-Spektren; oben links: Summe aller RF-Spektren
Zwischen den betrachteten vier Zuständen befinden sich auch noch andere intensitätsschwächere lokalisierte exzitonische Zustände, die teilweise ihre räumliche Intensitätsverteilung mit zunehmender Anregungsleistung verändern. Dies hat auch zur Folge, dass erst bei einer gemessenen Anregungsleistung von 3 mW der Zustand  $\mathbf{D}$  zu sehen ist.

In Abb. 5.23 ist die Intensität der vier unterschiedlichen exzitonischen Insellokalisierungen in Abhängigkeit von der Anregungsleistung dargestellt. Zur besseren Darstellung sind die Daten für beide Axen logarithmisch aufgetragen. Die tatsächlich wirkende Anregungsleistung ist hierbei entsprechend der räumlichen Lage der einzelnen Zustände zum Anregungszentrum mittels der (Abb. 5.21) Gaußverteilung des Anregungslasers bezüglich der gemessenen Laserleistung

 $P_{Laser}$  prozentual angepasst worden. Mit steigender Anregungsleistung bzw. Anregungsdichte fällt die Emissionsintensität bis zu einer bestimmten Anregungsleistung ab, danach steigt sie wieder an. Dieses Verhalten entpricht genau dem beobachteten spektralen Verhalten aus Abschnitt 5.4.1. Der Mott-Übergang tritt bei allen vier betrachteten Zuständen etwas verschoben auf, was durch die Anzahl der lokalisierten Exzitonen am jeweiligen Ort und an den gering auftretenden Mittelungseffekten wie beim Zustand **C** zu erklären ist.

Bei dem Zustand **D** tritt der Mott-Ubergang erst bei einer Anregungsleistung von 9 mW auf. Dies kann nicht nur daran liegen, dass dieser Zustand 4.5  $\mu$ m vom Anregungszentrum entfernt ist, sondern könnte auch an einer geringeren lokalisierten exzitonischen Dichte an diesem Ort liegen.

In Abb. 5.24 ist die Intensitätsverteilung in y-Richtung der Zustände **A** und **C** für die optisch resonante minimale ( $P_{Laser} = 100 \ \mu$ W) und maximale ( $P_{Laser} = 19 \ m$ W) Anregungsleistung jeweils in einem Graphen dargestellt. Zum deutlicheren Vergleich wurden die maximalen Intensitäten bezüglich Abb. 5.23 für jede einzelne Messung auf eins normiert. Die angegebenen Breiten sind die gemessenen Halbwertsbreiten (FWHM) der Intensitätskurven. Bei der Anregungsleistung von 100  $\mu$ W Zustand **A** beträgt die Halbwertsbreite 400 nm, diese wird bei der Anregungsleistung von 19 mW um das 1.8-fache größer (720 nm). Dabei verändert sich die Form der Verteilung kaum. Allerdings ist bei der höheren Anregungsleistung deutlich zu erkennen, dass sich dieser Zustand offensichtlich auch noch aus mehreren dicht beieinander liegenden Zuständen zusammensetzt (schwache "Gebirgskämme" an den Seiten).

Im Gegensatz zum Zustand A wird die Halbwertsbreite des Zustands C von 1500 nm bei geringer Anregungsleistung bzw. Anregungsdichte (weit unterhalb des Mott-Übergangs) auf 1180 nm bei hoher Anregungsdichte reduziert. Bei diesem Zustand ist auch schon bei geringen Anregungsleistungen sehr gut zu erkennen, dass sich dieser aus mehreren dicht beieinander liegenden Zuständen zusammensetzt. Bei der Anregungsleistung von 19 mW (weit oberhalb des Mott-Übergangs) sind diese nicht mehr eindeutig zu unterscheiden. In diesem Fall weist die Intensitätsverteilung auf der linken Seite eine stark abgerundete "Sättigungs"-Kante auf, die aber nicht durch die Sättigung des CCD-Sensors zustande kommt,



Abbildung 5.22: Räumliche Verteilung unterschiedlicher exzitonischer Insellokalisierungen bei unterschiedlichen Anregungsleistungen, bei T = 4.5 K.



Abbildung 5.23: Intensität vier unterschiedlicher exzitonischer Insellokalisierungen in Abhängigkeit von der Anregungsleistung bei T = 4.5 K. Die Anregungsleistung ist hierbei entprechend der räumlichen Lage zum Anregungszentrum angepasst. Die gepunkteten Linien dienen zur besseren Orientierung.

sondern mit den unterschiedlichen zusammengesetzten Lokalisierungen zusammenhängen muss.

Es wurden noch mehrere Untersuchungen der gleichen Art an unterschiedlichen Orten bzw. exzitonischen Zuständen gemacht, die das gleiche Verhalten aufwiesen. Auch hierbei zeigte sich, dass der Übergang von den Exzitonen zu dem ungebundenen Elektron-Loch-Plasma über den Mottübergang abhängig von der räumlichen Intensitätsausdehnung früher als bei kleineren Intensitätsverteilungen auftritt.



Abbildung 5.24: Räumliche Intensitätsverteilung in y-Richtung der Anregungs- bzw. Emissionsfläche bei minimaler ( $P_{Laser} = 100 \ \mu m$ ) und maximaler ( $P_{Laser} = 19 \ mW$ ) optisch resonanter Anregung für die exzitonischen Zustände **A** und **C** bei einer Temperatur von 4.5 K. Die angegebenen Breiten entsprechen hierbei der Halbwertsbreite (FWHM).

## 5.5 Temperaturabhängigkeit der Resonanzfluoreszenz

Zur Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Resonanzfluoreszenz wurde die Temperatur der Probe in ca. 10 K Schritten erhöht. Hierdurch wanderte die Emissionslinie zu kleineren Energien, daher mußte die anregende "Resonanzenergie" zur jeweiligen Temperatur nachgestellt werden. Hierbei zeigte sich, dass die Temperaturstabilität insbesondere bei Temperaturen oberhalb von 20 K sehr gut sein mußte, da ansonsten die Emissionslinie zu starke Schwankungen aufwies. D.h. bei tiefen Temperaturen hatten Temperaturschwankungen von  $\pm 0.2$  K keine Wirkung auf die resonante Anregung, aber bei einer Temperatur von 40 K lief die Emissionslinie unterhalb der Laserlinie aus der Resonanz, so dass die Intensität der Resonanzfluoreszenz stark schwankte. Daher musste die Regelgenauigkeit der Temperaturegelung auf  $\pm 0.01$  K reduziert werden, um so bei jeder Temperatur eine konstante vergleichbare RF zu erhalten.



Abbildung 5.25: Resonanzfluoreszenz-Spektrum einer räumlich kleinen exzitonischen Insellokalisierung in Abhängigkeit von der Temperatur für den 19.8 nm QW.

In Abb. 5.25 ist das RF-Spektrum einer kleinen Insellokalisierung für den 19.8 nm Quantenfilm für sieben unterschiedliche Temperaturen dargestellt. Die Lini-

enbreite des 1s-, XX- und des 2s-Zustands nimmt mit zunehmender Temperatur ebenfalls zu. Das Bi-Exziton (XX) "verschwindet" bei höheren Temperaturen in der 1s-Exziton Emissionslinie, diese wird dadurch zusätzlich breiter. Im Gegensatz zu den temperaturabhängigen PL Messungen aus Abschnitt 5.2.1 taucht auf der energetisch höheren Seite mit zunehmender Temperatur eine Absorptionskante auf. Diese ist allerdings von der Anregungsleistung abhängig. Bei sehr kleinen Anregungsleistungen (< 100  $\mu$ W) ist sie deutlich zu erkennen, mit zunehmender Anregungsleistung wird die Kante schwächer und verschwindet schließlich bei hohen Leistungen (> 100  $\mu$ W).



Abbildung 5.26:PL-RF-Messwerte  $\operatorname{der}$ und Energieverschiebung mit Anpassung des Pässler-Modells in Abhängigkeit von der Temperatur für den 19.8 nm QW.

Die Messdaten für die temperaturabhängige Verschiebung der Resonanzenergie wurden mit dem Pässler-Modell angepaßt und in Abb. 5.26 mit der PL Energieverschiebung gegenübergestellt. Das Verhalten der Energieverschiebung ist bei beiden identisch. Allerdings ist die Anfangsenergie  $E_q(T=0)$  von der RF um 190  $\mu$ eV zur PL Anfangsenergie verschoben. Dies liegt an den unterschiedlichen Lokalisierungs-Potentialtöpfen. D. h. für die Messung der RF wurde nur eine Insellokalisierung untersucht, diese hat offensichtlich durch ihre Potentialtopfbreite eine andere Resonanzenergie als die Zustände, die bei den PL Messungen untersucht wurden. Desweiteren kommt noch ein Mittelungsbeitrag zu den PL Spektren hinzu, da hier über mehrere Insellokalisierungen gemittelt wurde.

In Abb. 5.26 ist deutlich zu erkennen, dass bei Temperaturen unterhalb von 12

K keine wesentliche Energieverschiebung mit zunehmender Temperatur auftritt. Zwischen 12 K und 25 K steigt die Energieverschiebung mit zunehmender Temperatur leicht an. Oberhalb von 25 K nimmt die Energieverschiebung mit steigender Temperatur schnell zu. Dieses Verhalten ist auch die Ursache für die Abhängigkeit der RF Emissionslinie von der Regelgenauigkeit des Temperaturkontrollers, wie schon eingangs beschrieben.

#### 5.5.1 Einfluß der unterschiedlichen Quantenfilme

Im vorherigen Kapitel konnte eine Absorptionskante beobachtet werden. Um diese genauer zu untersuchen wurde das 2s-Exziton des 19.8 nm Qws bei unterschiedlichen Temperaturen und geringen Laserleistungen resonant angregt und die Anregungsenergie jeweils etwas verstellt. In Abb. 5.27 sind die Resultate dargestellt.



Abbildung 5.27: Unterschiedliche resonante Anregung des 2s-Exzitons des 19.8 nm QWs zur Untersuchung der Absorptionskante. Die gestrichelte Linie ist die Position der 1s-Resonanzenergie.

Auf der energetisch niedrigen Seite des 2s-Exzitons befindet sich das nicht resonant angeregte 1s-Exziton. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Intensität des Untergrunds zu höheren Energien hin abnimmt. Auf der energetisch höheren Seite tauchen je nach Temperatur und Verstimmung des Lasers zwei energetisch unterschiedlich breite Emissionslinien und bei der Temperatur von 63 K eine Kante auf. Um diese näher zu klassifizieren, wurden die Abstände bestimmt. In Tabelle 4.4 sind die ermittelten Abstände in Bezug zur Resonanzenergie des 1s-Exzitons des 19.8 nm Quantenfilms  $E_{1s, 19.8 nm}$  angegeben.

Т	$E_{2s, 19.8 \text{ nm}} - E_{1s, 19.8 \text{ nm}}$	$a - E_{1s, 19.8 nm}$	$b - E_{1s, 19.8 nm}$	a-b
32 K	4.46 meV	$6.79 \mathrm{~meV}$	7.87  meV	-1.08 meV
36 K	4.50  meV	7.26  meV	-	-
63 K	4.50  meV	7.31  meV	7.94  meV	-0.63  meV

Tabelle 4.4: Absolute Abstände zwischen den Linien a und b zur Resonanzenergie  $E_{1s, 19.8 \text{ nm}}$ .

Aus Tabelle 4.4 ist deutlich zu erkennen, dass bei den drei unterschiedlichen Temperaturen die Abstände zwischen  $E_{2s, 19.8 \text{ nm}}$ ,  $E_{1s, 19.8 \text{ nm}}$  und b gleich bleiben, während sich die Abstände zwischen  $a - E_{1s, 19.8 \text{ nm}}$  und a - b verändern. In Tabelle 4.5 sind die ermittelten Abstände aus den PL Messungen aus Abschnitt 5.2 für die Energien des 19.8 nm und 15.2 nm QWs angegeben.

$E_{2s, 19.8 \text{ nm}} - E_{1s, 19.8 \text{ nm}}$	$E_{XX, 15.2 \text{ nm}} - E_{1s, 19.8 \text{ nm}}$	$E_{1s, 15.2 \text{ nm}} - E_{1s, 19.8 \text{ nm}}$
4.49 meV	$6.77 \mathrm{~meV}$	7.92  meV

Tabelle 4.5: Differenz der 1s-Energie des 19.8 nm und des 15.2 nm Quantenfilms und des Bi-Exzitons bei einer Temperatur von 5 K.

Im Vergleich zeigt sich, dass es sich bei der b Linie um das 1s Exziton des 15.2 nm Quantenfilms handeln muß, da die Energieabstände exakt übereinstimmen. Bei der a Linie handelt es sich vermutlich um das Bi-Exziton des 15.2 nm Quantenfilms, allerdings stimmen in diesem Fall die Energieabstände nicht exakt überein. Das könnte an der Beobachtung liegen, dass der Abstand zwischen Exziton und Bi-Exziton von der Anregunsleistung abhängt. Die Temperatur könnte hierbei auch einen Einfluß haben.

D. h. im Gegensatz zu den temperaturabhängigen PL Messungen entsteht bei der resonanten Anregung des 1s- und des 2s-Exzitons des 19.8 nm Quantenfilms bei kleineren Leistungen eine Absorptionskante an der Stelle des 1s Exzitons des 15.2 nm QW. Dies scheint aber erst bei einer Temperatur von 40 K aufzutreten. Unterhalb dieser Temperatur bis 20 K ist mit geringer Intensität die Emissionslinie des  $XX_{15.2 \text{ nm}}$ -Exzitons zu beobachten.



Abbildung 5.28: Resonante Anregung des 1s-Exzitons des 9.9 nm Quantenfilms bei drei unterschiedlichen Anregungsleistungen und einer Temperatur von 45 K.

$a - E_{1s, 9.9 nm}$	$c - E_{1s, 9.9 nm}$	b-c
9.56  meV	16.87  meV	-2.06  meV

Tabelle 4.6: Differenz der Linien aus obiger Abbildung.

$E_{2s, 9.9 \text{ nm}} - E_{1s, 9.9 \text{ nm}}$	$E_{1s, 8.3 \text{ nm}} - E_{1s, 9.9 \text{ nm}}$	$E_{XX, 8.3 \text{ nm}} - E_{1s, 8.3 \text{ nm}}$
8.22  meV	16.82  meV	-2.09 meV

Tabelle 4.7: Differenz der Energien aus den PL-Messungen bei 4.5 K.

#### 74 KAPITEL 5. UNTERSUCHUNGEN AN QUANTENFILMEXZITONEN

Ein ähnliches Verhalten weist der 9.9 nm Quantenfilm bei resonanter Anregung des 1s-Exzitons auf (Abb. 5.28). Hier sind ebenfalls bei niedrigen Anregungsleistungen und einer Temperatur von 45 K drei stark verbreiterte Linien mit geringer Emissionsintensität zu sehen. In Tabelle 4.6 sind die ermittelten Energieabstände in Bezug auf die Energie des 1s-Exzitons dargestellt. Im Vergleich mit den aus der PL Messung ermittelten Energieabständen in Tabelle 4.6 kann die c Linie als 1s-Exziton des 8.3 nm Quantenfilms und die b Linie als das XX-Exziton des gleichen QW identifiziert werden. Bei der a Linie handelt es sich vermutlich um das 2s-Exziton des 9.9 nm Quantenfilms. Allerdings ist hier die Abweichung von 1.34 meV zu den PL Messungen signifikant, so dass nicht mit Sicherheit behauptet werden kann, ob es sich wirklich um das 2s-Exziton oder eventuell um eine Störstelle handelt. Da das Maximum der a Linie durch die starke Verbreiterung, die Dämpfung und durch die Untergrunderhöhung des  $XX_{8.3 nm}$ -Exzitons schwer zu ermitteln war, könnte dies auch der Grund für die Abweichung sein.

Im Gegensatz zu den Messungen am 19.8 nm Quantenfilm tritt offensichtlich an der Stelle des 8.3 nm Quantenfilms keine Absorptionskante auf. Bei geringen Anregungsleistungen fällt die Emissionsintensität nach dem  $XX_{8.3 \text{ nm}}$ -Exziton zu höheren Energien sehr schnell auf Null ab. Erst bei höheren Anregungsleistungen um die 600  $\mu$ W ist die Emissionslinie des  $1s_{8.3 \text{ nm}}$ -Exzitons zu beobachten, im gleichen Zuge nimmt die Emissionsintensität des  $XX_{8.3 \text{ nm}}$ -Exzitons ab. Allerdings sitzt dieses immer noch weit oberhalb des  $1s_{8.3 \text{ nm}}$ -Exzitons und es scheint, als ob zwischen den beiden Linien eine strikte Abgrenzung besteht.

#### 5.5.2 Korrektur des Untergrunds

Mit zunehmender Anregungsleistung und Temperatur steigt auch der Untergrund, der durch die PL der bulk-Struktur entsteht. Die Emissionslinie der bulk-Struktur wird ebenfalls mit zunehmender Temperatur breiter, daher nimmt der entstehende Untergrund auch schon bei geringen Anregungsleistungen zu. Dies macht sich besonders bei dem 19.8 nm Quantenfilm bemerkbar, da dieser nur 11.54 meV von der bulk-Struktur entfernt ist. Um diesen Untergrund von der Emissionslinie des  $1s_{19.8 nm}$ -Exzitons abzuziehen (Abb. 5.29), wurde als erstes eine lineare Anpassung gewählt

$$f(x) = m \cdot x + c, \tag{5.7}$$

mit m dem Anstieg und c dem Schnittpunkt mit der Intensitätsachse, da der Untergrund offensichtlich linear ansteigt. Bei dieser Anpassung wird allerdings nicht die Emission der bulk-Struktur abgezogen, daher wurde eine exponentielle Anpassung

$$f(x) = \exp(k \cdot x) + c, \tag{5.8}$$

gewählt, hierbei ist k ein Fitparameter und c der Offset der Anpassungsfunktion.



Abbildung 5.29: Messdaten der Resonanzfluoreszenz des 1s-Exzitons des 19.8 nm Quantenfilms mit zwei unterschiedlichen Anpassungskurven zum Abzug des "bulk Untergrunds".

In Abb. 5.30 sind die reinen Messdaten der Resonanzfluoreszenz mit der jeweili-

gen Korrektur des Untergrundes gegenübergestellt.



Abbildung 5.30: Gegenüberstellung der Ergebnisse der beiden unterschiedlichen bulk Korrekturen für die RF des 19.8 nm QWs.

Der Linienverlauf und die Absorptionskanten an der Stelle des 15.2 nm Quantenfilms werden durch die Korrektur wesentlich deutlicher. Allerdings zeigen sich bei beiden Verfahren Grenzen auf. Bei der linearen Anpassung ist die Wichtung eher bei der Absorptionskante zu höheren Energien. Daher wird die Emission der bulk-Struktur nicht mit abgezogen und es ensteht auf der energetisch niedrigen Seite der Resonanzfluoreszenz ein abrupter Abfall der Emissionsintensität. Bei der exponentiellen Anpassung geschieht dies nicht, da hier der bulk Anteil abgezogen wird. Allerdings kommt es bei dem Verlauf der Absorptionskante zu einer kleinen Fehlanpassung, die den Intensitätsabfall auf der energetisch höheren Seite der Absorptionskante beschleunigt. Im Gesamtergebnis bewirken beide Anpassungen eine wesentlich deutlichere Darstellung der Resonanzfluoreszenz und der Absorptionskante an der Stelle des 1s-Exzitons des 15.2 nm Quantenfilms.

## 5.6 Räumliche Verteilung der Resonanzfluoreszenz

Im folgenden Abschnitt wird die räumliche Verteilung der lokalisierten Exzitonen am Ort der Anregungsfläche aus Abschnitt 5.1 näher untersucht. Die räumliche Verteilung wird durch die Emissionsintensitätsverteilung wiedergegeben. Hierbei ist sehr gut zu unterscheiden, ob die lokalisierten Exzitonen resonant oder nicht resonant angeregt sind, da die Emissionsintensitäten stark variieren (Abb. 5.2). Diese variierende Intensitätsverteilung für eine Anregungsenergie gibt somit Informationen über die Breite der Potentialtöpfe, in denen die Exzitonen lokalisiert sind. Allerdings hängt die Emissionsintensität auch von der Anzahl der Exzitonen an einem Ort ab. D. h. je größer eine Insellokalisation ist, desto mehr Exzitonen befinden sich in dieser und die Emissionsintensität ist wesentlich höher als bei wenigen bzw. einzelnen lokalisierten Exzitonen.

#### 5.6.1 Temperaturabhängigkeit der räumlichen Verteilung

Die Anregungsleistung bzw. die Anregungs<br/>intensität $I_{\rm Laser}$  wird bei der optischen Anregung in die temperatur<br/>abhängigen Anteile

$$\underbrace{I_{\text{Laser}}}_{\text{Anregung}} = \underbrace{I_{\text{Refl.}}(T)}_{\text{Reflexion}} + \underbrace{I_{\text{Streu.}}(T)}_{\text{Streuung}} + \underbrace{I_{\text{Trans.}}(T)}_{\text{Transmission}} + \underbrace{I_{\text{Absorp.}}(T)}_{\text{Absorption}}$$
(5.9)

"aufgeteilt". D. h. mit zunehmender Temperatur nimmt auch die Phononenkopplung zu, diese beeinflußt das Transmissions-, Reflexions-, Streuungs- und Absorptionsvermögen der Probe. Um die exzitonische Emissionsintensität in Abhängigkeit von der Temperatur zu untersuchen, wurde bei gleichbleibender Anregungsleistung und jeweils unterschiedlicher Anregungsenergie der 19.8 nm Quantenfilm resonant angeregt und ein Bild mit der CCD-Kamera aufgenommen. Die Emissionsintensität pro Sekunde berechnet sich dann

$$I_{Em} = \frac{\sum_{n=1}^{z} N_n}{t_{Bel}},$$
(5.10)

wobei  $N_n$  die detektierte Intensität des Pixels n,  $t_{Bel}$  die Belichtungszeit des CCD-Detektors und z die gesamte Pixelanzahl (bezogen auf die CCD-Detektorfläche) ist. In Abbildung 5.31 ist das Resultat der Messung dargestellt. Die Emissionsintensität nimmt mit zunehmender Temperatur linear ab.

Um die detektierte Emissionsintensität bei unterschiedlichen Temperaturen beizubehalten, muß mit der abfallenden Intensität in gleichem Maße die Belichtungszeit erhöht werden.



Abbildung 5.31: Temperaturabhängigkeit der resonanten Emissionsintensität  $I_{Em}$  pro Sekunde bei gleichbleibender Anregungsleistung von 5  $\mu$ W, bei jeweiliger temperaturabhängiger resonanter Anregungsenergie und gleichbleibender Anregungsfläche für den 19.8 nm QW.

In Abb. 5.32 ist die räumliche Verteilung der lokalisierten Exzitonen bei resonanter Anregung mit gleichbleibender Anregungsleistung für drei unterschiedliche Temperaturen durch die gemessene Intensitätsverteilung der RF Emission dargestellt. Der 81  $\mu$ m<sup>2</sup> große Ausschnitt stammt aus dem Zentrum der Anregungsfläche, daher kann davon ausgegangen werden, daß die Anregungsdichte über den gesamten Ausschnitt gleich verteilt ist. Die Belichtungs- bzw. Integrationszeit der CCD-Kamera wurde so gewählt, dass die Summe der Emissionsintensität der gesamten Anregungsfläche bei den jeweiligen Temperaturen immer identisch war. Obwohl es sich bei den drei unterschiedlichen Temperaturfällen immer um den gleichen Anregungsort handelt, ist die Intensitätsverteilung offenbar grundverschieden. Bei der Temperatur von 8 K existieren viele unterschiedlich stark resonant angeregte lokalisierte Exzitonen. Bei 27 K dominieren nur noch fünf fast gleich angeregte lokalisierte Exzitonen und bei 55 K sind nur noch drei räumlich wesentlich größer ausgedehnte Intensitätsverteilungen zu sehen. Wobei eine "Lokalisierung" stärker resonant angeregt ist. Bei allen drei Verteilungen ist auch noch zusätzlich ein schwacher fluktuierender Untergrund zu beobachten. Um diesen Untergrund näher zu betrachten, ist in Abb. 5.33 für die Verteilung bei der Temperatur von 27 K nur das untere Drittel der maximalen Intensität  $(\frac{1}{3} \cdot I_{max})$ dargestellt.



Abbildung 5.32: Räumliche Verteilung der RF am gleichen Anregungsort bei drei unterschiedlichen Temperaturen und gleichbleibender Anregungsleistung.



Abbildung 5.33: Schnitt bei  $\frac{1}{3}$  der maximalen Intensität der räumlichen Verteilung der RF bei einer Temperatur von 27 K.

Der "Untergrund" ähnelt einer Gebirgsverteilung mit einzelnen kleineren und größeren Bergen und Bergkämmen. Es handelt sich hierbei ebenfalls um die Intensitätsverteilung lokalisierter Exzitonen mit Emissionsintensitäten zwischen  $\frac{1}{7}$ bis  $\frac{1}{3}$  von  $I_{max}$ . Bei den einzelnen Bergen, handelt es sich um sehr wenige an einem Ort lokalisierte Exzitonen. Bei den Bergkämmen handelt es sich um sehr dicht beieinander aber doch noch leicht räumlich getrennt liegenden lokalisierten Exzitonen. Interessanterweise scheinen die lokalisierten Exzitonen in der Nähe der hohen Intensitätsspitzen eine höhere Emissionsintensität zu besitzen als die Exzitonen zwischen den hohen Intensitätsspitzen. Für die Verteilung bei einer Temperatur von 55 K trifft gleiches zu, nur dass hier das beschriebene Verhalten noch konzentrierter auftritt. D. h. die wenigen Intensitätsverteilungen sind sehr breit und zwischen ihnen scheinen keine Exzitonen lokalisiert zu sein.

Die Verteilung bei der Temperatur von 27 K (Abb. 5.32 (b)) wirkt sehr symmetrisch und es liegt nahe zu vermuten, dass es sich hierbei um eine systematische "Gitteranordnung" bei einer bestimmten Schwelltemperatur handelt. Um festzustellen, ob das beobachtete Verhalten reproduzierbar ist, wurde die Probe wieder auf Zimmertemperatur gebracht und am darauffolgenden Tag wieder abgekühlt und die gleiche Messung durchgeführt. Das Ergebnis war das gleiche, demzufolge bleibt das Lokalisierungspotential für die Exzitonen in Abhängigkeit von der Temperatur erhalten. Als nächstes wurden die gleichen Messungen an einem anderen Probenort durchgeführt. Es zeigte sich, daß das Lokalisierungsverhalten der Exzitonen mit zunehmender Temperatur identisch zu den vorherigen Messungen war, allerdings konnte keine symmetrische Anordnung wie im vorherigen Fall beobachtet werden. Bei allen Untersuchungen an verschiedenen Probenorten gab es immer bei einer Temperatur zwischen 25 K bis 30 K eine abrupte räumliche Veränderung der Intensitätsverteilung. Danach nimmt mit steigender Temperatur die räumliche Ausdehnung der Intensitätsverteilung zu und es sind nur noch einzelne sehr große räumlich verteilte Intensitäten zu beobachten. Die Anordnung dieser Verteilung hängt allerdings vom Probenort ab und ist reproduzierbar. Sie wird offensichtlich vom Wachstumsprozess in Bezug auf die Grenzflächenrauhigkeit bestimmt und ist temperaturabhängig.

#### 5.6.2Temperaturabhängiger räumlicher Resonanzscan

Um das resonante Verhalten der unterschiedlich lokalisierten Exzitonen bei verschiedenen Temperaturen zu untersuchen, wurde die Anregungsenergie durch leichtes Verstimmen des Lasers variiert und jeweils ein Bild der Intensitätsverteilung mit der CCD-Kamera aufgenommen. In Abb. 5.34 sind die Ergebnisse für drei verschiedene Temperaturen dargestellt. Der betrachtete Emissionsbereich ist der Ausschnitt aus dem Zentrum der Anregungsfläche, durch das Gaußprofil des Anregungslasers ist die Anregungsdichte hier nicht mehr ganz homogen verteilt. Bei der graphischen Darstellung sind die "willkürlichen" Intensitäten der einzelnen Intensitätsverteilungen bei gleicher Temperatur in Bezug zum maximalen Emissionsintensitätswert  $I_{max,LR,T}$  gesetzt. Die Energien sind als Differenz zur "resonanten Energie"  $E_{LR}$  mit der höchsten Emissionsintensität angegeben.

Bei der Temperatur von 8 K verändert sich die Verteilung der resonant angeregten Exzitonen bei Variationen von einigen 0.05 meV drastisch. Eine systematische Anordnung der Intensitätsverteilung ist hier nicht zu erkennen. Es ist offensichtlich, dass die Exzitonen in sehr unterschiedlich breiten Potentialtöpfen lokalisiert sind. Ihre spektrale Linienbreite muß recht schmal sein, da sich die resonante Intensitätsverteilung durch leichtes Verstimmen des Anregungslasers schnell verändert. Bei höheren Temperaturen, insbesondere bei Temperaturen oberhalb von 25 K scheint die spektrale Linienbreite der unterschiedlich lokalisierten Exzitonen am gleichen Beobachtungsort breiter zu sein, da sich hier beim Variieren des Anregungslasers von einigen 0.1 meV die resultierende Intensitätsverteilung nur leicht in der Intensität verändert. Die Anordnung der Emissionsorte bleibt erhalten, sie unterscheidet sich allerdings von der Anordnung bei 8 K. Bei zunehmenden Temperaturen oberhalb von 25 K ist die räumliche Intensitätsverteilung selbst noch bei Enerergien weit unter- und oberhalb der Resonanzenergie identisch. Die Intensitäten dieser Verteilungen sind lediglich geringer und offensichtlich breiter, als bei der resonanten Anregung. In Tabelle 4.8 ist der Resonanzbereich für 8 K und 27 K angegeben, indem die jeweilige maximale Intensität  $I_{max}$  durch die maximale Intensität  $I_{max,LR}$  bei entsprechender resonanter Anregung  $E_{LR}$  dividiert wurde. Das Ergebnis ist ein Resonanzscan. Es ist deutlich zu erkennen, daß der Resonanzbereich bei 27 K wesentlich breiter ist, als bei 8 K. Das Gleiche gilt auch für den Resonanzbereich bei der Temperatur von 55 K. dieser ist noch wesentlich breiter als bei den anderen beiden Temperaturen. Da bei höheren Temperaturen die spektrale Linienbreite der Exzitonen und somit auch der Resonanzbereich zunimmt, vergrößert sich der benötigte energetische Abstimmbereich des Anregungslasers. Bei den Messungen hat sich gezeigt, dass der verwendete Einmodenlaser nur über einen kleinen Bereich von 200  $\mu eV$  modensprungfrei abstimmbar war. Daher mußte insbesondere bei der Probentemperatur von 55 K der Laser zusätzlich in der Lasertemperatur, dem Strom und somit in der Leistung verändert werden, um einen geringen Abstimmbereich zu gewährleisten. Zusätzlich nimmt die benötigte Regelgenauigkeit mit steigender Probentemperatur zu (Abschnitt 5.5). Da die Einstellung des Anregungslasers bezüglich der Temperatur und des Stroms etwas Zeit in Anspruch nimmt, kann es bei der Messung bei 55 K zu geringen Energiedriften gekommen sein, so dass sich die Position der Resonanzenergie leicht verändert hat. Daher hat sich bei der Messung von 55 K herausgestellt, dass es besser ist, über einen kleineren zeitlichen Bereich mit größeren Energieabständen, bezogen auf den Stabilitätsbereich des Anregungslasers, zu messen. Dadurch ist allerdings die spektrale Auflösung geringer als bei den anderen beiden Temperaturmessungen und daher kann hier der Resonanzbereich nicht genau angegeben werden.

 $E_{\rm LR} = 1.526423~{\rm eV}$  bei $T=8~{\rm K}$ 

$E_{\Delta}$	1.057  meV	0.109  meV	0 meV	-0.104 meV	-0.527  meV
$I_{max}/I_{max,LR}$	0.3	0.8	1	0.6	0.1

 $E_{\rm LR} = 1.525900~{\rm eV}$  bei $T=27~{\rm K}$ 

$E_{\Delta}$	2.006  meV	0.636  meV	$0.102 \mathrm{~meV}$	0  meV	-0.750  meV
$I_{max}/I_{max,LR}$	0.3	0.9	0.9	1	0.3

Tabelle 4.8: Vergleich der Intensitäten aus räumlichem Resonanzscan.





83

#### 5.6.3 Modell zur Simulation der Messung

Die Bilder aus 5.34 suggerieren eine räumliche Verbreiterung der einzeln lokalisierten Exzitonen mit zunehmender Temperatur. Allerdings können sich die lokalisierten Exzitonen schwerlich in diesem Temperaturbereich räumlich ausdehnen. Die experimentellen Beobachtungen müssen daher eine andere Ursache haben, die vermutlich mit der Exziton-Phonon-Kopplung zu tun hat. In Abschnitt 2.1.3 wurde das Debye-Modell für das temperaturabhängige Verhalten der spezifischen Wärmekapazität von Phononen und der Debye-Temperatur vorgestellt und in Abb. 2.2 für GaAs dargestellt. Hiebei ist jeweils bei einer Temperatur von ca. 25 K ein Ubergang vom schwachen zum sehr schnellen Anstieg der spezifischen phononischen Wärmekapazität sowie der Debye-Temperatur zu sehen. Dieses Verhalten trifft ebenfalls für die optischen Phononen bezüglich der Bose- bzw. Boltzmannverteilung (Gl. 2.19) zu. Das Verhalten unterhalb und oberhalb dieser Schwellbzw. Übergangstemperatur von 25 K ist identisch mit der Übergangstemperatur und dem Verhalten der drastischen Änderung der Intensitätsverteilung aus den Messungen in Abschnitt 5.6.2. In Abb. 5.35 (a) ist dieses räumliche "Intensitätsverhalten" für drei verschiedene Temperaturen schematisch vereinfacht dargestellt. Hierbei verändert bzw. verbreitert sich mit zunehmender Temperatur nicht die Lage der lokalisierten Exzitonen, sondern die emittierende Intensitätsverteilung dieser. Demzufolge wird die spektrale Linienverbreiterung der Exzitonen und die räumliche Intensitätsverteilung durch die Phononenkopplung beeinflusst. In Analogie zum Verhalten aus dem Debye-Modell und der Linienverbreiterung nach Gl. 2.19 kann eine Anpassungsfunktion für den temperaturabhängigen Linienverbreiterungsfaktor  $\gamma(T)$  für T > 0 K aufgestellt werden

$$\gamma(T) \sim o + v \cdot T + l \cdot \exp\left(-\frac{t}{T}\right),$$
(5.11)

wobei o, v, l und t die materialspezifischen Anpassungsparameter sind. Die spektrale Emissionslinie der unterschiedlich lokalisierten Exzitonen kann dann als Lorentzkurve mit einer Linienbreite bzw. volle Halbwertsbreite  $\Gamma_0 \cdot \gamma(T)$  angenommen werden

$$f_{Lorentz}(E_x, T) = \frac{2 \cdot F}{\pi} \cdot \frac{\Gamma_0 \cdot \gamma(T)}{4 \cdot (E_x - E_{x0})^2 + (\Gamma_0 \cdot \gamma(T))^2},$$
(5.12)

F der Fläche unterhalb der Lorentzkurve,  $\Gamma_0$  der natürlichen Linienbreite bei T = 0 K und  $E_{x0}$  ist die Resonanzenergie beim Intensitätsmaximum der jeweiligen spektralen exzitonischen Linie. Durch die dichte räumliche Verteilung der lokalisierten Exzitonen liegen deren Emissionslinien sehr nah zusammen. Mit zunehmender Temperatur überschneiden sich diese und die resultierende spektrale Intensität ist somit die Summe aus unterschiedlich breiten und hohen Emissionslinien. In Abb. 5.35 (b) ist dieses spektrale Verhalten schematisch für drei unterschiedliche Temperaturen dargestellt. Die spektralen Abstände der lokalisierten Exzitonen (schwarze Linien) sind hierbei frei gewählt worden. Die Summe der einzelnen Linien entspricht der roten einhüllenden Kurve. Zusätzlich zur Verbreiterung verschiebt sich auch die Emissionsenergie zu niedrigen Energien (Abschnitt 5.2.1 und 5.5). Durch die spektrale Linienverbreiterung vergrößert und überschneidet sich auch der jeweilige Resonanzbereich der lokalisierten Exzitonen. Dadurch werden diese bei höheren Temperaturen ebenfalls resonant angeregt und emittieren dadurch stärker. Die spektrale Linienverbreiterung ist so mit der räumlichen Intensitätsverteilung gekoppelt.

Auf Grundlage dieser Überlegungen konnte das folgende Modell entwickelt werden. Hierbei setzt sich die Energieverteilung

$$\Omega(N,T) = Z_{\Omega 0}(N) - [E_g(T=0) - E_P(T)], \qquad (5.13)$$

aus einer zufälligen Energieverteilung  $Z_{\Omega 0}(N)$  mit N unterschiedlich zufällig in X- und Y-Richtung lokalisierten Exzitonen zusammen. Die temperaturabhängige Energieverschiebung und somit auch die zentrale Resonanzverschiebung wird durch das Pässler-Modell  $E_P(T)$  (Abschnitt 5.2.1) für die jeweilige Temperatur berücksichtigt. Für die räumliche Ausdehnung der Exzitonen wird eine Gaußverteilung angenommen

$$f_G(x) \sim \exp\left[-\left(\frac{x}{\Delta a}\right)^2\right],$$
 (5.14)

wobei  $\Delta a$  die räumliche Auflösungsbegrenzung (Abschnitt 3.2) des verwendeten Mikroskopobjektivs ist. Die Linienverbreiterung der jeweiligen Energie E lässt sich in Abhängigkeit von der Temperatur durch

$$g(E,T) = \frac{(\gamma(T)/2)}{(E/\Gamma_0)^2 + (\gamma(T)/2)^2},$$
(5.15)

berechnen.

Das auf der Probe einfallende bzw. anregende Laserlicht entspricht einer ebenen Welle der Form

$$w_L(X,Y) = \exp\left[i \cdot k_L \cdot (X+Y)\right] = \exp\left[i \cdot \frac{2 \cdot \pi}{\lambda_L} \cdot \cos\left(\Theta_B\right) \cdot (X+Y)\right], \quad (5.16)$$

mit 
$$k_L = \left| \vec{k_L} \right| = \frac{\omega_L}{c} = \frac{2 \cdot \pi}{\lambda_L} \cdot \cos(\Theta_B)$$
, wobei  $\lambda_L$  die Wellenlänge des An-

regungslasers,  $\Theta_B$  der Winkel des anregenden bzw. "einfallenden" Laserlichts (im vorliegendem Experiment entspricht dieser Winkel dem Brewsterwinkel  $\Theta_B$  =  $(75^{\circ})$  und *i* die imaginäre Einheit ist.

Die räumliche Intensitätsverteilung in x- und y-Richtung für eine beliebige Anregungsenergie des Lasers  $E_L$  läßt sich dann je nach dem ob es sich um phasenerhaltende (Kohärenz) oder dephasierende (Inkohärenz) Prozesse handelt als kohärente Summe

$$I_{\rm koh}(x,y,E_L,T) \sim$$

т

$$\left|\sum_{j=1}^{N} \left\{ f_G(x - X_j) \cdot f_G(y - Y_j) \right\} \cdot g(E_L - \Omega_j, T) \cdot w_L(X_j, Y_j) \right|^2,$$
(5.17)

oder durch die inkohärente Summe

$$I_{\text{inkoh}}(x, y, E_L, T) \sim \sum_{j=1}^{N} \left| \{ f_G(x - X_j) \cdot f_G(y - Y_j) \} \cdot g(E_L - \Omega_j, T) \right|^2, \quad (5.18)$$

mit  $|w_L(x - X_j, y - Y_j)|^2 = 1$ , darstellen. Somit wird in Abhängigkeit von der Temperatur, der Anregungsenergie und der Linienbreite jedem statistisch verteilten Energiewert eine räumliche Gaußverteilung zugeteilt. In Abb. 5.35 (c) ist ein Schnitt in x-Richtung für eine nach dem Modell berechnete räumliche Intensitätsverteilung für drei Temperaturen dargestellt. Die Anregungsenergie wurde so gewählt, daß die lokalisierten Exzitonen immer am gleichen Ort bzw. in der gleichen Schnitt-Linie resonant angeregt sind. Mit Zunahme der Temperatur ist eine deutliche räumliche Intensitätsverbreiterung zu sehen. Diese kommt aber nicht durch die räumliche Verbreiterung der Exzitonen zustande, sondern durch die Verbreiterung des Resonanzbereiches der einzelnen Zustände. Die dadurch entstehende höhere Emissionsintensität wird aufsummiert und somit verbreitert sich die Intensitätsverteilung. Durch die so entstehende Mittelung der verschiedenen Intensitäten verändert sich die Struktur der Verteilung maßgeblich. Die tatsächliche räumliche Verteilung der lokalisierten Exzitonen bleibt aber erhalten. Daher ist die Veränderung der Intensitätsverteilung in Abhängigkeit von der Temperatur für jeden Probenort reproduzierbar.

Mit diesem Modell lassen sich die Resultate des Experiments sehr gut beschreiben. Das Verhalten der drastischen Veränderung der Intensitätsverteilung bei der Ubergangstemperatur von 25 K wird durch die Berücksichtigung der Exziton-Phonon-Kopplung sehr gut wiedergegeben. Auch das Verhalten unterhalb und oberhalb dieser Ubergangstemperatur entspricht genau den experimentellen Beobachtungen. In der Abb. 5.35 (c) ist mit Zunahme der Temperatur eine deutliche Erhöhung des Offsets zu sehen, auch dieses konnte im Experiment beobachtet



Abbildung 5.35: Modell der räumlichen Verteilung der RF bei unterschiedlichen Temperaturen. (a) Schematisch vereinfachte Darstellung der räumlichen Intensitätsverteilung bei unterschiedlichen Temperaturen. (b) Berechnete Verbreiterung der Emissionslinien in Abhängigkeit von der Temperatur für verschieden dicht nebeneinander liegende lokalisierte Exzitonen am identischen Beobachtungsort.  $\Delta E$  ist die temperaturbedingte Energieverschiebung (c) Berechnete räumliche Intensitätsverteilung mit Hinzunahme der Phononenkopplung an die Exzitonen bei drei unterschiedlichen Temperaturen am identischen Ortsintervall ( $\Delta x = 10 \ \mu m$ ).

#### 88 KAPITEL 5. UNTERSUCHUNGEN AN QUANTENFILMEXZITONEN

bzw. gemessen werden. Bei den Modellrechnungen hat sich gezeigt, dass die Anzahl N der lokalisierten Exzitonen wesentliche Auswirkungen auf die Summation der Verteilung hat. Daher ist davon auszugehen, dass sich im Experiment sehr viele unterschiedlich dicht nebeneinander lokalisierte Exzitonen am untersuchten Probenort befunden haben, da sich in der Modellrechnung gezeigt hat, dass die Intensitätsverbreiterung mit zunehmender Teilchenzahl N schneller ansteigt. Weiterhin konnte mit dem Modell der Einfluss der optischen Auflösungsbegrenzung  $\Delta a$  untersucht werden. Es hat sich gezeigt, dass sich mit einer theoretisch geringeren Auflösungsbegrenzung die Intensitätsverteilung nicht so stark wie durch die experimentell vorgegebene Auflösungsbegrenzung verändert. Umgekehrt hat sich gezeigt, dass mit Zunahme der Auflösungsbegrenzung auch die Verbreiterung der Intensitätsverteilung zunimmt. Somit kommt zu der Resonanzverbreiterung auch noch der Beitrag der Auflösungsbegrenzung hinzu. Desweiteren wurde der Einfluss der kohärenten und inkohärenten Summe auf das Ergebnis untersucht. Es hat sich gezeigt, dass das tendenzielle Ergebnis bezüglich der Intensitätsverbreiterung bei beiden Summen unterschiedlich ist (Abb. 5.35 (c)), der Mittelungseffekt bei der inkohärenten Summe ist offensichtlich stärker ausgeprägt. Dies entspricht auch eher den Ergebnissen aus dem Experiment. Allerdings ist hierüber schwerlich eine Aussage zu treffen, da im Experiment die Teilchenanzahl und die optische Auflösungsbegrenzung einen großen Einfluss auf die Qualität der Messung haben. Hierdurch kann keine genaue Aussage über die exakte räumliche Ausdehnung der Exzitonen und deren Lokalisation gemacht werden. Hinzu kommt, bedingt durch das Probenwachstum, noch die stark unterschiedliche Verteilung der Exzitonen an verschiedenen Probenorten. Dies kann im Modell nur als statistische Verteilung wiedergegeben werden. Daher ist nur ein qualitativer Vergleich mit der experimentellen räumlichen Intensitätsverteilung möglich und sinnvoll.

### 5.6.4 Räumlich und spektral hochaufgelöste Resonanzfluoreszenz

Um das spektrale Verhalten der im vorherigen Abschnitt beschriebenen lokalisierten exzitonischen Zustände in Abhängigkeit von der Temperatur zu untersuchen, wurde bei resonanter Anregung des 19.8 nm QWs die Emission auf den Spalt des Spektrometers abgebildet und spektral aufgelöst. In erster Linie waren bei diesen Untersuchungen die Spektren von den räumlich am größten ausgedehnten Intensitätsverteilungen der lokalisierten Exzitonen von Interesse. Da sich die räumliche Intensitätsverteilung mit zunehmender Temperatur verändert, musste durch vertikales Verstellen der Spaltlinse mit einer Mikrometerschraube der jeweilige Emissionsort neu eingestellt werden. In Abb. 5.36 sind die jeweiligen spektral aufgelösten Spaltbilder für drei Temperaturen Konturhöhenlinien dargestellt, die mit dem des  $CCD^*$ -Detektors aufgenommen wurden. In der Spalthöhe ist eine sehr unterschiedliche räumliche Intensitätsverteilung zu sehen. Die "Spaltbreite" entspricht der spektralen Auflösung. Neben den "Spaltbildern" sind die Spektren der jeweiligen verschiedenen Orte in Bezug auf die Spaltbreite logarithmisch dargestellt. Die Zustände unterscheiden sich in der Intensität und spektral sehr deutlich voneinander. D. h. bei den Temperaturen von 5 K und 25 K existieren verschieden resonant angeregte lokalisierte Exzitonen. Die spektrale Breite dieser Zustände und die Intensität des Rayleighpeaks sind bei jedem exzitonischen Zustand unterschiedlich. Bei der Temperatur von 60 K scheinen alle Zustände resonant angeregt zu sein, hier variiert allerdings die maximale Intensität sehr stark. Bei großen ausgedehnten Intensitätsverteilungen scheint die Intensität des Rayleighpeaks zu dominieren. Dies hat auch zur Folge, dass schwache Intensitäten in der Konturdarstellung der Spaltbilder kaum bzw. gar nicht zu sehen, aber trotzdem vorhanden sind. Um die genaue resonante Anregungsenergie einzustellen und damit die Belichtungszeit der CCD nicht zu lange ist, wird meistens über die gesamte Spalthöhe summiert und somit wird ein gemitteltes Spektrum wiedergegeben. In. Abb. 5.37 sind die Mittelwerte der einzelnen Positionen für die jeweiligen drei Temperaturen der Messung dargestellt. Der "gemittelte 1s-Zustand" ist offensichtlich bei jeder Temperatur resonant angeregt, dies ist aber ein typischer Mittelungseffekt und hat daher mit der Realität des einzeln angeregten Zustands nichts zu tun. Auch der 2s-Zustand ist wesentlich deutlicher zu erkennen, insbesondere im Vergleich zu den Messungen bei 60 K.



Abbildung 5.36: Spektrale Verteilung der Resonanzfluoreszenz des 19.8 nm QWs für verschiedene Emissionsorte bei unterschiedlichen Temperaturen und annähernd gleicher Anregungsleistung.

Tatsächlich wirkt sich dieser Mittelungseffekt noch stärker aus, da in der Abb.5.37 nur die Zustände mit den höchsten Intensitäten zur Mittelung verwendet wurden. Die Zustände mit geringeren Emissionsintensitäten wirken sich ebenfalls auf die Mittelung aus. Daher ist eine Mittelung über die gesamte "Spalthöhe" nicht sinnvoll. Auch nicht für die Messungen bei 60 K, obwohl hier alle Zustände offenbar gleich resonant angeregt sind. Um das Verhalten bei 60 K genauer zu analysieren, sind in Abb. 5.38 die Spektren an vier unterschiedlichen Orten in Bezug auf die "Spalthöhe" in einem Diagramm dargestellt.



Abbildung 5.37: Mittelwert bzw. Summe über die gesamte "Spalthöhe" der vorherigen Spektren. Die Darstellung ist logarithmisch und die Intensitäten sind jeweils auf eins normiert. (2s-Exziton (geringere Intensität)).

Aus Abb. 5.38 konnte das Verhältnis der maximalen Intensität des Rayleighpeaks  $I_R$  zur maximalen Intensität des resonant angeregten 1s-Exzitons (gemessen an der "Schulter")  $I_S$  an dem jeweiligem Ort bestimmt werden (Tab. 4.9).

Position	$I_R$ in w. E.	$I_S$ in w. E.	$I_R/I_S$
(a)	$1 \cdot I_{R,Max.,a}$	$1 \cdot I_{S,Max.,a}$	800
(b)	$4.6 \cdot 10^{-3} \cdot I_{R,Max.,a}$	$0.3 \cdot I_{S,Max.,a}$	13
(c)	$5.9 \cdot 10^{-2} \cdot I_{R,Max.,a}$	$0.9 \cdot I_{S,Max.,a}$	46
(e)	$6.4 \cdot 10^{-3} \cdot I_{R,Max.,a}$	$0.33 \cdot I_{S,Max.,a}$	16

Tabelle 4.9: Verhältnis der jeweiligen Rayleighpeak-Intensität  $(I_R)$  zu der Schulter-Intensität  $(I_S)$  bei T = 60 K.



Abbildung 5.38: Spektraler Vergleich verschiedener Emissionsorte (bezogen auf die "Spalthöhe") bei gleicher Temperatur und Anregungsleistung.



Abbildung 5.39: Spektraler Vergleich zweier verschiedener Emissionsorte (bezogen auf die "Spalthöhe") bei gleicher Temperatur und unterschiedlicher Anregungsleistung. Die Emissionsintensitäten sind zum besseren Vergleich jeweils auf eins normiert und im gleichen Diagramm dargestellt.

Bei der Intensitätsverteilung mit der größten räumlichen Ausdehnung (a) ist das Verhältnis zwischen  $I_R$  und  $I_S$  wesentlich größer als bei den anderen Zuständen. Somit dominiert hier der Rayleighanteil maßgeblich. Gleichzeitig ist auch in den Spektren zu erkennen, daß die Linienbreite des resonant angeregten 1s-Zustands größer ist als bei den kleiner ausgedehnten Intensitätsverteilungen.

In Abb. 5.39 sind die Resonanzfluoreszenzspektren von einer räumlich sehr groß ausgedehnten (a) und von einer räumlich kleiner ausgedehnten (b) Intensitätsverteilung bei ansteigender Anregungsleistung dargestellt. Zur besseren Darstellung und zum Vergleich sind die Spektren für die jeweilige Anregungsleistung auf eins normiert und logarithmisch in einem Diagramm dargestellt. Auch hier konnte das jeweilige Verhältnis zwischen  $I_R$  und  $I_S$  bestimmt und in Tabelle 4.10 angegeben werden.

M-Nr. n	1	2	3
P	$0.90 \ \mu W$	$3.98 \ \mu W$	$6.28 \ \mu W$
$P_n/P_1$	1	4.4	7.0
$\boxed{\mathbf{V_I}=\mathbf{I_R}/\mathbf{I_S}}$	13	50	80
$V_{I,n}/V_{I,1}$	1	3.9	6.2

Tabelle 4.10: Verhältnisse der jeweiligen Rayleighpeak-Intensität  $(I_R)$  und zu der Schulter-Intensität  $(I_S)$  in Bezug zur Anregungsleistung (P) bei T = 60 K für die Position (b).

Das Verhalten der beiden Zustände (a) und (b) ist sehr unterschiedlich. Das Verhältnis  $V_{I,(a)}$  für den Zustand (a) bleibt konstant 800 (Tab. 4.9, Abb. 5.39 (a)). Lediglich die gesamte Intensität der spektralen Linie nimmt mit zunehmender Anregungsleistung ebenfalls zu.

Das Verhältnis  $V_{I,(b)}$  für den Zustand (b) steigt mit zunehmender Anregungsleistung, gleichzeitig steigt auch die gesamte Intensität der Emissionslinie an. D.h. die Wichtung des Ravleighpeaks steigt mit zunehmender Anregungsleistung. Bei der Anregungsleistung von 6.28  $\mu$ W gleicht die Emissionslinie von (b) sehr der Emissionslinie von (a). Insbesondere im schrägen Abfall der Intensität zu höheren Energien. Allerdings ist die Linienbreite von (b) wesentlich geringer als von (a), dies ist besonders am Rayleighpeak sehr gut zu erkennen. Das Verhältnis  $V_{I,(a)}$ entspricht in diesem Fall dem 10-fachen von  $V_{I,(b)}$ .

Das beschriebene Verhalten lässt sich bei allen unterschiedlich großen Intensitätsverteilungen von resonant angeregten lokalisierten Exzitonen beobachten. Die Dominanz des Rayleighpeaks hängt hierbei sehr stark von der Größe der räumlichen Ausdehnung der Intensitätsverteilung ab. Es gibt drei Möglichkeiten, wie dieses Verhalten zu erklären ist:

- (1) Wenn bei den räumlich großen Intensitätsverteilungen die exzitonische Teilchendichte höher ist, gehen diese Zustände früher in den *Mott-Übergang* und dann in das *Elektron-Loch-Plasma* über als "kleinere" Zustände. Allerdings sind in diesem Fall die Anregungsleistungen in Bezug auf den Mott-Übergang um das 6000-fache geringer als bei den 4.5 K Messungen aus Abschnitt 5.4. Die exzitonische Dichte ("Teilchendichte") müsste daher selbst bei "kleineren" Intensitätsverteilungen sehr groß sein. Das würde bedeuten, daß die sehr großen Zustände selbst bei den kleinsten Anregungsleistungen im nW-Bereich ein Elektron-Loch-Plasma bilden.
- (2) Durch spektrale Mittelungseffekte, die durch dicht umeinander verteilte verschieden lokalisierte Exzitonen mit verbreiterter resonanter Anregung bei höheren Temperaturen zustande kommem (-Resonanzverbreiterung-, Abschnitt 5.6.3, Abb. 5.35). Allerdings müsste im Fall von (b) die spektrale Emissionslinie mit zunehmender Anregungsleistung wesentlich breiter werden, was aber nicht geschieht.
- (3) Durch *radiative Kopplung* der Strahlungsfelder dicht beieinander verteilter unterschiedlich lokalisierter Exzitonen, die "ebenfalls" durch die Resonanzverbreiterung (Abschnitt 5.6.3) zustande kommt und zur *Super-Fluoreszenz* führt. Diese Kopplung der einzelnen Zustände zu einem quasi einzelnen Zustand kann durch das Dicke-Modell [38, 47] und mit dem somit resultierenden Dicke-Zustand beschrieben werden.

Welcher dieser drei Punkte einen Einfluss auf das beschriebene Emissionsverhalten hat, ist zur Zeit noch nicht geklärt. Es gibt Hinweise darauf, dass sich die lokalisierten Zustände insbesondere bei hohen Temperaturen wie Dicke-Zustände verhalten. Um hierüber eine genaue Aussage zu treffen, muss die radiative Kopplung über das Dicke-Modell [38] mit dem in dieser Arbeit entwickelten Modell (Abschn. 5.6.3) verbunden werden, da dieses einfache Modell noch keine wirklichen Vielteilchen- und Kopplungs-Effekte berücksichtigt. Desweiteren müssten experimentell mittels Korrelationsmessverfahren wie z. B. Hanbury-Brown-Twiss und Homodyne-Messverfahren die resonanten Zustände, insbesondere die großen Intensitätsverteilungen bei Temperaturen höher als 30 K auf ihre Kopplung hin untersucht werden.

## Kapitel 6

# Transmissionsmessung an Quantenfilmen

Um die Wechselwirkung und Verschränkung einzelner und gekoppelter lokalisierter Exzitonen in Quantenfilmen zu untersuchen, wurde in [2] ein experimenteller Aufbau realisiert. Hierbei wurde mittels Einzel-Photon-Interferometrie die Verschränkung des wechselwirkenden Systems von einer Vielzahl unterschiedlich lokalisierter Exzitonen mit einzelnen spontan emittierten Photonen beobachtet. Um ein Interferometer aufzubauen, muß die Probe in "Transmisson" ("rechter Arm") und in "Reflexion" ("linker Arm") bezogen auf die Anregung von links betrieben werden (Abb. 2.5 und 4.2). Bei senkrechter Stellung der Probe wurden in den Experimenten Quanteninterferenzen eines einzelnen Photons gemessen, da die Emission der Exzitonen in diesem Fall den gleichen Rückstoßimpuls in beide Richtungen hat. Die beiden Wege sind somit nicht zu unterscheiden. Wird allerdings die Quantenfilmprobe gekippt, dann unterscheidet sich der Rückstoßimpuls für beide Richtungen durch die Verschränkung des emittierten Photons mit den verschieden lokalisierten Exzitonen im Quantenfilm. In diesem Fall sind die beiden Wege nicht mehr ununterscheidbar und es kommt daher auch zu keiner Interferenz.

Um nun festzustellen, in welche Richtung die Emission stattfindet ("which way"-Experiment) und wie die einzelnen lokalisierten Exzitonen miteinander gekoppelt bzw. verschränkt sind, sollte das Experiment an resonant angeregten Exzitonen mit Hilfe des in dieser Arbeit entwickelten  $4\pi$ -Mikroskopkryostaten (Abschn. 4.2) durchgeführt werden. Die einzelnen Emissionsorte werden dann von der jeweiligen Seite über das hochauflösende Mikroskopobjektiv auf eine Punktlochblende abgebildet. Die Mikroskopobjektive und Punktlochblenden können mittels Piezotischen unabhängig voneinander positioniert werden. Somit können die gleichen oder unterschiedlichen Emissionsorte selektiert und verglichen werden.

Für die Interferenz-Messungen wird die jeweilige Zwischenabbildung für den rechten und linken Arm dann mittels eines 50/50-Strahlteilers überlagernd auf einen CCD-Detektor abgebildet. Die Probenhalterung und somit die Probe kann mit-

tels zweier Mikrometerschrauben während der Messung reproduzierbar in beliebige Richtungen gekippt werden. Für andere Korrelationsmessungen wie z. B. Hanbury-Brown-Twiss- und Homodyne-Messverfahren können die, durch die Punktlochblende selektierten Emissionsorte direkt auf jeweils eine Photodiode abgebildet und die Korrelation gemessen werden. Ein 50/50-Strahlteiler ist dann durch die transmittierende Quantenfilmprobe nicht mehr notwendig. Der Vorteil hierbei ist, dass wesentlich mehr Emissionsintensität auf beiden Seiten zur Verfügung steht und somit nicht um 50 % wie bei einem 50/50-Strahlteiler abgeschwächt wird. Dies ist besonders sinnvoll, da die Intensitäten der einzelnen Emissionsorte recht schwach sind und dadurch die Messzeit maßgeblich beeinflussen.

## 6.1 Probenpräparation

Für die Transmissionsmessungen wurde die beidseitig polierte  $In_{0.19}Ga_{0.81}As$ -Multi-QW Probe #M941 verwendet. Diese Probe wurde mittels Molekularstrahlepitaxie in der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Forchel in Würzburg hergestellt. Die beidseitige Politur ist notwendig, damit das emittierte Licht aus den angeregten Quantenfilmen nicht an der Probenoberfläche gestreut wird.



Abbildung 6.1: (a) Schematische Darstellung der  $In_{0.19}Ga_{0.81}As$ -Multi-QW Probe #M941. (b) Resonantes Anregungsschema mit dem Brewsterwinkel von 75° für den Anregungslaser. Der Abstand des Laseraustritts ist abhängig von der Substratdicke.

#### 6.1. PROBENPRÄPARATION

Die Anregung der Quantenschichten erfolgt unter dem Brewsterwinkel  $\Theta_B = 75^{\circ}$  (Abschn. 4.1), damit möglichst kein Laserlicht an der Anregungsoberfläche reflektiert wird. In Abb. 6.1 ist das Anregungsschema dargestellt. Da das Licht bzw. die Energie des Anregungslasers nicht vollständig absorbiert wird, tritt ein Teil des Laserlichts an der rückseitigen Probenoberfläche wieder unter dem Brewsterwinkel aus. Der Versatz zwischen Eintrittsort und Austrittsort des Lasers ist hierbei abhängig von den Quantenfilmdicken und besonders von der Substratdicke. Der Abstand in Abb. 6.1 von 80  $\mu$ m bezieht sich auf eine Substratdicke von 300  $\mu$ m, zum Vergleich ist der Abstand von 140  $\mu$ m für ein 500  $\mu$ m dickes Substrat angegeben.

Im Experiment hat sich dieses Verhalten bei resonanter Anregung negativ auf die Qualität der Detektion der Quantenfilmemission ausgewirkt. D. h. da der Arbeitsabstand des Mikroskopobjektivs nur 3.5 mm beträgt und das Objektiv (MO2) zur optischen Abbildung in Transmission durch das dicke Substrat näher an der Probenrückseite steht als das gegenüberliegende Mikroskopobjektiv (MO1) an der Probenvorderseite, trifft der Austrittsstrahl das Mikroskopobjektiv (MO2) und wird dadurch stark gestreut. Da der Austrittsstrahl bedingt durch die Fokussierung auf Anregungsfläche divergent ist und eine räumliche Ausdehnung besitzt, wirkt sich dies besonders störend aus. Zusätzlich wird das Austrittslicht auch an der Probenaustrittsoberfläche gestreut, da die Probenoberfläche noch zu rauh für das Experiment ist. Das gestreute Laserlicht wird ebenfalls zusätzlich zur Resonanzfluoreszenz vom Mikroskopobjektiv eingesammelt. Dies hat spektral zur Folge, daß die Intensität des Rayleighpeaks wesentlich größer ist als die eigentliche Resonanzfluoreszenz. In der räumlichen Abbildung äußert sich dies durch eine sehr starke Streuintensität des "Laserstrahls". Um dieses Streuverhalten zu eliminieren, wurde auf die Substratseite eine Germaniumschicht zur Absorption des Austrittsstrahls mittels einer Aufdampfanlage aufgetragen. Da die verwendete Aufdampfanlage nur für das Auftragen dünner Schichten geeignet war, konnte keine definierte Schichtdicke erzielt werden. Im Experiment zeigte sich, dass die aufgetragene Germaniumschicht das Laserlicht gut absorbiert, allerdings trat trotz der Beschichtung immer noch ein geringer Anteil des Laserlichtes aus der Probe, der noch immer einen starken Einfluss auf die Messungen hatte. Bei den Transmissionsmessungen zeigte sich auch eine räumliche Verzerrung der abgebildeten Emissionsorte im Gegensatz zu den gleichzeitigen Messungen an der Anregungsseite. Diese räumlichen Verzerrungen kommen vermutlich durch die Dicke des Substrats selbst und durch dessen immer noch zu hohe Oberflächenrauhigkeit. Daher waren mit dieser Probe keine Transmissionsmessungen für resonante Anregung möglich. Die Oberflächenqualität, also die Polierqualität spielt auf beiden Seiten der Probe eine wesentliche Rolle.

### 6.2 Photolumineszenz-Spektren

Bei den spektralen Messungen der Photolumineszenz stört das reflektierende Laserlicht nicht, da die Wellenlänge bzw. die Energie des Anregungslasers weit von der spektralen Emission der Quantenfilme entfernt ist. Daher wurde die Probe #M941 hierauf hinsichtlich der "Reflexions"-PL-Spektren (Abb. 6.2) und "Transmissions"-PL-Spektren (Abb. 6.3) untersucht. Bei den Messungen zeigte sich, dass die PL-Intensitäten der Quantenfilme, bei gleicher Anregungsleistung und Anregungsenergie, bei der Transmissionsmessung wesentlich geringer waren als bei den Reflexionsmessungen. Die PL aus den 2 nm und 3 nm QWs konnte in Transmissionsrichtung gar nicht bzw. nur sehr schwach bei sehr hoher Anregung detektiert werden. Daher sind in Abb. 6.3 auch nur die PL-Linien für die drei größten Quantenfilme dargestellt. Im Gegensatz zur Abb. 6.2 musste hierfür der Anregungslaser zu höheren Energien und Anregungsleistungen verschoben werden. Die PL für den 15 nm QW weist spektrale Intensitätseinbrüche auf. Diese kommen vermutlich durch die Absorptionslinien von H<sub>2</sub>O in diesem Wellenlängenbzw. Energiebereich zustande. Dies ist auch sehr gut im Sonnenspektrum zu erkennen. Hier ist gerade im Bereich zwischen 930 nm und 970 nm eine starke Absorption durch H<sub>2</sub>O zu beobachten.



Abbildung 6.2: "Reflexions"-PL-Spektren der QW-Probe #M941. Im oberen Fenster ist die PL des 15 nm QW vergrößert dargestellt, die gestrichelte Linie enspricht der energetischen Lage der maximalen Transmissionsintensität für den gleichen QW.



Abbildung 6.3: "Transmissions"-Spektren der QW-Probe #M941. Die gestrichelte Linie enspricht der energetischen Lage des Intensitätsmaximums. Die Intensitätseinbrüche der PL des 15 nm QWs entstehen vermutlich durch H<sub>2</sub>O Absorption in der Luft.
## Kapitel 7

# Emissionsuntersuchungen an Micropillars

Mikrosäulen bzw. Mikrosäulenresonatoren (engl. Micropillars bzw. Microcavities) sind sehr kleine Zylinder im  $\mu$ m-Bereich mit geringem Volumen. Diese setzen sich aus mehreren Halbleiterschichten zusammen, die einen Bragg-Gitterreflektor bilden (DBR, engl. Distributed Bragg Reflector). Durch die Reflexion des Lichtes an der DBR-Struktur wird dieses genau wie bei einem Fabry-Pérot-Resonator in axialer Richtung eingegrenzt. Durch interne Totalreflexion an den Zylinderwänden wird das Licht in transversaler Richtung eingegrenzt [48]. Die Anzahl der optischen Moden sind in diesem Mikroresonator stark reduziert. Die Qualität eines Mikroresonators ist durch den Gütefaktor Q gegeben

$$Q = \frac{\omega_0}{\delta\omega} \propto \tau,\tag{7.1}$$

wobei  $\omega_0$  die Resonanzfrequenz und  $\delta\omega$  die spektrale Halbwertsbreite des Mikroresonators und  $\tau$  die Photonenlebensdauer ist. Somit ist die Halbwertsbreite der ausschlaggebende Faktor für die Qualität des Mikrosäulenresonators. Der Qualitäts- bzw. Gütefaktor ist ein Maß für die Lebensdauer eines Photons im Resonator. Die in der vorliegenden Arbeit verwendete Micropillar-Probe #C1397-9.3 wurde mittels Molekularstrahl-Epitaxie und Ätzverfahren in der Arbeitsgruppe von Prof. Forchel an der Universität Würzburg hergestellt. Die DBR Struktur besteht aus einer Vielzahl GaAs/AlAs-Schichten mit einer jeweiligen Dicke von  $\frac{\lambda}{4}$ , die sich auf einem GaAs-Wafer (Substrat) befinden. Zwischen diesen Schichten befindet sich ein aktiver Bereich mit InGaAs-Quantenpunkten, der auch als eigentliche  $\lambda$ -Kavität bezeichnet wird, wobei  $\lambda$  die Kavitätsdicke ist. Die Probe besteht aus mehreren Feldern von Micropillars mit unterschiedlichen Durchmessern von 1.5  $\mu$ m und 3  $\mu$ m Feld zu sehen. Diese wurde mittels eines Rasterelektronenmikroskops (REM) zusammen mit Herrn Dr. Holzhüter von der Universität

### 102 KAPITEL 7. EMISSIONSUNTERSUCHUNGEN AN MICROPILLARS

Rostock, Institut für Physik aufgenommen. Damit die Details der Mikroresonatoren besser zu sehen sind, wurden einige Säulen abgebrochen. Da der Durchmesser der Säulen wesentlich geringer als deren Länge ist, brechen und biegen diese schon bei geringen Kräften. Bei den liegenden Mikroresonatoren ist deutlich die DBR-Struktur und die aktive Schicht zu erkennen.



Abbildung 7.1: Elektronenmikroskopieaufnahme der verwendeten Micropillarprobe #C1397-9.3. (a) Micropillar-Feld mit 3  $\mu$ m Durchmesser. (c) Micropillar-Feld mit 1.5  $\mu$ m Durchmesser. (b) und (d) Abgebrochene 3  $\mu$ m bzw. 1.5  $\mu$ m Micropillars, mit deutlich zu erkennender  $\frac{\lambda}{4}$ -GaAs/ $\frac{\lambda}{4}$ -AlAs-DBR Struktur und der aktiven Schicht ("GaAs-Kavität").

Die dunkleren und hellen Kreisflächen auf dem Substrat sind unterschiedlich dicke Halbleiterschichten, die durch das Ätzverfahren übriggeblieben sind. Wie dünn diese Schichten sind ist in Abb. 7.1 (c) sehr gut zu erkennen, hier haben sich Teile dieser Schicht von der Oberfläche des Substrats abgelöst und "aufgerollt". Einzelne Quantenpunkte auf der aktiven Schicht können in Abhängigkeit von der Temperatur mit der Resonatormode koppeln. Für diese Wechselwirkung läßt sich nach [39, 40] der Kopplungsfaktor

$$g = \sqrt{\frac{1}{4 \cdot \pi \cdot \varepsilon_r \cdot \varepsilon_0}} \cdot \frac{\pi \cdot e^2 \cdot f}{m_0 \cdot V_{M,eff}},$$
(7.2)

mit f der Quantenpunkt-Exziton-Oszillatorstärke,  $m_0$  der freien Elektronenmasse und  $V_{M,eff}$  dem effektiven Modenvolumen berechnen. Diese Kopplung kann mit dem Modell zweier gekoppelter harmonischer Oszillatoren beschrieben werden. Hieraus ergeben sich nach [40] für die wechselwirkenden Modenenergien

$$E_{1,2} = E_0 - i \cdot \frac{\Gamma_M + \Gamma_{QD}}{4} \pm \sqrt{g^2 - \frac{(\Gamma_M - \Gamma_{QD})^2}{16}},$$
(7.3)

mit *i* der imaginären Einheit,  $E_0$  der ungekoppelten Modenenergie,  $\Gamma_M$  der Halbwertsbreite der Resonator-Mode,  $\Gamma_{QD}$  der Halbwertsbreite der Quantenpunkt-Exziton-Mode und *g* dem Kopplungsfaktor. Aus dieser Gleichung lässt sich leicht die Bedingung für die Vakuum-Rabi-Aufspaltung

$$g^2 > \frac{(\Gamma_M - \Gamma_{QD})^2}{16},$$
 (7.4)

ableiten. D. h. für große Kopplungsfaktoren werden die Energien  $E_{1,2}$  in Resonanz aufgespalten. Der entstehende energetische Abstand zwischen den beiden Energien, ist hierbei die Kopplungsstärke zwischen dem Quantenpunkt-Exziton und dem Vakuumzustand der Haupt-Resonator-Mode. Durch diese Aufspaltung können die Resonator-Mode und die Emission des Quantenpunkt-Exzitons nicht mehr durch unabhängige Eigenfunktionen beschrieben werden.

Da im allgemeinen die Halbwertsbreite der Resonator-Mode wesentlich größer als die Halbwertsbreite der Emission des Quantenpunkt-Exzitons ist, kann die Bedingung für die starke Kopplung wie folgt vereinfacht werden

$$g > \frac{\Gamma_M}{4}$$
 für  $\Gamma_M \gg \Gamma_{QD}$ . (7.5)

Ist der Kopplungsfaktor kleiner als  $\Gamma_M/4$ , handelt es sich um schwache Kopplung. In diesem Fall ist die spontane Emission im Gegensatz zur starken Kopplung irreversibel und somit treten hier keine Rabioszillatoren auf. Die spektrale Halbwertsbreite des strahlenden Übergangs ist dann im Gegensatz zur Resonator-Mode wesentlich kleiner. Die spontane Emissionsrate wird im Bereich der schwachen Kopplung durch den Purcelleffekt bzw. durch den Purcellfaktor

$$P_F = \frac{3}{4 \cdot \pi^2} \cdot \frac{\lambda^3}{V_{M,eff}} \cdot Q, \qquad (7.6)$$

verstärkt, mit  $\lambda$  der Wellenlänge. Die Verstärkung hängt hierbei sehr stark von der Qualität und dem effektiven Modenvolumen des Mikroresonators ab. In den in dieser Arbeit durchgeführten Experimenten wurde die räumliche und spektrale Mode verschiedener gekoppelter Mikroresonatoren untersucht.

### 7.1 Anregungsschema

Um die Quantenpunkte und den gekoppelten Mikroresonator resonant anzuregen, musste der  $4\pi$ -Kryostat umgebaut werden. Damit das Streulicht des Anregunslasers nicht die eigentliche Resonanzfluoreszenz unterdrückt, konnte nicht wie in Abschnitt 4.1 über den Brewsterwinkel angeregt werden, da die Mikroresonatoren in diskreten Abständen verteilt sind. Daher wurden die Mikroresonatoren von der Seite über ein Mikroskopobjektiv MO3 (Mitutoyo Apo SL 50x) mit einer Brennweite von 4 mm, einer NA von 0.42 und einem Arbeitsabstand von 20.5 mm angeregt. In Abb. 7.2 ist das Anregungsschema dargestellt.



Abbildung 7.2: Schematische Darstellung der seitlichen Anregung im  $4\pi$ -Kryostaten eines einzelnen Micropillars mittels Mikroskopobjektiv MO3 und der Kollimation des emittierten Lichtes des MPs. (MMP, Micropillar-Probe)

Das Mikroskopobjektiv MO3 befindet sich ebenfalls im Vakuum. Über die Brennweite der Tubuslinse, die sich ausserhalb des  $4\pi$ -Mikroskopkryostaten befindet kann das Abbildungsverhältnis und somit die Größe der Anregungsfläche eingestellt werden. Die Anregungsfläche kann somit jeweils auf den Durchmesser eines einzelnen Mikroresonators angepasst werden. Da allerdings die seitliche Manteloberfläche des Resonators rauh ist, wird ein Teil des Laserlichtes gestreut. Um den Einfluß des gestreuten Laserlichtes zu eliminieren, wurde das nach vorn emittierte Licht mit dem 100-fach vergrößernden Nikon Objektiv MO1 auf eine verstellbare Punktlochblende abgebildet.

Die Länge der Mikroresonatoren beträgt ca. 6  $\mu$ m, daher mußte die Probe für die seitliche Anregung speziell präpariert werden, damit der Fokuskegel der Laseranregung nicht von der Substratkante abgeschnitten und gestreut wird. Hierzu wurde der Wafer der Probe so dicht wie möglich an den Mikroresonatoren gebrochen. Hierdurch konnte nur jeweils die oberste Reihe der Mikroresonatoren verwendet werden. In Abb. 7.1 (a) ist die Bruchkante und der Abstand dieser zu den im Durchmesser von 3  $\mu$ m großen Mikroresonatoren deutlich zu erkennen. Die Bruchkante ist allerdings nicht über die gesamte Länge der Probe gerade. Dadurch kann es Bereiche geben, in denen der Abstand der Mikroresonatoren zur Kante zu groß für die Anregung ist, oder einige Mikroresonatoren abgebrochen sind.

Durch die Bruchkante und der rauhen Manteloberfläche ist die Fokussierung des Anregungslasers etwas problematisch. In Abb. 7.3 ist jeweils eine seitliche Mikroskopieaufnahme von oben mittels des Anregungsobjektivs M01 (Mitutoyo Apo SL 50x) ohne Anregungslaser (a) und mit fokussiertem Anregungslaser (b) auf die Bruchkante in Falschfarben dargestellt. In Abb. 7.3 (b) ist zusätzlich deutlich eine leichte Schräglage der Mikroresonatoren zu erkennen, diese kommt durch die Probenkontaktierung auf den Probenhalter zustande. Damit das emittierte Licht nicht schräg abgebildet wird, kann mit Hilfe der Probenverkippung des  $4\pi$ -Mikroskopkryostaten dieser Einfluss kompensiert werden.

Um die Fokussierung des Anregungslasers auf einen einzelnen Mikroresonator genau einzustellen, mußte die Laseranregung gleichzeitig mit dem vorderen Mikroskopobjektiv MO1 (Nikon CFI LU PLAN EPI ELWD 100x) beobachtet werden. In Abb. 7.4 ist solch eine Mikroskopieaufnahme in geringer Vergrößerung zu sehen. In diesem Beispiel ist deutlich zu erkennen, daß der Anregungslaser einen Teil der Bruchkante trifft und dadurch stark gestreut wird. Die einzelnen diskreten Punkte in der Abbildung sind die Frontflächen einer Matrix von gleichen Mikroresonatoren der Probe #C1397-9.3. Zusätzlich sind auch Licht-Streueffekte an Staubkörnern, die sich in der Matrix befinden, zu erkennen. Dieser Effekt lässt sich leider durch die Probenpräparation nicht vermeiden. Damit bei der späteren resonanten Anregung nicht zuviel Streulicht von diesen Staubkörnern detektiert wird, müssen Bereiche untersucht werden, in denen keine Staubkörner vorhanden sind. Gleichzeitig werden die Mikroresonatoren mit einer 100-fachen Vergrößerung auf eine Punktlochblende abgebildet.

Für Korrelationsmessungen wie in Kapitel 6 dient der symmetrisch angeordnete Messaufbau zur rechten Seite mit dem Mikroskopobjektiv MO2. In diesem Fall sollten sich die beschriebenen Streueffekte nicht auswirken, da die Abbildung der Resonanzfluoreszenz durch das Substrat (GaAs-Wafer) beinflusst wird. Allerdings wird durch die Substratdicke auch die Absorption und die Abbildungsqualität negativ beeinflußt.

### 7.1. ANREGUNGSSCHEMA



Abbildung 7.3: Seitliche Ansicht von oben der 1.5  $\mu$ m Micropillars mittels Mikroskopobjektiv MO3, bei einer Temperatur von 5 K aufgenommen. (a) ohne Laseranregung; (b) mit Laser-Anregungsfläche ( $\lambda_{Laser} = 806.14$  nm.) auf der GaAs-Wafer-Bruchkante.



Abbildung 7.4: Ansicht von vorne bei seitlicher optischer Anregung eines einzelnen 1.5  $\mu$ m MPs (Laser trifft noch den GaAs-Wafer). Bei einer Temperatur von 5 K und  $\lambda_{Laser} = 806.14$  nm.

### 7.2 Räumlich aufgelöste Emission

Zur Abbildung der räumlichen Mikroresonator-Mode auf den CCD-Detektor wurde jeweils ein einzelner Mikroresonator mit einer Energie  $E_{Laser}$  von 1.538 eV  $(\lambda_{Laser} = 806.14 \text{ nm})$  optisch angeregt. Diese Anregungsenergie ist weit von der Resonanzenergie der eingebetteten Quantenpunkte und der Fundamental- bzw. Haupt-Mode des Mikroresonators entfernt. Dadurch konnte mit Hilfe eines 850 nm Langpass-Kantenfilters das Laserstreulicht gefiltert und nur die reine Emission der Quantenpunkte und der Haupt-Mode detektiert werden.

In Abb. 7.5 sind zwei unterschiedlich vergrößerte räumliche Abbildungen mit verschieden angeregten Micropillar-Feldern bei einer Temperatur von 5 Kelvin zu sehen. Wie deutlich zu erkennen ist, bewirkt das Laserstreulicht offensichtlich auch eine optische Anregung anderer nicht direkt angeregter Mikroresonatoren, die mit unterschiedlicher Intensität Licht emittieren. Dieses Verhalten hängt stark davon ab, wie der direkt angeregte Mikroresonator vom "Laserfokus" getroffen wird. Da die Manteloberfläche gewölbt ist, wird das Laserlicht radial gestreut und trifft so abhängig vom Einfallswinkel andere Mikroresonatoren.



Abbildung 7.5: (a) Ansicht der PL-Emission von vorne bei exakter optischer Anregung eines einzelnen 1.5  $\mu$ m Micropillars. (b) Vergrößerte Abbildung der PL-Emission eines anderen optisch angeregten 1.5  $\mu$ m MPs. Bei einer Temperatur von 5 K und  $\lambda_{Laser} = 806.14$  nm.

In Abb. 7.5 (b) ist eine 100-fache Vergrößerung der räumlichen Resonatormode

### 7.2. RÄUMLICH AUFGELÖSTE EMISSION

eines 1.5  $\mu$ m Mikroresonators zu sehen. Ein Teil des Streulichtes des Anregungslasers ist noch an der oberen "Anregungskante" deutlich zu erkennen. Interssanterweise werden der nebenliegende und die direkt unterhalb des angeregten Mikroresonators liegenden Mikroresonatoren nicht optisch durch Streulicht angeregt. Gleichzeitig emittieren allerdings die weiter entfernten Mikroresonatoren, wobei insbesondere die Emissionsintensität des am weitesten entfernt liegenden, bezogen auf die "Streulichtanregung" am höchsten ist. Dies ist durch einfache radiale Streuung nicht eindeutig zu erklären. Weiterhin fällt auch die deutliche Ringstruktur der räumlichen Resonatormode auf. Eigentlich sollte es sich in diesem Fall bei der Haupt-Mode (Fundamentalmode) um eine homogen intensitätsverteilte  $TM_{00}$ -Mode handeln. Um festzustellen, ob dieses Verhalten durch die optische Abbildung zustande kommt, wurden Messungen an unterschiedlich großen Mikroresonatoren (im Durchmesser) in Abhängigkeit vom Abbildungsfokus des Mikroskopobjektivs MO1 durchgeführt. In Abb. 7.6 ist jeweils eine einzeln direkt optisch angeregte räumliche Mode für einen 1.5  $\mu$ m und 3.0  $\mu$ m Resonator in Intensitätshöhendarstellung bei zwei verschiedenen Abbildungsfoki des Mikroskopobjektivs MO1 dargestellt. Hierzu wurde der Fokus durch den Piezotisch nur um einige 25 nm Schritte verstellt. In (a) und (b) ist deutlich zu erkennen, dass die Gesamtintensität der Ringmode (a) wesentlich höher ist als die vermeintliche  $TM_{00}$ -Mode. Dies ist ein Hinweis darauf, dass es sich offensichtlich bei der Ringmode um die Haupt-Mode handelt, da diese scharf abgebildet wird. Der untersuchte 3  $\mu m$  Mikroresonator zeigt ein ähnliches Verhalten auf. Hier konnte allerdings keine Ringmode beobachtet werden. Die maximale Intensität unterscheidet sich hier von (c) auf (d) nur um 4 Prozent, obwohl sich die beiden räumlichen Moden deutlich unterscheiden, der Fokus wurde nur einige 25 nm verändert.

In den Abbildungen der räumlichen Mode sind zusätzlich noch größere Ringstrukturen zu erkennen, die je nach unterschiedlichem Fokus näher an oder weiter entfernt von der eigentlichen räumlichen Mode liegen. In Abb. 7.7 ist zur deutlicheren Darstellung dieses Verhaltens die Intensität jeweils bis zum Intensitätsmaximum dieser Ringe abgeschnitten worden. Im Vergleich mit den berechneten Transversalen Moden (TM) aus [41, 42, 43], ist deutlich zu erkennen, daß es sich bei diesen "Ringintensitäten" nur um die geringeren Intensitätsbeiträge der räumlichen Haupt-Mode handeln kann. Aufgrund der Abstände der beiden großen Intensitätsringe zur räumlichen Haupt-Mode kann davon ausgegangen werden, dass es sich jeweils in Abb. 7.6 bei (a) und (d) um die scharfe Abbildung handelt, da die Intensitätsringe deutlich räumlich voneinder getrennt sind und die maximale Intensität der Haupt-Mode am größten ist. Somit entspricht die räumliche Haupt-Mode des betrachteten 1.5  $\mu$ m Mikroresonators einer Ringmode (engl. "doughnut mode").

Die räumliche Mode des 3  $\mu$ m Mikroresonators entpricht allerdings auch keiner TM<sub>00</sub>-Mode. Da bei der räumlichen Abbildung nicht nur die eigentliche Haupt-Mode sondern auch noch die PL Emission der eingebetteten Quantenpunkte mit



Abbildung 7.6: Intensitäts-Höhendarstellung der PL eines direkt optisch seitlich angeregten Micropillars. (a) und (d) Fokus des MO1-Mikroskopobjektivs jeweils auf maximale Emissionsintensität abgeglichen. (b) und (c) Fokus des MO1-Mikroskopobjektivs jeweils rein visuell abgeglichen.  $I_{Max,(b)} =$  $0.77 \cdot I_{Max,(a)}$  und  $I_{Max,(c)} = 0.96 \cdot I_{Max,(d)}$ ;  $E_{Laser} = 1.538$  eV  $(\lambda_{Laser} = 806.14$  nm). (T = 5 K)



Abbildung 7.7: Schnitt der Intensitäts-Höhenverteilung von obiger Abbildung. (a) 25% von  $I_{Max,(a)}$ ; (b) 40% von  $I_{Max,(b)}$ ; (c) 23% von  $I_{Max,(c)}$ ; (d) 20% von  $I_{Max,(d)}$ . (T = 5 K)

abgebildet wird, ist das resultierende Ergebnis eine Summe aus beiden Emissionen und beeinflusst so die tatsächliche räumliche Ausdehnung der Haupt-Mode.

### 7.3 Photolumineszens-Spektren

Zur spektralen Untersuchung wurde das emittierte Licht des direkt optisch angeregten Mikroresonators räumlich auf eine Punktlochblende und danach auf den Spalt des SPEX Spektrometers abgebildet und spektral aufgelöst gemessen. In Abb. 7.8 ist das Spektrum des 1.5  $\mu$ m Mikroresonators für die entprechende Messung aus Abschnitt 7.2 bei einer Temperatur von 5 Kelvin dargestellt. Die Haupt-Mode emittiert mit der höchsten Intensität, zu höheren und niedrigen Energien liegen unterschiedlich "zufällig" verteilte spektral breite Quantenpunktemissionen. Die energetische Lage dieser Quantenpunktemissionen ist abhängig von der Temperatur, daher kann durch gezieltes Verändern der Temperatur eine "Quantenpunktemission" mit der Haupt-Resonator-Mode gekoppelt werden.



Abbildung 7.8: PL-Spektren eines einzeln optisch angeregten 1.5  $\mu$ m Micropillars und diversen Quantenpunkten aus der aktiven Schicht bei einer Anregungsenergie von 1.538 eV und einer Anregungsleistung von einigen nW.

In Abb. 7.9 sind die einzelnen spektralen Haupt-Moden für drei im Durchmesser unterschiedliche Mikroresonatoren mit unterschiedlicher Quantenpunktkopplung ((a) und (b)) bei einer Temperatur von 5 Kelvin dargestellt.



Abbildung 7.9: PL-Emissionsspektrum für drei unterschiedliche Mikroresonatoren und unterschiedlicher Kopplung mit Quantenpunkten.



Abbildung 7.10: PL-Emissionsspektrum (1.5  $\mu$ m Mikroresonator) eines gekoppelten Quantenpunkt-Resonatormode(1)-Systems mit einer Vakuum-Rabi-Aufspaltung von 67  $\mu$ eV bei optischer Anregung, mit einzeln angepassten Lorentzlinien für die Emissionslinien. Die rote Linie entspricht der Summe der einzeln angepassten Lorentzlinien.

#### 7.3. PHOTOLUMINESZENS-SPEKTREN

Bei (c) handelt es sich um eine reine Haupt-Mode ohne Quantenpunktkopplung. Aus den Spektren wurde nach Gl. 7.1 der Gütefaktor der Mikroresonatoren (a)  $Q_{\rm MP\ 1.5\ \mu m} = 16000$  und (c)  $Q_{\rm MP\ 4\ \mu m} = 15000$  bestimmt. Der Güte- bzw. Qualitätsfaktor ist somit sehr hoch, was für eine sehr hohe Qualität der Probe spricht. In (a) ist deutlich zu erkennen, dass die Kopplung zwischen der Haupt-Resonator-Mode und einem einzelnen Quantenpunkt bzw. eines Quantenpunkt-Exzitons sehr stark sein muss. Durch diese starke Kopplung des Quantenpunkt-Mikroresonator-Systems kommt es zur Vakuum-Rabi-Aufspaltung für kohärente Zustände. D. h. die Energie nach Gl. 7.3 wird unter einem gewissen Abstand in zwei Energiebeiträge aufgespalten (Vakuum-Rabi-Oszillatoren). In Abb. 7.10 ist dieser Abstand für das gekoppelte System aus 1.5  $\mu$ m Haupt-Mode(1) mit Quantenpunkt mittels jeweiliger Lorentzanpassung bestimmt worden. Die Vakuum-Rabi-Aufspaltung beträgt in diesem Fall 67  $\mu$ eV. Über diesen Abstand konnte mittels der Gleichung 7.2 ein Kopplungsfaktor von 40  $\mu eV$  bestimmt werden. Nach Gl. 7.5 kann der Schwellwert von schwacher zu starker Kopplung bestimmt werden, da die Linienbreite der Haupt-Resonator-Mode(1)  $\Gamma_M = 80 \ \mu eV$  beträgt, liegt der Schwellwert bei  $20\mu eV$ . Somit ist der Kopplungsfaktor g doppelt so groß wie der Schwellwert, d. h. es handelt sich somit um eine starke Kopplung des Haupt-Moden-QD-Systems.

Desweiteren ist in Abb. 7.10 neben der Haupt-Resonator-Mode(1) eine zweite um  $-175 \ \mu eV$  verschobene Mode(2) (Q = 15000) zu erkennen. In [44] und [45] wurden die gleichen spektralen Ergebnisse bezüglich der Vakuum-Rabi-Aufspaltung und der zweiten Mode erzielt. Allerdings wurde in [44] bzw. [45] elektronisch angeregt und das Auftreten der zweiten Mode wurde durch eine asymmetrische elektronische Kontaktierung begründet, da in [46] eine homogene räumlich elliptische Mode gemessen wurde. In unserem Fall wurde optisch angeregt und es konnte gleichzeitig zur spektralen Aufspaltung eine räumliche Ringmode beobachtet werden. D. h. die zweite spektrale Resonator-Mode kann nicht durch die elektronische Kontaktierung zustande kommen, sondern könnte mit der räumlichen Ringmode zusammenhängen. Diese Ringmode ist offensichtlich bei den 1.5  $\mu$ m Mikroresonatoren in Abb. 7.5 stets die Haupt-Mode. Ob dies durch den Wachstumsprozess oder durch die starke Kopplung mit dem Quantenpunkt-Exziton und die daraus folgende Vakuum-Rabi-Aufspaltung zustande kommt, konnte bis jetzt noch nicht hinreichend bestimmt werden, da für eine genaue Aussage des Kopplungsgrades eine temperaturabhängige Messung durchgeführt werden muss. Die Aussage über die starke Kopplung stützt sich auf das identische spektrale Ergebnis aus den elektrisch angeregten Messungen aus [46].

Interessanterweise zeigt der 3  $\mu$ m Mikroresonator ein ähnliches Verhalten. In Abb. 7.9 (b) ist deutlich eine Kopplung mehrerer Quantenpunkte mit der Haupt-Resonator-Mode zu sehen, die entsprechende räumliche Mode ist in Abb. 7.6 (d) dargestellt. Auch hierbei entspricht die räumliche Resonatormode nicht der TM<sub>00</sub>-Mode.

Diese Ringstrukturen könnten allerdings auch durch die beugungsbegrenzte Auf-

lösung (Abschnitt 3.2) zustande kommen. Für die durchgeführten Messungen an den Mikroresonatoren, betrug die rechnerisch bestimmte beugungsbegrenzte Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium

$$\Delta a = \frac{0,61 \cdot 950 \text{ nm}}{0.8} = 0.725 \ \mu \text{m} \ . \tag{7.7}$$

Der im Durchmesser von 1.5  $\mu$ m große Mikroresonator liegt dicht an dem Wert von  $\Delta a$ . Allerdings kann hiermit nicht die Ringmode, mit dem Intensitätseinbruch in der Mitte begründet werden, da bei einem reinen Beugungsmuster die Intensität in der Mitte maximal ist. Dies würde für die räumliche Mode des im Durchmesser von 3  $\mu$ m großen Mikroresonators zutreffen (Abb. 7.6 (d)). Allerdings ist in diesem Fall der Durchmesser um das 4-fache größer als die berechnete beugungsbegrenzte Auflösung, so dass es unwahrscheinlich ist, das die beobachteten Ringstrukturen nur durch die Auflösungsbegrenzung entstehen.

Um dieses Verhalten noch näher zu untersuchen, müssten temperaturabhängige und somit kopplungsabhängige Untersuchungen bezüglich der spektralen und räumlichen Eigenschaften der Mikroresonatoren durchgeführt werden.

## Kapitel 8

## Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde die Resonanzfluoreszenz von durch Unordnung lokalisierten Exzitonen über die räumliche Intensitätsverteilung untersucht. Hierzu konnte eigens ein spezieller Durchflußkryostat mit integrierten Mikroskopobjektiven mit hoher Numerischer Apertur von 0.8 für die Detektion in beiden Raumrichtungen, der sogenannte  $4\pi$ -Mikroskopkryostat entwickelt und gebaut werden. Ein weiterer Vorteil des neuen Kryostaten ist die vertikale- und horizontale- sowie die Kipp-Probenpositionierung bei gleichzeitiger Kühlung bis 5 Kelvin. Gleichzeitig wurde ein experimenteller Aufbau unter Berücksichtigung der "Köhlerschen Beleuchtung" realisiert, um eine hohe räumliche Auflösung mit möglichst wenig Intensitätsverlust zu gewährleisten.

Es hat sich gezeigt, dass die maximale theoretische räumliche Auflösungsbegrenzung, welche für die verwendeten Nikon Mikroskopobjektive 620 nm beträgt, im Experiment erreicht werden konnte. Somit hatten die kleinsten Intensitätsverteilungen, die von lokalisierten Exzitonen herrühren, eine räumliche Ausdehnung von 620 nm bei einer Temperatur von 5 Kelvin. Bei der Untersuchung dieser kleinsten Strukturen hinsichtlich einer Mollow-Triplett Aufspaltung (Zwei-Niveau-System) wie sie bei einzelen Atomen beobachtet wurde, zeigte sich mit Erhöhung der Anregungsdichte ein anderes Verhalten. D. h. bei resonanter Anregung des 1s-Exzitons eines einzelnen leuchtenden Flecks brach das Spektrum der Resonanzfluoreszenz bei einer hohen Anregungsdichte zusammen und es war nur noch der Anregungslaser zu sehen. Dieses Verhalten konnte als Übergang vom gebundenen Zustand (Exziton) zum ungebundenen Elektron-Loch-Plasma identifiziert werden. Wobei dieser Ubergang der sogannte Mottübergang ist. Die experimentellen Ergebnisse stimmen sehr gut mit den theoretischen Brechnungen von Herrn Dr. Manzke überein. Im Experiment konnte auch die theoretisch vorrausgesagte Verschiebung der exzitonischen Emissionslinie zu höheren Energien bei tiefen Temperaturen (T $\leq$  12 K) und die Verschiebung zu niedrigen Energien bei höheren Temperaturen (T > 12 K) gemessen werden.

Desweiteren konnte mittels Resonanzscans gezeigt werden, daß die spektrale Linienbreite mit der räumlichen Ausdehnung der einzelnen unterschiedlich großen Intensitätsflecken zusammenhängt, d. h. bei größerer räumlicher Ausdehnung ist auch die spektrale Linie des 1s-Exzitons breiter. Bei Erhöhung der Temperatur und gleichzeitiger resonanter Anregung zeigte sich eine deutliche Veränderung der Intensitätsverteilung. Insbesondere ab einer Temperatur von 25 Kelvin wurden die einzelnen Intensitätsflecken immer größer und deutlicher voneinander getrennt. Für dieses Verhalten konnte ein einfaches Modell entwickelt werden, was davon ausgeht, dass es durch die Kopplung der Exzitonen an die Phononen zu einer spektralen exzitonischen Linienverbreiterung mit zunehmender Temperatur kommt und diese zu einer breiteren Resonanzlinie führt. Dadurch entsteht eine "Überlappung" der Resonanzen der unterschiedlich verteilten Exzitonen, was sich in einer räumlich und spektral verbreiterten Intensitätsverteilung äußert. Für die Exziton-Phonon-Kopplung wurde der temperaturabhängige Verlauf der spezifischen "akustische Phononen"-Wärmekapazität  $C_V$  und der Debye-Temperatur  $T_D$  nach dem *Debye-Modell*, sowie das temperaturabhängige Verhalten der optischen Phononen (Bose- bzw. Boltzmannverteilung) berücksichtigt, da bei diesem Verlauf ein starker linearer Anstieg ab einer Temperatur von 25 Kelvin zu höheren Temperaturen auftritt, was auch im Experiment beobachtet wurde. Mit Hilfe des Pässler-Modells, das auch die Exziton-Phonon Wechselwirkung berücksichtigt [34] konnte durch Anpassung an die Messwerte die Temperaturabhängigkeit der nicht linearen Verschiebung der Resonanzenergie erklärt werden.

Zusätzlich zu den temperaturabhängigen räumlichen Veränderungen wurden die spektralen resonanten Eigenschaften bei höheren Temperaturen untersucht. Hierbei zeigte sich zum einen, dass bei höheren Temperaturen bei energetisch höheren Quantenfilmen an der Stelle des 1s-Exzitons eine Absorptionskante auftritt. Zum anderen konnte bei hohen Temperaturen beobachtet werden, dass mit zunehmender Anregungsleistung das Resonanzfluoreszenzspektrum bei räumlich sehr groß ausgedehnten Intensitätsflecken im Gegensatz zu kleineren keine Veränderungen aufweist. Ob es sich hierbei um radiativ gekoppelte Zustände und somit um Superfluoreszenz oder um Mittelungseffekte, die durch die inhomogene Verbreiterung zustande kommen, handelt, müsste in weiteren Messungen untersucht werden. Weiterhin müsste das in dieser Arbeit entwickelte Modell bezüglich sogenannter Dicke-Zustände [38, 47] erweitert werden, da diese die "Exzitonen-Cluster" und die daraus resultierende Betrachtung eines "Super-Zustands" berücksichtigen.

Weiterhin wurden in dieser Arbeit mit Hilfe der  $4\pi$  Anordnung der Mikroskopobjektive "Transmissions-" und "Reflexions-Messungen" nach [2] durchgeführt. Bei den Messungen stellte sich allerding heraus, dass die Qualität der Probenoberfläche, die Substratdicke und der geringe Arbeitsabstand vom Mikroskopobjektiv in Transmissionsrichtung essenziell für die Qualität der Messergebnisse ist.

Im letzten Teil der Arbeit wurde die unterschiedlich starke Kopplung von Quantenpunkt-Exzitonen mit Mikrosäulenresonatoren unterschiedlicher Durchmesser untersucht. Hierzu wurde der  $4\pi$ -Mikroskopkryostat bezüglich eines dritten internen Mikroskopobjektivs zur seitlichen Anregung einzelner Mikrosäulenresonatoren zwecks Streulichtunterdrückung erweitert. Für einen Mikroresonator mit einem Durchmesser von 1.5  $\mu$ m und einem Gütefaktor Q von 16000 konnte bei einer Temperatur von 5 Kelvin und gleichzeitiger optischer Anregung eine starke Kopplung mit Rabi-Aufspaltung von 67  $\mu$ eV und einer zweiten Resonator-Mode beobachtet werden. In [44] wurde das Gleiche beobachtet, allerdings wurde hier elektronisch angeregt und die zweite Resonator-Mode durch die schräge Kontaktierung begründet.

Zusätzlich zu den spektralen Messungen konnte im Experiment durch die optische Probenanregung die räumliche Resonator-Mode detektiert werden. Hierbei zeigte sich, dass es sich bei der Grundmode des 1.5  $\mu$ m Mikroresonators wahrscheinlich um eine Ringmode und bei einem 3  $\mu$ m Mikroresonator mit schwacher Kopplung mehrerer Quantenpunkte ebenfalls um eine von der  $TM_{00}$ -Mode verschiedene Resonator-Mode handelt. Inwiefern die räumliche Mode von der Quantenpunkt-Kopplung oder Herstellung des Mikroresonators abhängt, müsste in weiteren Experimenten untersucht werden. Hierzu müssen weitere temperaturabhängige Messungen verschieden gekoppelter Mikroresonatoren durchgeführt werden. Weiterhin können durch das realisierte Anregungsschema Resonanzfluoreszenzmessungen an gekoppelten Quantenpunkt-Mikroresonator-Systemen durchgeführt werden. Da der Mikroresonator in beide Richtungen das Licht emittiert, kann dieses auch durch die beiden Mikroskopobjektive im  $4\pi$ -Mikroskopkryostaten z. B. für Korrelationsmessungen mittels Homodyn-Verfahren untersucht werden.

## Literaturverzeichnis

- A. Aspect and M. Inguscio, "Anderson localization of ultracold atoms", Physics Today, August 2009.
- [2] W. Hoyer, M. Kira, S. W. Koch, H. Stolz, S. Mosor, J. Sweet, C. Ell, G. Khitrova, and H. M. Gibbs, "Entanglement between a Photon and a Quantum Well", Phys. Rev. Lett. 93, 067401 (2004).
- [3] P. Bozsoki, P. Thomas, M. Kira, W. Hoyer, T. Meier, S. W. Koch, K. Maschke, I. Varaga, and H. Stolz, "Characterization of Disorder in Semiconductors via Single-Photon Interferometry", Phys. Rev. Lett. 99, 227402 (2006).
- [4] H. Stolz, M. Kira und S. W. Koch, "Quantenoptik in Halbleitern", Physik Journal 7 (2008) Nr. 6.
- [5] Ch. Kittel, "Einführung in die Festkörperphysik", Verlag R. Oldenburg, München, 1999.
- [6] C. F. Klingshirn, "Semiconductor Optics", Springer-Verlag Berlin und Heidelberg, 1997.
- [7] N. Peyghambarian, S.W. Koch, A. Mysyrowicz, "Introduction to Semiconductor Optics", Prentice-Hall, Inc. A Simon & Schuster Company Englewood Cliffs, New Jersey 07632, 1993.
- [8] R. Zimmermann, K. Kilimann, W.D. Kraeft, D. Kremp, and G. Röpke, "Dynamical Screening and Self-Energy of Excitons in the Electron-Hole Plasma", phys. stat. sol. (b) 90 175 (1978).
- [9] D. Kremp, M. Schlanges, W.D. Kraeft, "Quantum Statistics of Nonideal Plasmas", Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2005.
- [10] F. J. Rogers, H.C. Graboske, Jr., and D.J. Harwood, "Bound Eigenstates of Static Screened Coulomb Potential", Phys. Rev. A 1 1577 (1970).
- [11] F. X. Bronold, and H. Fehske, "Possibility of an excitobic insulator at the semiconductor-semimetal transition", Phys. Rev. B, 74, 165107 (2006).

- [12] D. Semkat, F. Richter, D. Kremp, G. Manzke, W.-D. Kraeft, and K. Henneberger, "Ionisation equilibrium in an excited semiconductor: Mott transition versus Bose-Einstein condensation", Phys. Rev. B, 80, 155201 (2009).
- [13] J. S. Blakemore, "Semiconducting and other major properties of gallium arsenide", J. Appl. Phys. 53 R123 (1982).
- [14] S. Rudin, T. L. Reinecke, and B. Segall, "Temperature-dependent exciton linewidths in semiconductors", Phys. Rev. B 42, 11218 (1990).
- [15] H. Stolz, "Time-Resolved Light Scattering from Excitons", Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1994.
- [16] S. Eshlaghi, "Dissertation,  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  Quantentöpfe: MBE-Wachstum, Charakterisierung und laterale Modulation fokussierter Ionenstrahlen", Universität Bochum, 2000.
- [17] M. Leuschner, "Dissertation, Ortsaufgelöste Spektroskopie an Halbleiterstrukturen", Universität Marburg, 2004.
- [18] D. Schwedt, "Dissertation, Räumlich und spektral hochaufgelöste Spektroskopie der Resonanzfluoreszenz an Exzitonen in ungeordneten Halbleiterfilmen", Universität Rostock, 2005.
- [19] E. Runge, R. Zimmermann, "Optical Properties of Localized Excitons in Nanostructures: Theoretical Aspects in Advances in Solid State Physics 38", Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg, 1999.
- [20] E. Runge, "Exzitons in Semiconductor Nanostructures", In: Ehrenreich, H. (Hrsg.): Solid State Pysics: Advances in Research and Application Bd. 57., New York: Academic Press, 2002, S. 149-305.
- [21] Ch. Nacke, "Dissertation, Phasensensitive Spektroskopie an GaAs-Quantenfilmen", Universität Rostock, 2001.
- [22] G. K. G. Burau, "Diplomarbeit, Kohärenzanalyse der Resonanzfluoreszenz von GaAs-Quantenfilmen", Universität Rostock, 2005.
- [23] B. R. Mollow, "Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level-Systems", Phys. Rev. 188, 1969-1975 (1969).
- [24] S. Ates, S. M. Ulrich, S. Reitenstein, A. Löffler, A. Forchel, and P. Michler, "Post-Selected Indistinguishable Photons from the Resonance Fluorescence of a Single Quantum Dot in a Microcavity", Phys. Rev. Lett. 103, 167402 (2009).

- [25] S. Ates, S. M. Ulrich, A. Ulhaq, S. Reitenstein, A. Löffler, S. Höfling, A. Forchel, and P. Michler, "Non-resonant dot-cavity coupling and its potential for resonant single-quantum-dot spectroskopy", Nature photonics, Advance online publication, DOI: 10.1038/NPHOTON.2009.215 (2009).
- [26] B. Seifert, "Dissertation, Phasensensitive Charakterisierung von klassischem und nichtklassischem Licht", Universität Rostock, 2004.
- [27] Ernst Abbe, Otto Lummer und Fritz Reiche, "Die Lehre von der Bildentstehung im Mikroskop von Ernst Abbe", Verlag von Friedrich Vieweg und Sohn, Braunschweig, 1910.
- [28] Otto Fischer, "Über die Abbe'sche Sinusbedingung", Pflügers Archiev European Journal of Physiology vol. 136, Number 1, Dezember 1910.
- [29] Miles V. Klein und Thomas E. Furtak, "Optik", Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1988.
- [30] Stefan Wilhelm, Bernhard Gröbler, Martin Gluch und Hartmut Heinz, "Die konfokale Laser Scanning Mikroskopie", Carl zeiss Jena GmbH.
- [31] H. Beyer und H. Riesenberg, "Handbuch der Mikroskopie", VEB Verlag Technik Berlin, 1998.
- [32] W. Demtröder, "Laserspektroskopie (Grundlagen und Techniken)", B. G. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1993.
- [33] D. Kühle, "Optik, Grundlagen und Anwendung", Verlag Harri Deutsch, Thun und Frankfurt am Main, 1998.
- [34] R. Pässler, "Parameter Sets Due to Fittings of the Temperature Dependencies of Fundamental Bandgaps in Semiconductors", phys. stat. sol. (b) 216 975 (1999).
- [35] G. Manzke, Q. Y. Peng, K. Henneberger, U. Neukirch, K. Hauke, K. Wundke, J. Gutowski, and D. Hommel, "Density Dependence of the Exciton Energy in Semiconductors", Phys. Rev. Lett. 80, No. 22, 4943-4946 (1998).
- [36] G. Manzke and K. Henneberger, "Quantum-Kinetic Effects in the Linear Optical Response of GaAs Quantum Wells", phys. stat. sol. (b) 234, No. 1, 233-241 (2002).
- [37] Ch. Nacke, H. Stolz, G. Manzke, and K. Henneberger, "Carrier-Induced Changes in the Phase Resolved Reflection of GaAs Quantum Wells", Europ. Phys. J. B 30, 303 (2002).

- [38] R. H. Dicke, "Coherence in Spontaneous Radiation Processes", Phys. Rev. 93,99 (1954).
- [39] S. Rudin, and T. L. Reinecke, "Oscillator model for vacuum Rabi splitting in microcavities", Phys. Rev. B 59, 10227 (1999).
- [40] L. C. Andreani, G. Panzarini, and J. M. Gérard, "Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory", Phys. Rev. B 60, 13276 (1999).
- [41] J. Wiersig, N. Baer, P. Gartner, F. Jahnke, M. Benyoucef, S. M. Ulrich, P. Michler, and A. Forchel, "Optical modes of semiconductor micropillars: a theory-experiment comparison", Optical Society of America (2003).
- [42] M. Benyoucef, S. M. Ulrich, P. Michler, J. Wiersig, F. Jahnke, and A. Forchel, "Correlated photon pairs from single (In,Ga)As/GaAs quantum dots in pillar microcavities", Journal of Applied Physics 97, 023101 (2005).
- [43] S. M. Ulrich, C. Gies, S. Ates, J. Wirsig, S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Löffler, A. Forchel, F. Jahnke, and P. Michler, "Photon Statistics of Semiconductor Microcavity Lasers", Phys. Rev. Lett. 98, 043906 (2007).
- [44] C. Kister, T. Heindel, C. Schneider, A. Rahimi-Iman, S. Reitzenstein, S. Höfling, and A. Forchel, "Demonstration of strong coupling via electrooptical tuning in high-quality QD-micropillar systems", Optics Express, 16, 15006, (2008).
- [45] A. Löffler, "Dissertation, Selbstorganisiertes Wachstum von (Ga)InAs/GaAs-Quantenpunkten und Entwicklung von Mikroresonatoren höchster Güte für Experimente zur starken Exziton-Photon-Kopplung", Universität Würzburg, 2008.
- [46] S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauss, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp, and A. Forchel, "AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150,000", Appl. Phys. Lett. 90, 251109-1-3 (2007).
- [47] W. Wieczorek, R. Krischek, N. Kiesel, P. Michelberger, G. Tóth, and H. Weinfurter, "Experimental Entanglement of a Six-Phonon Symmetric Dicke State", Phys. Rev. Lett. 103, 020504 (2009).
- [48] Bahaa E. A. Saleh und Malvin Carl Teich, "Grundlagen der Photonik", WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, 2008.
- [49] H. Haug, S.W. Koch, "Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors", Verlag: World Scientific; Singapore, New Jersy, London and Hang Kong; 1993.

- [50] J.R. Christman, "Festkörperphysik (Die Grundlagen)", R. Oldenbourg Verlag GmbH München, 1995.
- [51] R. Loudon, "The Quantum Theory of Light", Oxford University Press, New York, 1983.
- [52] K. Matsuda, T. Saiki, S. Nomura, M. Mihara, Y. Aoyagi, S. Nair, and T. Takagahara, "Near-Field Optical Mapping of Exciton Wave Functions in a GaAs Quantum Dot", Phys. Rev. Lett. **91**, 177401 (2003).
- [53] M. G. Raizen, R. J. Thompson, R. J. Brecha, H. J. Kimble, and H. J. Carmichael, "Normal-Mode Splitting and Linewidth Averaging for Two-State Atoms in an Optical Cavity", Phys. Rev. Lett. 63, 240-243 (1989).
- [54] M. Young, "Optik, Laser, Wellenleiter", Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1997.
- [55] G. Czycholl, "Theoretische Festkörperphysik (Von den klassischen Modellen zu modernen Forschungsthemen)", Vieweg-Verlag, Braunschweig/Wiesbaden, 2000.
- [56] H. Haferkorn, "Optik, Physikalisch-technische Grundlagen und Anwendungen", WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, 2003.
- [57] D. Gammon, E. S. Zimmermann, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, D. Park, "Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots", Phys. Rev. Lett. 76, No. 16, 3005-3008 (1996).
- [58] D. Schwedt, "Diplomarbeit, Hochaufgelöste resonante Rayleigh-Streuung an GaAs-Quantenfilmen", Universität Rostock, 2000.
- [59] D. Schwedt, Ch. Nacke, H. Stolz, S. Eshlahi, D. Reuter, A. Wieck, "Homogeneous linewidth of quantum well excitons from resonance fluorescence spectra", Phys. Stat. Sol. B 240 (2003) No.1, 9-18.
- [60] D. Schwedt, Ch. Nacke, H. Stolz, S. Eshlahi, S. Reuter, A. Wieck, "Spectrally resolved resonant Rayleigh scattering from excitons in GaAs quantum wells", Phys. Rev. B 67 (2003) 195303.
- [61] D. Meschende, "Optik, Licht und Laser", B. G. Teubner Stuttgart-Leipzig, 1999.
- [62] H. Haferkorn, "BI-LEXIKON Optik", VEB Bibliographisches Institut Leipzig, 1988.
- [63] H. Stöcker, "Taschenbuch der Physik", Verlag Harri Deutsch, Thun und Frankfurt am Main, 2000.

[64] I.N. Bronstein, K.A. Semendjajew, G. Musiol, H. Mühlig, "Taschenbuch der Mathematik", Verlag Harri Deutsch, Thun und Frankfurt am Main, 2000.

# Veröffentlichungen und Tagungsbeiträge

### Veröffentlichungen

- [V1] G. K. G. Burau, G. Manzke, F. Kieseling, H. Stolz, D. Reuter, and A. Wieck, "Nonlinear Behaviour of the Resonance Fluorescence from Excitons in Quantum Wells", Journal of Physics (2010)
- [V2] G. K. G. Burau, G. Manzke, F. Kieseling, H. Stolz, "Mott-Transition and Electron-Hole-Plasma from Excitons in Quantum Wells", in Vorbereitung
- [V3] G. K. G. Burau, H. Stolz, "Resonance Rayleigh scattering from localized Excitons in Quantum Wells by different Temperature", in Vorbereitung

#### sonstige Veröffentlichungen

[V4] Wiebke Loseries und G. K. G. Burau, "Objektkunst, Stark vergrößerte Abbildung von speziell bearbeiteten Metallgeweben", (figurativesense, Kunst und Wissenschft, 19. Kunstschau), Künstlerbund Mecklenburg und Vorpommern e. V. im BBK, Stadtdruckerei Weidner GmbH, Rostock (2009)

### Konferenzbeiträge

- [K1] Gerolf Burau, Birger Seifert, and Heinrich Stolz, "Coherence properties of the resonance fluorescence from GaAs Quantum Wells", (Poster), DPG Frühjahrstagung Dresden, (2006)
- [K2] G. K. G. Burau, H. Stolz, D. Reuter, and A. Wieck, "Spatially resolved resonance fluorescence from quantum wells: A tool to study exciton wavefunctions", (Poster), Nonlinear Optics And Excitation Kinetics In Semiconductors (NOEKS 9), Klink/Müritz, (2008)
- [K3] G. K. G. Burau, H. Stolz, D. Reuter, and A. Wieck, "Spatially resolved resonance fluorescence from quantum wells: A tool to study exciton wave-

functions", (Poster), International Conference on "Correlation Effects in Radiation Fields", Rostock-Warnemünde, (2008)

- [K4] G. K. G. Burau, H. Stolz, D. Reuter, and A. Wieck, "Spatially resolved resonance fluorescence from quantum wells: A tool to study exciton wavefunctions", (Poster), DPG Frühjahrstagung Dresden, (2009)
- [K5] G. K. G. Burau, G. Manzke, F. Kieseling, H. Stolz, D. Reuter, and A. Wieck, "Nonlinear Behaviour of the Resonance Fluorescence from Excitons in Quantum Wells", (Poster), Optics of Excitons in Confined Systems 11 (OECS 11), Madrid, (2009)
- [K6] R. Löffler, G. K. G. Burau, and H. Stolz, "Characterisation of non-classical radiation generated in semiconductor systems using multi-pixel photon detectors", (Poster), DPG Frühjahrstagung Hannover, (2010)
- [K7] G. K. G. Burau, G. Manzke, F. Kieseling, and H. Stolz, "Distribution of resonance fluorescence from excitons in quantum wells at different temperatures", (Poster), DPG Frühjahrstagung Regensburg, (2010)

### DANKSAGUNG

### Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. Stolz, der mir diese Arbeit ermöglicht hat und stets mit seiner Unterstützung und seinen Hinweisen sehr hilfreich war.

Bei der gesamten Arbeitsgruppe Halbleiterphysik möchte ich mich für ihre Unterstützung in organisatorischen und fachlichen Dingen herzlich bedanken. Ganz besonders danke ich Dr. Matthias Seemann, Rico Schwartz, Dr. Frank Kieseling, Thomas Ahrens, Dr. Daniel Schwedt, Dr. Birger Seifert und Stephan Reiß. Herrn Dr. Gerd Rudlof danke ich sehr für seine Ratschläge auf technischem Gebiet. Frau Schoof und Frau Ahrens danke ich sehr für Ihre administrative Hilfe.

Für die Herstellung und technische Beratung diverser Bauteile des experimentellen Versuchsaufbaues danke ich der feinmechanischen Werkstatt des Instituts für Physik.

Für die Bereitstellung der Quantenfilmprobe#1294danke ich Prof. Wieck von der Ruhr-Universität Bochum.

Für die Bereitstellung der Quantenfilmprobe #M941 und der Micropillar-Probe #C1397-9.3 danke ich Prof. Forchel, Dr. Stephan Reizenstein und Caroline Kistner von der Universität Würzburg.

Für den Messaufenthalt und der sehr guten Zusammenarbeit an der Universität Stuttgart, danke ich Prof. Michler, Dr. Sven Ulrich und der gesamten Arbeitsgruppe.

Für die theoretischen Berechnungen bezüglich der Thematik des Mott-Übergangs, danke ich Dr. Günter Manzke, Universität Rostock.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich für die Finanzierung des Projekts im Rahmen der Schwerpunktprogramme: FOR 485/3 "Quantum Optics in Semiconductor Nanostructures" und SFB 652 "Strong correlations and collective effects in radiation fields: Coulomb systems, clusters and particles"

Meiner Familie danke ich für ihre moralische Unterstützung, Motivation und ihr Verständnis in allen Lebenslagen.

### Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig angefertigt und ohne fremde Hilfe verfasst habe, keine außer den von mir angegebenen Hilfsmitteln und Quellen dazu verwendet habe und die, den benutzten Werken inhaltlich und wörtlich entnommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Rostock, den 24. Februar 2010

Gerolf K. G. Burau

128