

# Optische Nanocharakterisierung GaN-basierter Quantenstrukturen für Mikrokavitäten

**Dissertation**

zur Erlangung des akademischen Grades

**doctor rerum naturalium**

**(Dr. rer. nat)**

genehmigt durch die Fakultät für Naturwissenschaften  
der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

von Dipl.-Phys. Gordon Schmidt

geb. am 06.09.1985 in Staßfurt

Gutachter: Prof. Dr. Jürgen Christen

Prof. Dr. Martin Eickhoff

eingereicht am: 24.01.2017

verteidigt am: 20.11.2017



# Kurzfassung

Die Gruppe III-Nitrid-Halbleiter eröffnen neue Wege für die Umsetzung von optoelektronischen Bauelementen aufgrund ihrer vorteilhaften Materialeigenschaften, wie z.B. eines großen Emissionsbereichs, bis Raumtemperatur beständige Exzitonen oder einer großen Kopplung zum Lichtfeld. Dies ermöglicht die Realisierung von bei Raumtemperatur betreibbaren Mikrokavitätsstrukturen (MC) wie vertikal emittierenden Oberflächenlasern (VCSEL) mit Emission im grünen bis UV-Bereich, Polaritonlasern oder Einzelphotonenemittern. In MCs eingebettete Quantenheterostrukturen sind hierbei nutzbringend für die Leistungsfähigkeit des Bauelements oder sogar wesentliche Voraussetzung.

In dieser Arbeit wird die leistungsfähige Methode der Kathodolumineszenzspektroskopie im Transmissionselektronenmikroskop (STEM-CL) bei Flüssig-Helium-Temperatur für die Charakterisierung von Gruppe III-Nitrid-basierten Quantenheterostrukturen, die als aktives Medium in nitridischen MCs eingesetzt werden, genutzt. Sowohl grundlegende STEM-CL-Parameter als auch physikalische Effekte, die bei der CL-Spektroskopie an STEM-Lamellen auftreten, werden analysiert.

Es werden neue Erkenntnisse zu optischen und strukturellen Eigenschaften von InGaN-Quantenfilmen (QW) auf Nanometerskala herausgearbeitet. Jene Quantenheterostrukturen agieren als aktives Medium in violett emittierenden MCs. Neue Befunde zum Emissionsverhalten von InGaN/GaN-QWs in Versetzungsnähe wurden erzielt: eine deutliche Verschiebung der QW-Emissionsenergie von bis zu 70 meV. Die kritische Verspannungssituation von QW-Schichtstapel wird anhand von 62 InGaN/GaN-QWs, die in einer GaN-MC eingebettet sind, analysiert. Hier wird die Überschreitung der kritischen Schichtdicke durch Verspannungsrelaxation des 32. QWs direkt visualisiert. Im Fall eines erfolgreich realisierten VCSELs wird die örtliche Unordnung der InGaN-QW-Emission quantifiziert.

Bedeutende Erkenntnisse wurden zur Bildung von GaN/AlN-Quantenpunkte (QD) an Versetzungen erlangt. Intensive Emission von GaN-Inseln, die aus einem GaN/AlN-QW-Wachstum resultieren, wurde aufgezeigt. Die Inseln bilden sich bevorzugt an Versetzungsbündeln, wo sie effizient Lumineszenz zwischen 220 nm und 310 nm emittieren. Äußerst schmale Emissionslinienbreiten von bis zu 440  $\mu\text{eV}$  zeigen das quantenpunktartige Verhalten der GaN-Inseln auf. Die Quantenpunktzustände werden strukturell QD-Anhäufungen in GaN-Inseln zugeordnet. Die QDs zeigen in Hanbury-Brown & Twiss-Experimenten Einzelphotonenemission mit deutlichem *antibunching*-Verhalten in der Korrelationsfunktion.



# Abstract

The group III-nitride semiconductors open a new degree of freedom for the design of optoelectronic devices due to their beneficial properties like the large tunable bandgap of their alloys, highly stable excitons up to room temperature as well as a large coupling to the light field. This enables the realization of microcavity (MC) structures like vertical cavity surface emitting lasers (VCSEL) emitting in the green to UV wavelength region, polariton lasers and single photon emitters operating at room temperature. Quantum heterostructures embedded in MCs are profitable for the device performance or are even a prerequisite.

In the submitted dissertation the powerful technique of cathodoluminescence spectroscopy in a scanning transmission electron microscope (STEM-CL) at liquid helium temperature is used for the characterization of group III-nitride based quantum heterostructures used as active media in nitride MCs. Essential parameters for STEM-CL microscopy like excitation conditions and physical effects occurring during CL spectroscopy on STEM lamellas like CL thickness dependence are experimentally and theoretically analyzed.

Insights into the optical and structural properties of InGaN/GaN quantum wells (QW) are worked out on nanometer scale. These quantum heterostructure act as active media in group III-nitride based violet emitting MCs. New findings on the emission behavior close to dislocations in the InGaN/GaN QW system are obtained: strong shifts of emission energies up to 70 meV towards the dislocations. The critical strain management of layer stacks is analyzed in case of a 62-fold InGaN multiple QW embedded in a GaN microcavity. CL spectral linescans allow directly visualizing the critical layer thickness in the QW stack resulting in the onset of plastic relaxation at the 32nd QW. Finally, the spatial disorder of the excitonic and cavity mode in case of a realized violet emitting VCSEL are analyzed.

Substantial findings are obtained for the formation of GaN/AlN quantum dots (QD) at dislocations. Intense emission from GaN islands embedded in AlN resulting from GaN/AlN quantum well growth is directly resolved by STEM-CL microscopy. Line widths down to 440  $\mu\text{eV}$  are measured in a wavelength region between 220 nm and 310 nm confirming QD like electronic properties in the islands. These quantum dot states can be structurally correlated to islands composed of QD conglomerate preferentially formed in vicinity to dislocations. The QDs exhibit single photon emission in Hanbury-Brown-Twiss experiments with a clear antibunching in the second order correlation function at zero time delay.



# Inhaltsverzeichnis

Titelseite	i
Kurzfassung	iii
Abstract	v
Inhaltsverzeichnis	vii
Einleitung	1
Grundlagen	7
<b>1 Grundlagen</b>	<b>9</b>
1.1 Allgemeine Eigenschaften der Gruppe III-Nitrid-Materialien . . . . .	9
1.2 Planare Mikrokavitäten . . . . .	13
1.2.1 Fabry-Pérot-Kavität . . . . .	13
1.2.2 Bragg-Reflektor . . . . .	15
1.2.3 Halbleitermikrokavitäten mit Bragg-Spiegeln . . . . .	19
1.3 Niederdimensionale Halbleiterstrukturen: aktives Medium in Mikrokavitäten	22
1.3.1 Quantenfilme . . . . .	23
1.3.2 Quantenpunkte . . . . .	24
1.3.3 <i>quantum-confined-Stark-effect</i> . . . . .	25
1.4 Statistische Eigenschaften von Licht . . . . .	27
1.4.1 Messung der Autokorrelationsfunktion . . . . .	29
1.5 Mikrokavitätslaser . . . . .	30
1.6 Einzelphotonenemitter . . . . .	32
Experimentelle Methoden	35
<b>2 Kathodolumineszenzspektroskopie im STEM</b>	<b>37</b>
2.1 Aufbau des STEM-CL-Messplatzes . . . . .	38

2.2	Rastertransmissionselektronenmikroskopie . . . . .	40
2.2.1	Sondendurchmesser und Elektronenstrahlaufweitung . . . . .	40
2.2.2	Abbildungsmodi im Rastertransmissionselektronenmikroskop . . . . .	42
2.3	Kathodolumineszenzspektroskopie . . . . .	46
2.3.1	Ortsauflösung . . . . .	46
2.3.2	Anregungsbedingungen . . . . .	49
2.3.3	Schichtdickenabhängigkeit der Kathodolumineszenz . . . . .	54
2.3.4	Strahlschädigung . . . . .	59
2.3.5	Dünnschichtinterferenzen . . . . .	64
 <b>Nitridische Mikroavitäten</b>		<b>69</b>
 <b>3 Nitridische MCs mit InGaN-QWs als aktives Medium</b>		<b>71</b>
3.1	Einfluss von Versetzungen auf InGaN-SQW-Eigenschaften . . . . .	73
3.1.1	Theoretische Aspekte zu Versetzungen im GaN . . . . .	73
3.1.2	InGaN/GaN-Quantenfilmlumineszenz um Versetzungen . . . . .	79
3.1.3	InGaN-SQW-Eigenschaften nahe einzelner Versetzungen . . . . .	83
3.2	Plastische Relaxation eines 62-fachen InGaN-MQWs . . . . .	88
3.2.1	Rotverschiebung der InGaN-Emission in Wachstumsrichtung . . . . .	90
3.2.2	Plastische Relaxation und kritische Schichtdicke . . . . .	92
3.3	Ladungsträgerlokalisierung im pseudomorph gewachsenen InGaN-MQW . . . . .	96
3.4	Örtliche Emissionseigenschaften eines violett emittierenden VCSELs . . . . .	101
3.4.1	Exzitonenische Unordnung des 13-fachen InGaN-MQWs . . . . .	102
3.4.2	Identifizierung der photonischen Mode . . . . .	106
3.4.3	Örtliche Kavitätsunordnung . . . . .	107
3.4.4	Lasungsverhalten unter optischem Pumpen . . . . .	109
3.5	Zusammenfassung des Kapitels . . . . .	111
 <b>GaN-Einzelphotonenemitter</b>		<b>113</b>
 <b>4 Quantenpunktemission von GaN-Inseln an Versetzungen</b>		<b>115</b>
4.1	Einfluss von Versetzungen auf die Quantenpunktbildung . . . . .	116
4.2	Nanoskopische Analyse der Lumineszenzverteilung . . . . .	116
4.3	STEM-CL-Spektroskopie an einzelnen GaN-Inseln . . . . .	120
4.4	Vertikaler Ladungsträgertransport . . . . .	124
4.5	Linienbreiten der Quantenpunktemission . . . . .	126
4.5.1	Inhomogene Linienverbreiterung durch spektrale Diffusion . . . . .	126
4.5.2	Halbwertsbreite von Emissionslinien unter quasiresonanter Anregung . . . . .	127

4.6	Lebensdauerbestimmung des Insel-Ensembles . . . . .	128
4.7	Photonenstatistik der Quantenpunktemission von GaN-Inseln . . . . .	131
4.8	Spektrale Diffusion: <i>jitter</i> - und <i>blinking</i> -Effekte . . . . .	132
4.9	Zusammenfassung des Kapitels . . . . .	135
<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>		<b>137</b>
<b>Anhang</b>		<b>143</b>
Literaturverzeichnis		145
Abkürzungsverzeichnis		161
Publikationsliste		165
Danksagung		171
Lebenslauf		175
Eidesstattliche Erklärung		177



# Einleitung



# Einleitung

Die gezielte Manipulation von Licht und Materie ist eines der ultimativen Ziele zur Entwicklung neuer designer Halbleiterbauelemente für hochtechnologische Anwendungen mit gewünscht zugeschnittenen physikalischen Eigenschaften. Eine fundamentale Veränderung von physikalischen Eigenschaften kann durch die Einschränkung der Freiheitsgrade von (Quasi-)Teilchen in Halbleitern erfolgen.

Bei Herabsetzung der Dimensionalität des physikalischen Systems treten im Fall von Elektronen und Löchern im Halbleiter Quantisierungseffekte der elektronischen Zustände auf. Seit dem Nachweis der Quantisierung in Halbleiterquantenstrukturen durch Dingle *et al.* [1] wurden Quantenfilme (QW), -drähte und -punkte (QD) zur Verbesserung des Leistungsvermögens von lichtemittierenden Halbleiterbauelementen eingesetzt [2, 3]. In Laserdioden reduzieren sich die Schwellwertströme durch die Verringerung der elektronischen Zustandsdichte mit Reduktion der Dimensionalität [4, 5]. Zusätzlich erhöht sich die Exzitonenbindungsenergie in den eingeschränkten Systemen, was eine persistente Existenz exzitonicer Effekte bei erhöhten Temperaturen nach sich ziehen kann [6]. Die vollständige Diskretisierung der elektronischen Niveaus wird im Fall eines Quantenpunkts erreicht, wodurch der Weg in die Quantenoptik eröffnet wird.

Die Kontrolle über die Eigenschaften des emittierten Lichtes kann analog zum elektronischen System durch Einschränkung der optischen Moden erfolgen. Diese Idee wurde erstmals von Purcell hervorgebracht, in dessen Mitteilung die erhöhte spontane Emissionswahrscheinlichkeit von Atomen in resonanten Kavitäten beschrieben wird [7]. Allgemein beschreibt der nach Purcell benannte Effekt die Modifikation der spontanen Emissionsrate eines optischen Übergangs in einem Resonator [8, 9]. Für Resonatoren, deren Ausdehnung in der Größenordnung der Lichtwellenlänge liegen, führt die Photoneneinschränkung zur Ausbildung diskreter optischer Moden. Diese als Mikroresonatoren bezeichneten Resonanzräume können u.a. in Form von planaren Mikrokavitäten (MC), zirkulären Mikroscheibchen, -säulen oder höherdimensionalen photonischen Kristallen auftreten. Allen gemein ist eine örtliche Modulation der dielektrischen Eigenschaften des Materials. Neben dem Purcelleffekt [10] können derartige photoneneinschränkende Systeme zur Kontrolle der Licht-Materie-Wechselwirkung [11] und der Lichtauskopplung [12] dienen.

Die Einbettung von Halbleiterquantenstrukturen in Mikrokavitäten bietet somit eine Manipulation und Optimierung beider Komponenten optoelektronischer Bauelemente, der optischen und elektronischen. Dies wird umgesetzt in vertikalemittierenden Oberflächen-

laserdioden, LEDs mit resonanter Kavität, Polaritonlaser und Einzelphotonenemitter. Jedoch ist die Veränderung der physikalischen Eigenschaften begrenzt auf die intrinsischen Eigenschaften des Materials.

Unter den vielfältigen Halbleitermaterialsystemen findet das Materialsystem der Gruppe III-Nitride dabei eine spezielle Beachtung. Die direkte Bandlücke, der breite abgedeckte Spektralbereich, die mögliche n- und p-Dotierbarkeit [13, 14], die chemische und thermische Robustheit, hohe Exzitononenbindungsenergien [15, 16, 17] und die große Oszillatorstärke optischer Übergänge [18] sind wesentliche Vorteile gegenüber anderen Materialsystemen. Die imposante Entwicklung der Forschung und Vermarktung der Gruppe III-Nitrid-Bauelemente ist dabei wesentlich den bahnbrechenden Arbeiten zur Realisierung blauer lichtemittierender Dioden [13, 19] und kantenemittierenden Laserdioden [20] von Shuji Nakamura, Hiroshi Amano und Isamu Akasaki zu verdanken. Heutzutage nimmt aufgrund des schnellwachsenden LED-Sektors dieses Material mit den binären Halbleitern AlN, GaN und InN den zweitgrößten Marktanteil der Halbleiterindustrie nach Silizium ein. Jedoch sind trotz der vielen physikalischen Vorteile der Gruppe III-Nitride und der Stimulation durch den LED-Markt im Gegensatz zu deren Arsenid-Pendant nur wenige forschungsrelevante Veröffentlichungen über erfolgreich realisierte Mikrokavitätsbauelemente vorzufinden. Von einer industriellen Fertigung und kommerziellen Nutzung ist bis zum heutigen Zeitpunkt ganz zu schweigen. Die immense thermische und Gitterfehlpassung der Gruppe III-Nitride zu den bisher zwangsläufig benötigten Fremdsubstraten wie Saphir und Silizium resultieren in schwerwiegenden Problemen in der Heteroepitaxie von III-Nitrid-Mikrokavitäten. Rissbildung, hohe Versetzungsdichten, Verspannungsrelaxation, Oberflächenaufrauung, örtliche Konzentrationsinhomogenitäten sollen nur als einige auftretende Probleme genannt sein.

Für das physikalische Verständnis und die Weiterentwicklung von Gruppe III-Nitrid-Mikrokavitäten und deren optisch aktive Medien, wie Quantenfilme oder -punkte, sind daher grundlegende Untersuchungen der Materialeigenschaften nötig. Zur Charakterisierung für diese Art optisch aktiver Nanostrukturen sind auf Nanometerskala operierende Experimente zwingend notwendig. Hier bietet die Kathodolumineszenzspektroskopie (CL) im (Raster-)Transmissionselektronenmikroskop (STEM-CL) eine Möglichkeit zur Erfassung der optischen, elektronischen, chemischen und strukturellen Eigenschaften auf Nanometerskala und ist eine wichtige Ergänzung der bereits etablierten CL-Spektroskopie im Rasterelektronenmikroskop (SEM-CL) [21, 22, 23]. Die enorme Leistungsfähigkeit der STEM-CL-Analysemethode wurde bereits in der Vergangenheit bestätigt [24]. In dieser Arbeit soll mit diesem mächtigen Werkzeug eine Charakterisierung der in Gruppe III-Nitrid-Mikrokavitäten eingebetteten Quantenstrukturen erfolgen.

In **Kapitel 1** der vorliegenden Arbeit werden zunächst die wichtigen physikalischen Grundlagen der auf den Gruppe-III-Nitriden basierenden Mikrokavitäten und die darin ein-

gebetteten Quantenstrukturen dargestellt. **Kapitel 2** stellt die Untersuchungsmethode der Kathodolumineszenzspektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop und deren Leistungsparameter vor und diskutiert physikalische Effekte, die bei der CL-Spektroskopie an elektronentransparenten Lamellen auftreten. In **Kapitel 3** werden die strukturellen und optischen Eigenschaften von InGaN/GaN-Quantenfilmen, die als aktives Medium in Gruppe III-Nitrid-Mikrokavitäten dienen, vorgestellt. Dabei werden die wichtigsten Probleme hinsichtlich des Einflusses von Versetzungen, Spannungsrelaxation, laterale Ladungsträgerlokalisierung und exzitonische Unordnung in InGaN/GaN-QWs erörtert. **Kapitel 4** widmet sich GaN/AlN-Quantenpunktstrukturen, die zukünftig als aktives Medium in Mikrokavitäten Einsatz finden sollen. Neue Erkenntnisse werden bezüglich der Bildung von Quantenpunkten an Versetzungen direkt mittels der STEM-CL-Methode abgebildet.



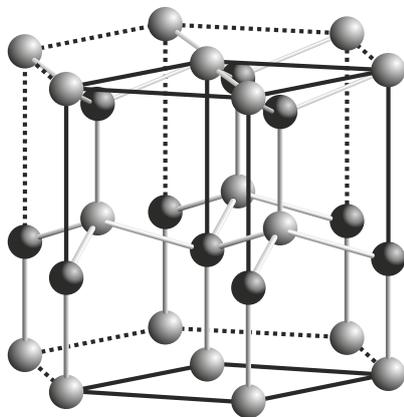
# Grundlagen



# 1 Grundlagen

## 1.1 Allgemeine Eigenschaften der Gruppe III-Nitrid-Materialien

Die nitridischen III-V-Halbleiter können in der Zinkblende-, NaCl- und Wurtzitstruktur vorkommen. Vorrangig kristallisieren sie jedoch aufgrund der höheren thermodynamischen Stabilität in der letztgenannten. In dieser Arbeit beziehen sich alle nachfolgenden Angaben auf die hexagonale Modifikation. Sie entsteht durch die Verschiebung zweier hexagonal dichtest gepackten Strukturen um  $3/8c$  entlang der  $c$ -Achse, wobei jeweils ein hcp-Gitter mit einer Atomsorte besetzt ist. Das Verhältnis der beiden Gitterkonstanten in  $[0001]$ -Richtung ( $c$ -Gitterkonstante) und basaler Ebene ( $a$ -Gitterkonstante) beträgt für die ideale Wurtzit-Struktur  $\sqrt{8/3}$ . Die Stapelfolge entlang der  $[0001]$ -Richtung lautet  $aAbBaAbB$ . Dabei erfolgt die Unterscheidung der Atomarten durch Groß- und Kleinschreibung. In Abbildung 1.1 ist die schematische Wurtzitstruktur von GaN dargestellt. Darin kann man erkennen, dass beispielsweise jedes Ga-Atom von 4 Stickstoffatomen umgeben ist. Diese tetraedrische Struktur kommt durch die Ausbildung von  $sp^3$ -Hybridorbitalen zustande. Die Gitterkonstanten für AlN, GaN und InN sind in Tabelle 1.1 eingetragen. Aufgrund der Gitterfehl-anpassung bzgl. Silizium/Saphir wird in allen drei Materialien eine tensile/kompressive Verspannung erzeugt. Bei der Heteroepitaxie auf Silizium/Saphir erfahren die nitridischen Schichten zusätzlich eine thermisch induzierte kompressive/tensile Verspannung beim Abkühlen von Wachstums- auf Raumtemperatur. Dies ist der hohen Fehl-anpassung der thermischen Ausdehnungskoeffizienten zwischen Silizium-/Saphir-Substrat



**Abbildung 1.1:** Wurtzitstruktur - Grau: Ga-Atome, Schwarz: N-Atome; primitive Einheitszelle (schwarze Linie), Bravaisgitter (schwarze Linie + Strichlinie).

und (Al,Ga,In)N zuzuschreiben. Bei ternären Materialien folgen die relaxierten Gitterkonstanten dem Vegardschen Gesetz und sind somit in linear abhängig von der Konzentration.

**Tabelle 1.1:** Gitterparameter von hexagonalem GaN, AlN und InN bei 300 K

	GaN	AlN	InN
a-Gitterkonstante (Å)	3,189	3,112	3,545
c-Gitterkonstante (Å)	5,185	4,982	4,982
Gitterfehlpassung bzgl. Si(111)	0,17	0,19	0,08
Gitterfehlpassung bzgl. c-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-0,16	-0,13	-0,29

### Bandstruktur

In der hexagonalen Kristallmodifikation liegen bei den nitridischen Halbleitern Leitungsbandminimum und Valenzbandmaximum am  $\Gamma$ -Punkt der Brillouinzone übereinander. Sie sind damit in die Klasse der direkten Halbleiter einzuordnen. In Folge der hexagonalen Struktur wird die energetische Entartung des Valenzbandes aufgehoben. Verantwortlich hierfür ist die Spin-Bahn-Wechselwirkung und die durch das Wurtzitgefüge hervorgerufene Kristallfeldaufspaltung. Die drei aufgespaltenen Valenzbänder werden in energetisch absteigender Reihenfolge als A-, B-, und C-Band bezeichnet. Die Bandlückenenergie von hexagonalem GaN beträgt 3,504 eV bei 2 K [25], von AlN 6,094 eV bei 10 K [26] und InN 0,69 eV bei 2 K [27].

Durch die ternären Verbindungen AlGa<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>N und InGa<sub>x</sub>Al<sub>1-x</sub>N kann ein großer energetischer Bereich der Bandlücke durch Konzentrationsvariation der Gruppe-III-Elemente kontrolliert werden. Unterschiedlichste Beiträge wie die Deformation der Gitterparameter, Ladungsträgeraustausch, Relaxation der Kation-Anion-Bindungslänge und Unordnung führen zu einer nichtlinearen Abhängigkeit der Energielücke von der Konzentration der Gruppe-III-Elemente:

$$E_g^{ABN} = E_g^{AN} \cdot [A] + E_g^{BN} \cdot [B] - b_{E_g}^{ABN} \cdot [A] \cdot [B]. \quad (1.1)$$

- $A, B$  – Gruppe-III-Elemente Al, Ga oder In
- $[A], [B]$  – Konzentration von A, B mit  $1 = [A] + [B]$
- $b_{E_g}^{ABN}$  – bowing-Parameter der Bandlücke von ABN

### Spontane Polarisation

Aufgrund des ionischen Charakters der Metall-Stickstoff-Bindungen, der reduzierten Kristallsymmetrie und der Abweichung des  $c/a$ -Verhältnisses bei hexagonalen Gruppe-III-Nitriden fallen der positive und negative Ladungsschwerpunkt nicht zusammen. Die Folge ist ein internes Polarisationsfeld, das selbst im unverspannten Zustand vorherrscht und umso größer ist, je größer die Bindungslänge zwischen Kation und Anion ist. Diese sogenannte spontane Polarisation beträgt nach Berechnungen im GaN  $-0,029 \text{ C/cm}^2$ , im AlN  $-0,081 \text{ C/cm}^2$  und im InN  $-0,032 \text{ C/cm}^2$  [28]. Damit ist das spontane Polarisationsfeld bei allen drei Gruppe-III-Nitriden antiparallel zur  $c$ -Achse ausgerichtet. Bei ternären Materialien zeigt die spontane Polarisation  $P_{sp}$  eine quadratische Abhängigkeit von der Konzentration der Gruppe-III-Elemente:

$$P_{sp}^{ABN} = P_{sp}^{AN} \cdot [A] + P_{sp}^{BN} \cdot [B] - b_{P_{sp}}^{ABN} \cdot [A] \cdot [B]. \quad (1.2)$$

$b_{P_{sp}}^{ABN}$  – bowing-Parameter der spontanen Polarisation von ABN

### Piezoelektrische Polarisation

Durch eine mechanische Deformation des Kristalls können die Ladungsschwerpunkte in (Al,Ga,In)N gegeneinander verschoben werden und es kann zur Bildung einer piezoelektrischen Polarisation kommen. Mit Hilfe der piezoelektrischen Konstanten und den Verzerrungen des Kristallgitters kann die piezoelektrische Polarisation berechnet werden:

$$\begin{pmatrix} P_{pz,x} \\ P_{pz,y} \\ P_{pz,z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e_{15} \epsilon_{xz} \\ e_{15} \epsilon_{yz} \\ e_{31} (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) + e_{33} \epsilon_{zz} \end{pmatrix}. \quad (1.3)$$

$P_{pz,x}$  – Komponenten der piezoelektrischen Polarisation

$e_{ij}$  – piezoelektrische Konstanten

$\epsilon_{ij}$  – Komponenten des Verzerrungstensors

Die piezoelektrischen Konstanten für GaN, AlN und InN sind der Tabelle 1.2 zu entnehmen. Die piezoelektrische Polarisation der ternären Legierungen sind dabei linear von der Konzentration der Gruppe-III-Elemente abhängig. Für die Berechnung der Gesamtpolarisation muss die Summe aus spontaner und piezoelektrischer Polarisation gebildet

## 1 Grundlagen

werden.

**Tabelle 1.2:** Piezoelektrische Konstanten von GaN, AlN und InN bei Raumtemperatur (theoretisch: (a) [28], experimentell: (b) [29], (c) [30], (d) [31])

	GaN	AlN	InN
$e_{31}$ (C/cm <sup>2</sup> )	-0,49 <sup>(a)</sup>	-0,60 <sup>(a)</sup>	-0,57 <sup>(a)</sup>
$e_{33}$ (C/cm <sup>2</sup> )	0,73 <sup>(a)</sup>	1,46 <sup>(a)</sup>	0,97 <sup>(a)</sup>
$e_{15}$ (C/cm <sup>2</sup> )	-0,30 <sup>(b)</sup>	-0,48 <sup>(c)</sup>	-0,22 <sup>(d)</sup>

## 1.2 Planare Mikrokavitäten

Eine optische Mikrokavität ist ein optischer Resonator, dessen räumliche Ausdehnung in der Größenordnung der Lichtwellenlänge liegt. Die Einschränkung des Lichtes wird durch hochreflektierende Spiegel oder durch Grenzflächenreflexion realisiert, wodurch eine Rezirkulation des Lichtes innerhalb der Mikrokavität stattfindet. Durch die endliche Abmessung der Kavität kommt es zur Ausbildung abzählbar vieler diskreter optischer Resonanzen, die als optische Moden bezeichnet werden. Für ein optisch aktives Medium, welches sich innerhalb einer Kavität befindet, erlauben diese Resonatorstrukturen die Kontrolle der Emissionseigenschaften, wie die räumliche Verteilung der abgestrahlten Leistung, die Emissionslinienform und die spontane Emissionsrate. Die einfachste Realisierung einer optischen Mikrokavität ist die eindimensionale Einschränkung des elektromagnetischen Feldes in Form einer planaren Mikrokavität. Nachfolgend soll auf die grundlegendsten Eigenschaften planarer Mikrokavitäten eingegangen werden. Für weitaus ausführlichere Beschreibungen und Darstellungen sei auf Lehr-/Fachbücher über optische Kavitäten, wie z.B. [32, 33, 34, 35, 36], verwiesen.

### 1.2.1 Fabry-Pérot-Kavität

Als einfache Geometrie für die Einschränkung eines elektromagnetischen Feldes gilt der Fabry-Pérot-Resonator, der aus einer zwischen zwei Spiegeln eingebetteten dielektrischen Schicht besteht. Die optischen Moden, die senkrecht zur Spiegelebene verlaufen, treten aufgrund der Bedingung für konstruktive Interferenz quantisiert auf:

$$k_{\perp} = j \frac{\pi}{n_c d_c}, \quad j \in \mathbb{N} \quad (1.4)$$

$$\text{mit } k_{\perp} = k \cos \theta. \quad (1.5)$$

- $k_{\perp}$  – senkrechte Komponente des Wellenvektors
- $n_c$  – effektiver Brechungsindex der Kavität
- $d_c$  – Schichtdicke der Kavität
- $\theta$  – Einfalls-/Ausfallswinkel
- $k$  – Betrag des Wellenvektors

In transversaler Richtung existiert hingegen ein Kontinuum an optischen Moden aufgrund des fehlenden lateralen Einschlusses. Damit stellen die Kavitätsmoden äquidistante Ebenen im reziproken Raum dar, die die  $k_{\perp}$ -Achse schneiden und parallel zu den ebenen Wellenvektorkomponenten  $k_{\parallel}$  verlaufen. Der Ebenenabstand im reziproken Raum vergrößert sich umso mehr, je kleiner die Kavitätsdicke ist. Hierin besteht der wesentliche Unterschied zwischen Mikrokavitäten und konventionellen Kavitäten. Bei Letzteren ist der Abstand der transversalen Eigenmoden im Frequenzraum wesentlich kleiner, sodass sich eine Vielzahl

## 1 Grundlagen

davon innerhalb des Stopbandes des verwendeten Spiegels befinden.

Aus Gleichung 1.5 kann die Energiedispersionsrelation abgeleitet werden. Dabei zeigt die Photonenenergie einen näherungsweise parabolischen Verlauf für  $k_{\parallel} \ll j\pi/(n_c d_c)$ . Somit kann für kleine Wellenvektoren die Effektiv-Masse-Näherung des Kavitätsphotons angewandt werden. Die Energiedispersion des Kavitätsphotons lautet:

$$E_{ph} = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_{\parallel}^2 + \left(\frac{j\pi}{d_c}\right)^2} \approx \frac{j\pi \hbar c_0}{n_c d_c} + \frac{\hbar^2}{2m_{ph}^*} k_{\parallel}^2, \quad (1.6)$$

$$\text{mit } m_{ph}^* = \frac{j\pi \hbar n_c}{c_0 d_c}. \quad (1.7)$$

- $E_{ph}$  – Energie der Photonenmode
- $\hbar$  – reduziertes Plancksches Wirkungsquantum
- $m_{ph}^*$  – effektive Masse der photonischen Mode
- $c_0$  – Vakuumlichtgeschwindigkeit

Die photonische Zustandsdichte gibt Auskunft über die Anzahl der optischen Moden je Energie. Wird das elektromagnetische Feld in einer Dimension eingeschränkt, wie im Fall des Fabry-Pérot-Resonators, zeigt die photonische Zustandsdichte eine lineare Abhängigkeit von der Energie mit abrupten Sprüngen, sobald eine weitere Mode mit der Energie  $E_{ph}$  existieren kann. Dies ist der Fall, wenn im reziproken Raum die Kugeloberflächen konstanter Energie eine Ebene bei  $k_{\parallel} = 0$ ,  $k_{\perp} = j\pi/(n_c d_c)$  berührt. Die photonische Zustandsdichte lautet für die Fabry-Pérot-Kavität [32]:

$$D_{ph}(E) = \frac{N_{ph} n_c^2}{2\pi \hbar c_0^2} E_{ph}. \quad (1.8)$$

- $D_{ph}(E)$  – photonische Zustandsdichte
- $N_{ph}$  – Anzahl aller möglichen photonischen Moden bei der Energie  $E_{ph}$

Zwei wichtige Parameter zur Beschreibung des Resonators ist zum einen der Qualitätsfaktor  $Q_c$ . Eine allgemeine Definition ist durch das Verhältnis der *gespeicherten* elektromagnetischen Energie in der Kavität zur Verlustrate des Lichtes durch die Spiegel gegeben. Damit lassen sich Verluste in Resonatoren durch den Qualitätsfaktor beschreiben. Vereinfacht lässt sich dieser durch das Verhältnis der Resonanzenergie zur Linienbreite ausdrücken  $Q_c = E_{ph}/\Delta E_{ph}$ . Zum anderen ist die Finesse  $F$  durch das Verhältnis des freien spektralen Bereiches zur Linienbreite der Kavitätsmode gegeben.

Mit Hilfe der Vielstrahlinterferenz-Methode kann die transmittierte Intensität als Funktion der Phase berechnet werden [37]. Die resultierende Airy-Formel beschreibt den Intensitätsverlauf des transmittierten Lichtes im symmetrischen, verlustfreien Fabry-Pérot-Resonator:

$$I_T = \frac{I_{max}}{1 + (2F/\pi)^2 \sin^2(k_{\perp} n_c d_c + 1/2[\phi_1 + \phi_2])}, \quad (1.9)$$

$$\text{mit } I_{max} = I_0 \frac{|t_1 t_2|}{(1 - |r_1 r_2|)^2}, \quad (1.10)$$

$$\text{und } F = \pi \frac{\sqrt{|r_1 r_2|}}{1 - |r_1 r_2|}. \quad (1.11)$$

$I_T$  – transmittierte Intensität

$F$  – Finesse

$I_0$  – Intensität der einfallenden Welle

$r_{1,2}$  – komplexer Reflexionskoeffizient des Spiegels 1 bzw. 2

$t_{1,2}$  – komplexer Transmissionskoeffizient des Spiegels 1 bzw. 2

$\phi_{1,2}$  – Phasenverschiebung bei Reflexion am Spiegel 1 bzw. 2

Aus Gleichung 1.9 kann die Transmission und über  $R = 1 - T$  die Reflektivität des Fabry-Pérot-Resonators berechnet werden. Das elektromagnetische Stehwellenfeld innerhalb des Resonators führt zu einer Feldverstärkung bei Resonanz. Dies äußert sich in einer Erhöhung der gemittelten Intrakavitätsintensität um  $(1 + |r_1 r_2|)/(1 - |r_1 r_2|)$  verglichen zur einfallenden Intensität [38]. Bei identischen Spiegeln mit 99 % Reflektivität erhält man eine 199-malige Verstärkung von  $I_0$  innerhalb der Kavität bei Resonanz. Jedoch muss die räumliche Lokalisierung des optischen Intrakavitätsfeldes in Betracht gezogen werden, um einen Emitter direkt damit zu koppeln.

### 1.2.2 Bragg-Reflektor

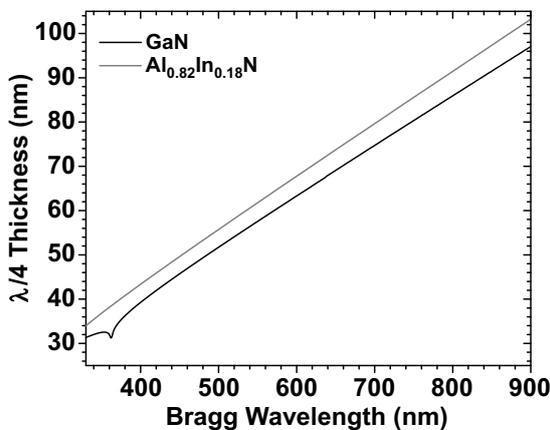
Aufgrund der relativ geringen Reflektivität von metallischen Spiegeln im sichtbaren und UV-Bereich werden für Mikrokavitäten in solchen Spektralbereichen herkömmlicherweise Bragg-Reflektoren (DBR) als Spiegel verwendet. Diese Bragg-Spiegel sind periodische Strukturen, die aus alternierenden Schichten unterschiedlicher Brechungsindizes bestehen. Die optische Dicke einer jeden einzelnen Schicht muss dabei die Bragg-Interferenzbedingung:

$$n_a d_a = n_b d_b = \frac{1}{4} \lambda_{Bragg} \quad (1.12)$$

- $n_{a,b}$  – Brechungsindex der Schicht  $a, b$   
 $d_{a,b}$  – Schichtdicke  
 $\lambda_{Bragg}$  – Bragg-Wellenlänge

erfüllen. Die Bragg-Wellenlänge markiert das Zentrum des Stoppbandes des DBRs. Die Bragg-Interferenzbedingung ist Voraussetzung für die konstruktive Interferenz der an den Grenzflächen der DBR-Schichten reflektierten Teilstrahlen. An jeder Grenzfläche wird ein Teil des einfallenden Strahls nach den Fresnel-Gleichungen reflektiert und transmittiert. Bei senkrechtem Einfall ist mit der Reflexion an der höherbrechenden Schicht ein Phasensprung von  $\pi$  verbunden, wohingegen bei der Reflexion am niederbrechenden Material kein Phasensprung stattfindet. Der Betrag des Reflexionskoeffizienten für jede Grenzfläche nimmt in diesem Fall sowohl für transversal elektrischer und transversal magnetischer Polarisation den Wert  $|n_a - n_b|/(n_a + n_b)$  an. Durch die Wahl der optischen Dicken zu  $\lambda_{Bragg}/4$  wird Sorge getragen, dass die Phasenverschiebung der sich an der Oberfläche überlagernden Strahlen genau einem ungeradzahigen Vielfachen von  $\pi$  entspricht. Die Superposition der reflektierten Wellen ist damit konstruktiv und ermöglicht eine hohe Reflektivität mit einer Phase von  $0^\circ$  bzw.  $180^\circ$  bei  $\lambda_{Bragg}$ . Abbildung 1.2 zeigt die  $\lambda_{Bragg}/4$ -Schichtdicken für GaN- bzw.  $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}$ -DBR-Schichten als Funktion der Bragg-Wellenlänge.

Alternativ lässt sich der DBR als eindimensionaler photonischer Kristall auffassen. In der lateralen Ebene besitzt der photonische Kristall kontinuierliche Translationssymmetrie. Senkrecht dazu ist aufgrund der periodisch abwechselnden Variation der Dielektrizitätskonstanten eine diskrete Translationssymmetrie gegeben. Für einen unendlich ausgedehnten photonischen Kristall sind die Lösungen der Helmholtzgleichungen für dieses periodische Problem Bloch-Moden. Die Bloch-Moden sind ebene Wellen mit der Blochwellenzahl  $K$ , die mit einer gitterperiodischen Funktion moduliert sind. Die Dispersionsrelation des un-



**Abbildung 1.2:**  $\lambda/4$ -Schichtdicken für GaN- bzw.  $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}$ -DBR-Schichten als Funktion der Bragg-Wellenlänge.

endlich ausgedehnten Bragg-Spiegels ergibt sich mit Hilfe der Transfermatrixmethode zu [36, 39, 40]:

$$\cos(K\Lambda) = \frac{1}{|t_{ab}t_{ba}|} \left\{ \cos\left(\pi \frac{E}{E_{Bragg}}\right) - |r_{ab}|^2 \cos\left(\pi \frac{n_a d_a - n_b d_b}{n_a d_a + n_b d_b} \frac{E}{E_{Bragg}}\right) \right\}. \quad (1.13)$$

- $K$  – Blochwellenzahl
- $\Lambda$  – Periode  $d_a + d_b$  des Bragg-Spiegels
- $t_{ab,ba}$  – Transmissionskoeff. für Übergang von Schicht  $a$  nach  $b$  bzw.  $b$  nach  $a$
- $r_{ab}$  – Reflexionskoeffizient für aus Schicht  $a$  einfallende Welle
- $E_{Bragg}$  – Bragg-Energie

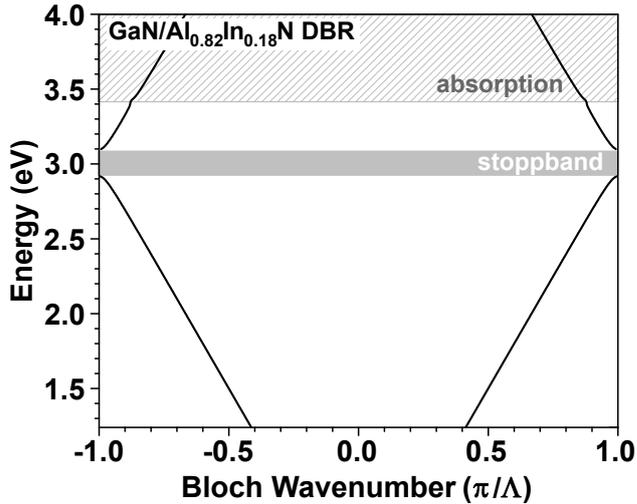
Die Bragg-Energie ist hier durch  $E_{Bragg} = hc/\lambda_{Bragg}$  gegeben. Die Transmissions-/Reflexionskoeffizienten ergeben sich aus den Fresnel-Gleichungen. Die Funktion  $\cos(K\Lambda)$  auf der linken Seite der Gl. 1.13 ist eine periodische Funktion in  $K$  mit der fundamentalen Raumfrequenz des Mediums  $2\pi/\Lambda$ , wodurch für eine gegebene Energie mehrere Lösungen möglich sind. Dabei führen Lösungen, die sich um ganzzahlige Vielfache von  $2\pi/\Lambda$  unterscheiden zu identischen Blochwellen. Die Dispersionsrelation kann also auf die erste Brillouinzone  $[-\pi/\Lambda, +\pi/\Lambda]$  reduziert werden. Erlaubte photonische Bänder ergeben sich aus Lösungen der Gleichung 1.13, bei denen die Blochwellenzahl rein real ist. Dies ist der Fall, wenn die rechte Seite der Gleichung 1.13 kleiner als eins ist [36, 39, 40]. Andernfalls ergeben sich optische Bandlücken, in denen der Blochwellenvektor einen nichtverschwindenden Imaginärteil besitzt und die propagierende Welle dämpft. Diese photonischen Bandlücken sind die bei DBRs genutzten Stoppbänder hoher Reflektivität. Die Grenzen des ersten Stoppbandes ergeben sich gerade, wenn die rechte Seite der Gleichung 1.13 eins wird. Dies liefert die Stoppbandbreite des DBRs [36, 39]:

$$\Delta E_{DBR} = \frac{4}{\pi} E_{Bragg} \arcsin\left(\frac{n_b - n_a}{n_a + n_b}\right) \approx \frac{4}{\pi} E_{Bragg} \frac{n_b - n_a}{n_a + n_b}. \quad (1.14)$$

- $\Delta E_{DBR}$  – Stoppbandbreite des DBRs
- $E_{Bragg}$  – zentrale Energie des Bragg-Spiegels

In Abb. 1.3 ist die Energiedispersionsrelation des gitterangepassten GaN/Al<sub>0,82</sub>In<sub>0,18</sub>N-DBRs mit  $\lambda/4$ -Schichten von  $d_{GaN} = 41 \text{ nm}$  und  $d_{AlInN} = 45 \text{ nm}$  für den senkrechten Einfall dargestellt. Wie hier betrachtet, sind im Fall des senkrechten Einfalls die Transmissions- bzw. Reflexionskoeffizienten von transversal elektrisch und transversal magnetisch polarisiertem Licht identisch. Dies ändert sich bei schrägem Einfall, was zu einer Abhängigkeit der Dispersionsrelation vom Einfallswinkel und Polarisationszustand führt.

Nach Gl. 1.14 wird die Stoppbandbreite im Wesentlichen durch den Brechungsindexkontrast der beiden DBR-Schichten vorgegeben. Je größer dieser ist, desto größer ist die Stopp-



**Abbildung 1.3:** Energiedispersionsrelation des unendlich ausgedehnten GaN/Al<sub>0,82</sub>In<sub>0,18</sub>N-Bragg-Spiegels bei senkrechtem Einfall.

bandbreite. Die Stopbandbreite wurde für einen gitterangepassten GaN/Al<sub>0,82</sub>In<sub>0,18</sub>N-Bragg-Spiegel als Funktion der Bragg-Energie nach Gleichung 1.14 berechnet (siehe Abb. 1.4), wobei die benötigten Brechungsindizes aus [41, 42] entnommen. Man erkennt eine monotone Zunahme der Stopbandbreite in Richtung GaN-Bandlückenenergie. Aufgrund der Absorption des optischen Lichtfeldes oberhalb der Bandlückenenergie von GaN stellt dies ein Grenzwert für die maximale Bragg-Energie dar. Innerhalb des Stopbandes des Bragg-Spiegels besitzt der Blochwellenvektor einen nichtverschwindenden imaginären Anteil. Es kommt es zur Dämpfung der propagierenden Welle innerhalb des photonischen Kristalls. Es lässt sich daraus eine Eindringtiefe des Lichtfeldes für einen unendlichen Bragg-Spiegel bei der Bragg-Wellenlänge definieren [36]:

$$L_{eff} = \frac{d_a + d_b}{\ln \frac{n_b}{n_a}}. \quad (1.15)$$

$L_{eff}$  – effektive Eindringtiefe

In Abbildung 1.4 ist die effektive Eindringtiefe für einen gitterangepassten GaN/AlInN-DBR in Abhängigkeit der Bragg-Energie dargestellt. Mit größer werdender Bragg-Energie ist eine Abnahme der Eindringtiefe zu erkennen.

Ein Bragg-Gitter mit einer großen aber endlichen Anzahl an DBR-Schichtpaaren besitzt in Bezug auf das unendliche Bragg-Gitter die gleichen Eigenschaften für die Durchlass- und Sperrbänder [40]. Jedoch ist die spektrale Transmission und Reflexion des endlichen DBRs von der Schichtanzahl stark abhängig. Die Reflektivität hat ein zentrales flaches Maximum innerhalb der photonischen Bandlücke, welche in einen oszillatorischen Bereich auf beiden Seiten des Stopbandes übergeht. Die maximale Reflektivität innerhalb der Mitte des Stopbandes eines endlichen Bragg-Spiegels mit  $N$  DBR-Paaren lässt sich nach:

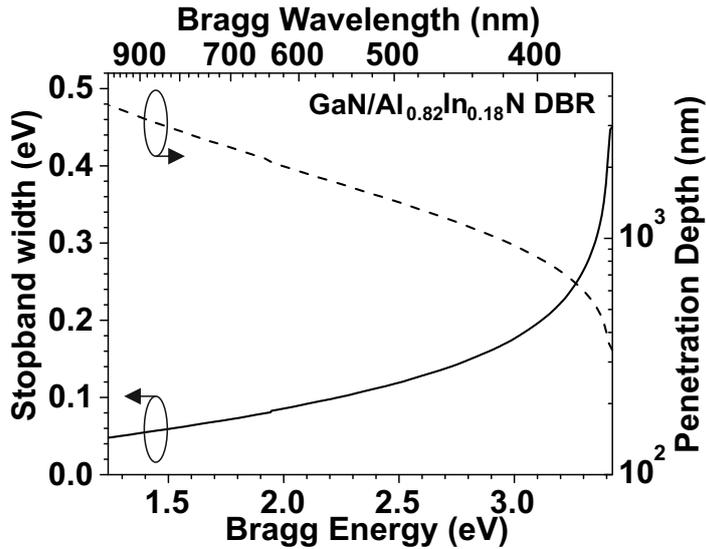


Abbildung 1.4: Theoretische Stopbandbreite und effektive Eindringtiefe des optischen Feldes bei einem unendlich ausgedehnten gitterangepassten GaN/AlInN-DBRs beruhend auf experimentell bestimmten Brechungsindizes der Schichten.

$$R = \left( \frac{1 - \frac{n_s}{n_o} \left( \frac{n_a}{n_b} \right)^{2N}}{1 + \frac{n_s}{n_o} \left( \frac{n_a}{n_b} \right)^{2N}} \right)^2 \quad (1.16)$$

$n_s$  – Brechungsindex des Substrats

$n_o$  – Brechungsindex des Materials auf der einfallenden Seite

$N$  – Anzahl der Schichtpaare

berechnen. Beruhend auf der konstruktiven Interferenz von reflektierten Wellen wird deutlich, dass durch eine Erhöhung der Anzahl an Grenzflächen ein größerer Anteil der einfallenden Welle reflektiert wird. Diese qualitative Überlegung wird durch Gl. 1.16 bestätigt. Eine Erhöhung der Reflektivität kann also durch eine Erhöhung der Anzahl an DBR-Paaren realisiert werden.

### 1.2.3 Halbleitermikrokaavitäten mit Bragg-Spiegeln

Planare Halbleitermikrokaavitäten können im Wesentlichen als Fabry-Pérot-Resonatoren verstanden werden, dessen hochreflektierende Spiegel durch Bragg-Reflektoren realisiert werden. Für III-Nitrid-Materialien besteht die Fabry-Pérot-Kavität aus einem Halbleitermaterial höheren Brechungsindex verglichen zur ersten angrenzenden DBR-Schicht. Antinoden des Stehwellenfeldes befinden sich damit an den Kavität-DBR-Grenzflächen. Die im Absatz 1.2.1 dargestellten Eigenschaften von konventionellen Fabry-Pérot-Kavitäten mit dünnen Spiegeln können übernommen werden, solange das Eindringen des elektromagnetischen Feldes in den DBR berücksichtigt wird. Die Parameter Kavitätstiefe und -brechungsindex müssen durch ihre Effektivwerte ersetzt werden. Die effektive Kavitätstiefe ergibt sich aus der Summe der geometrischen Kavitätstiefe und der Eindringtiefe

in den oberen und unteren DBR. Um dennoch die spektrale Charakteristik der Reflexion bzw. Transmission der realen planaren Mikrokavität vollständig zu erfassen, sind Transfer-Matrix-Berechnungen auf Grundlage des konkreten Aufbaus erforderlich.

### Nitrid-basierte Mikrokavitäten

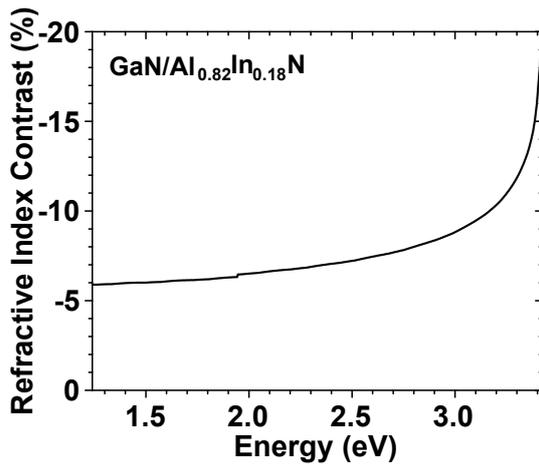
Der Brechungsindexkontrast der Schichten ist für die Materialauswahl von Bragg-Spiegeln ein wichtiges Kriterium. Je höher der Brechungsindexkontrast ist, desto breiter ist das sich ausbildende Stoppband und es werden weniger Schichtpaare zum Erreichen hoher Reflektivitäten benötigt. Allerdings steht für die Realisierung von Bragg-Spiegeln primär das erfolgreiche Kristallwachstum des Vielschichtstapels im Fokus. Aufgrund der hohen Gitterfehlpassung der drei binären Gruppe-III-Nitrid-Halbleiter InN, GaN und AlN ist eine beliebige Kombination dieser Materialsysteme zu DBR-basierten Mikrokavitäten im Hinblick auf den Verspannungszustand kritisch. Die Akkumulation von Verspannung im Schichtstapel kann zur Bildung von Versetzungen bis hin zu Rissen führen.

Im Fall der Kombination von AlN und InN zu Bragg-Spiegeln existiert der höchstmögliche Brechungsindexkontrast innerhalb dieses Materialsystems. Jedoch werden die beiden Binärhalbleiter bei völlig unterschiedlichen Wachstumsbedingungen gewachsen und besitzen eine enorme Gitterfehlpassung von 13,6%<sup>1</sup>. Damit ist ganz und gar einsichtig, dass bis zum jetzigen Zeitpunkt keine Veröffentlichungen zu AlN/InN-DBRs existieren. Für AlN/GaN-DBRs liegt ein vergleichsweise hoher Brechungsindexkontrast und eine signifikante Gitterfehlpassung von 2,4% vor. Es existieren nur wenige Berichte, die für diese Materialkombination rissfreie Schichten bei gleichzeitig hoher Reflektivität über 99% zeigen [43]. Durch die Wahl von AlN/GaN-Übergittern innerhalb der  $\lambda/4$ -Schichten sind dennoch hochreflektierende (>99%), rissfreie DBRs realisierbar [44].

Zur Vermeidung der Bildung von Rissen und Versetzungen ist der von Carlin und Ilegems vorgeschlagene und patentierte Ansatz zum Wachstum von vollständig gitterangepassten AlInN/(Al)GaN-Schichten äußerst nützlich [45]. Nach dem Vegardschen Gesetz besitzt eine AlInN-Schicht mit einer Konzentration von  $[\text{In}] = 18\%$  die gleiche  $a$ -Gitterkonstante wie GaN<sup>2</sup>. Der Brechungsindexkontrast dieser beiden Materialien in Abhängigkeit der Energie ist in Abb. 1.5 dargestellt und zeigt eine monotone Zunahme in Richtung GaN-Bandlückenenergie. Diese Zunahme führt, wie in Abb. 1.4 gezeigt, zu einer Verbreiterung der Stoppbande. Der Brechungsindexkontrast ist für Werte oberhalb der GaN-Bandlücke aufgrund der signifikanten Absorption des Lichtes innerhalb der GaN-Schichten für einen Bragg-Spiegel nicht von Bedeutung. Zu (Al)GaN gitterangepasste AlInN-Schichten ermöglichen damit bei moderatem Brechungsindexkontrast die Realisierung von rissfreien und

<sup>1</sup>Derartige Spiegel wären darüberhinaus aufgrund der Absorption von InN oberhalb der InN-Bandlücke auf den Infrarotbereich begrenzt

<sup>2</sup>Die Konzentration, bei der AlInN gitterangepasst auf GaN wächst, ist dabei auch vom Verspannungszustand der GaN-Schicht abhängig [46].



**Abbildung 1.5:** Brechungsindexkontrast der gitterangepassten Materialien GaN und AlInN als Funktion der Energie.

strukturell hochwertigen DBRs.

Für die Erweiterung von DBR-basierten Mikrokavitäten in den UV-Bereich kann GaN durch die ternäre Verbindung AlGa<sub>0.82</sub>In<sub>0.18</sub>N ersetzt werden und die Al-Konzentration in der AlInN-Schicht derart erhöht werden, dass weiterhin ein gitterangepasstes Wachstum möglich ist. Dies ist beispielsweise für die Kombination von Al<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>N/Al<sub>0.85</sub>In<sub>0.15</sub>N erfüllt.

## 1.3 Niederdimensionale Halbleiterstrukturen: aktives Medium in Mikrokavitäten

Analog zum Einschluss des optischen Feldes in einer Mikrokavität kann durch das Einbringen von Quantenheterostrukturen in die Kavität ein Einschluss der Ladungsträger erfolgen. Eine derartige Quantenheterostruktur kann durch eine Doppelheterostruktur realisiert werden, bei der Materialien unterschiedlicher Bandlücke kombiniert werden. Das Material geringerer Bandlücke ist im Material höherer Bandlücke eingebettet und stellt im Fall des Heteroübergangs Typ I ein attraktives Einschlusspotential sowohl für Elektronen als auch für Löcher dar<sup>3</sup>. Die Dicke der eingebetteten Schicht muss hierbei im Bereich der effektiven de-Broglie-Wellenlänge<sup>4</sup> liegen, wodurch die Zustandsdichte verglichen zum Volumenhalbleiter verändert wird und Quantisierungseffekte auftreten. Dies verändert die elektronischen bzw. optischen Eigenschaften radikal und es ergeben sich eine Reihe von Vorteilen bei Verwendung von Quantenheterostrukturen in Kavitäten.

Einer der Hauptaspekte ist die Auftrennung des optischen und elektrischen Einschlusses, wodurch eine separate Optimierung der optischen und elektrischen Komponente ermöglicht wird. Durch die willkürliche Positionierung der Quantenstruktur innerhalb der Kavität kann die Kopplung der elektrischen Dipole an das optische Feld unabhängig voneinander und gezielt angepasst werden, zumal das aktive Volumen der Quantenheterostruktur gegenüber dem vertikalen Einschluss der optischen Mode um mehrere Größenordnungen reduziert ist. Über die Anzahl der Quantenstrukturen kann die Dichte der elektrischen Dipole und damit die Kopplungsstärke an das optische Feld angepasst werden. Die Wellenlänge der vom aktiven Medium emittierten Photonen ist leicht über die Abmessungen der Quantenstrukturen veränderbar, wodurch eine unabhängige Einstellung der spektralen Verstimmung zwischen Kavitätsmode und Emission möglich ist. Zusätzlich ist die Oszillatorstärke aufgrund der Quanteneinschränkung erhöht, was zur hohen Effizienz der Lumineszenz von Quantenheterostrukturen beiträgt.

Die Einschränkung kann in einer, zwei, sowie allen drei Raumdimensionen durch die Herstellung von Quantenfilmen, Quantendrähten oder Quantenpunkten erfolgen. Moderne

---

<sup>3</sup>Bei Heteroübergängen findet an Materialgrenzflächen ein abrupter Sprung der Valenz- und Leitungsbandkanten statt, der eine Potentialbarriere für Ladungsträger darstellt. Diese Banddiskontinuitäten können je nach Materialkombination unterschiedliche Größen und Richtungen aufweisen. Es wird eine Einteilung der Heteroübergänge in Typ I, II und III vorgenommen. Bei Typ I besitzen die Diskontinuitäten an der Grenzfläche unterschiedliche Vorzeichen, wohingegen bei Typ II und III die Vorzeichen gleich sind. Letztere unterscheiden sich durch die Größe des Bandversatzes. Im Fall von Typ III ist dieser derart groß, dass sich keine durchgehende Bandlücke mehr ergibt und die Bandkanten des einen Materials vollständig in den Energiebereich eines einzelnen Bandes des anderen Materials fallen. Der Einfachheit halber soll hier lediglich Typ I betrachtet werden.

<sup>4</sup>Die effektive de-Broglie-Wellenlänge ist im Bild der Eielektronennäherung die Wellenlänge der einhüllenden Ladungsträgerwellenfunktion eines Teilchens im Energieband. Sie ist von der effektiven Masse und der Bandkantenenergie abhängig und ist um ein bis zwei Größenordnungen größer als die "klassische" de-Broglie-Wellenlänge von Elektronen.

Epitaxieverfahren wie der Molekularstrahlepitaxie (MBE) oder metallorganischen Gasphasenepitaxie (MOVPE) erlauben eine sehr präzise Kontrolle des Wachstums von Halbleiterschichten. Dies ermöglicht die Herstellung von Quantenheterostrukturen mit genau definierten Schichtdicken. Hier sollen im Folgenden lediglich die Eigenschaften von Quantenfilmen und -punkten vorgestellt werden.

### 1.3.1 Quantenfilme

Als Quantenfilm versteht man eine Quantenheterostruktur mit einer Ladungsträgereinschränkung in einer Raumrichtung, die in epitaktisch hergestellten Strukturen die Wachstumsrichtung ist. Parallel zur Wachstumsrichtung ist die Energie des Quantenfilms nicht länger kontinuierlich, sondern liegt quantisiert vor. Mit Verringerung der QW-Schichtdicke steigt die Quantisierungsenergie von Elektronen und Löchern monoton an. Aufgrund der geringeren effektiven Masse der Elektronen in Relation zu den Löchern, besitzen die Energieniveaus im Leitungsband einen größeren Abstand. Daher ist auch der Grundzustand der schweren Löcher näher an der Valenzbandkante als der der leichten Löcher. In lateraler Richtung existiert hingegen ein Kontinuum an erlaubten Energiezuständen. Damit wird in einem Quantenfilmsystem von Subbändern gesprochen.

Die elektronische Zustandsdichte jedes einzelnen Subbands entspricht der Konstanten  $m_{eff}/(\pi\hbar^2)$  ab der Energiekante des Subbandes. Die Zustandsdichte des QW-Systems ergibt sich aus der Summe über alle Subbänder bis zum betrachteten Energiewert. Damit zeigt die Zustandsdichte im Quantenfilm eine Stufenfunktion. Dadurch existiert im QW eine höhere Zustandsdichte im Grundzustand im Vergleich zum Volumenhalbleiter.

Durch die Coulombwechselwirkung von Elektron und Loch im Quantenfilm kommt es zur Kopplung dieser beiden Ladungsträgerarten und zur Energieabsenkung der Einteilchenzustände. Es bildet sich ein quasi-zweidimensionales Exziton. Aufgrund des modifizierten Abstands zwischen Elektron und Loch im QW ist die Bindungsenergie des QW-Exzitons im Vergleich zum Volumenexziton verändert. Der typische Wert für exzitonische Bindungsenergien in GaN-Volumenkristall beträgt 25–27 meV [47]. Im strikten zweidimensionalen Grenzfall, bei dem eine verschwindend geringe Quantenfilmdicke und unendlich hohe Barrieren angenommen werden, ist die Bindungsenergie der 2D-Exzitonen vier mal größer als für Volumenexzitonen. Diese Erhöhung kann auf die örtliche Einschränkung und damit größerer Coulombwechselwirkung zurückgeführt werden. Allerdings zeigt die Exzitonенbindungenergie für realistische Quantenfilme mit endlich hohen Barrieren eine Abhängigkeit von der Quantenfilmdicke.

### 1.3.2 Quantenpunkte

Quantenpunkte sind definiert über die Lokalisierung von beiden Ladungsträgerarten in allen drei Raumrichtungen, wodurch kein einziger Translationsfreiheitsgrad mehr existiert und in keiner Raumrichtung mehr ein klassischer Wellenzahlvektor angegeben werden kann. Im Fall von QDs ergibt sich eine vollständige Quantisierung, sodass die Energie der Ladungsträger im QD nur noch diskrete Werte annehmen kann. Die absolute und relative Lage der Energieniveaus wird durch die räumliche Struktur des Einschlusspotentials vorgegeben und hängt damit von der Form und Größe des QDs, sowie von der Materialkomposition und der Verspannung ab. Die Materialkomposition bestimmt die QD-Übergangsenergien, da diese die fundamentale Bandlücke des QD- und Matrixmaterials festlegt. Das ortsabhängige Verpannungsfeld beeinflusst über die Kristalldeformationspotentiale die Lage der Valenz- und Leitungsbandkanten und damit ebenfalls die Übergangsenergien. Die Größe und Form des QDs bestimmen maßgeblich die Quantisierungsenergien. Aufgrund des Pauli-Prinzips ist jedes Energieniveau spinentartet und kann mit je zwei Ladungsträgern mit entgegengesetzten Spins besetzt werden. Die Symmetrien der Wellenfunktionen der beiden ersten Elektron- und Lochzustände zeigen einen s-artigen Charakter auf und werden deshalb in Analogie zu Atomorbitalen auch s-Schale genannt. Dementsprechend werden höhere Energiezustände auch als p- bzw. d-Schalen benannt.

Die Zustandsdichte nimmt ebenfalls eine diskrete Form an und besteht aus einer Serie von Diracschen Deltafunktionen. Damit sind QDs das Analogon zu Atomen und werden deshalb auch als künstliche Atome bezeichnet. Nichtsdestotrotz ist dieser Vergleich mit Vorsicht zu behandeln. Denn es existieren große Unterschiede zwischen einem Atom und einem QD, wie z.B. die Stärke der Quantisierungseffekte, die Symmetrie des Einschlusspotentials oder Anzahl beteiligter Teilchen.

Wie im Fall des QWs spielt auch hier die Coulombwechselwirkung der Ladungsträger bei der Ausbildung von exzitonischen Komplexen eine entscheidende Rolle. Für die Bildung eines QD-Exzitons mit Ladungsträgern in der s-Schale können vier unterschiedliche Spin-Konfigurationen kreiert werden. Für dipolerlaubte exzitonische Übergänge muss der Gesamtdrehimpuls des Exzitons dem des Photons entsprechen. Die Anzahl der Konfigurationen reduziert sich damit auf die beiden Exzitonen mit der Kombination eines Elektrons mit Spin  $+1/2$  ( $-1/2$ ) und eines Lochs mit dem Gesamtdrehimpuls  $-3/2$  ( $+3/2$ ). Diese QD-Exzitonen sind nach den Auswahlregeln für Dipolübergänge optisch aktiv und werden daher auch als *bright excitons* bezeichnet. Im Gegensatz dazu, werden QD-Exzitonen mit einem Gesamtdrehimpuls von  $\pm 2$  *dark excitons* genannt. Die dark-Zustände liegen energetisch unterhalb der dipolerlaubten Zustände. Der energetische Unterschied dieser beiden Paare ist auf die abstoßende Austauschwechselwirkung zurückzuführen, die zwischen Elektron und Loch mit antiparallelen Spins besteht und spiegelt die Stärke der Austauschwechselwirkung wider [48]. Die Feinstrukturaufspaltung geht als einzelner Term

im Hamiltonian der Austauschwechselwirkung mit ein und ist Folge von Asymmetrien des Quantenpunkts. Diese hebt die Spinartung auf. Derartige Asymmetrien des Quantenpunkts können durch Elongationen des Quantenpunkts entlang einer Richtung und/oder uniaxialer Verspannung auftreten. Damit bestehen die Emissionslinien des QD-Exzitons im Allgemeinen aus einem Linien-Dublett.

Exzitonische Komplexe mit zwei Paaren an Elektronen und Löchern werden als Biexzitonen bezeichnet. Wie beim Exziton können auch diese Quasiteilchen aufgrund des starken Ladungsträgereinschlusses im QD nicht als Summe unabhängiger Einteilchenzustände betrachtet werden. Vielmehr müssen die attraktiven und repulsiven Wechselwirkungen eines jeden Ladungsträgers im Komplex betrachtet werden. Dadurch unterscheidet sich die Übergangsenergie eines Biexzitons von der eines einzelnen Exzitons. Die Differenz zwischen exzitonischer und biexzitonischer Emissionsenergie wird als Biexzitonenbindungsenergie bezeichnet und kann sowohl positive als auch negative Werte annehmen. Darüberhinaus können sich auch multiexzitonische Komplexe mit mehreren Elektronen und Löchern in einem Quantenpunkt bilden.

#### 1.3.3 *quantum-confined-Stark-effect*

Im Allgemeinen bezeichnet der Stark-Effekt die Verschiebung von Spektrallinien in einem statischen elektrischen Feld [49] und stellt damit das Analogon zum Zeeman-Effekt dar. Der Begriff des *quantum-confined-Stark-effect* (QCSE) bezieht sich auf eine Verschiebung der Emissionslinien in Halbleiterquantenheterostrukturen aufgrund eines vorhandenen elektrischen Feldes [50]. Dies schließt sowohl elektrische Felder ein, die extern auf die Halbleiterstruktur aufgetragen werden, als auch jene, die inhärent im Material vorhanden sind. Mit dem QCSE sind eine Reihe an Konsequenzen verbunden.

- Zunächst ist es völlig einsichtig, dass kollinear zum elektrischen Feld Elektronen und Löcher in einer Quantenstruktur stärker separiert werden. Elektronen werden antiparallel zum Feldvektor verschoben und Löcher gerade in Richtung des Feldes.
- Im Bild des Bandverlaufs führen elektrische Felder unabhängig von ihrer Ursache zu einer Bandverbiegung im Ortsraum, woraus aus einem rechteckigen Potentialverlauf ein dreieckiger resultiert. Dies zieht eine Absenkung der Elektronenenergieniveaus und eine Anhebung der Lochenergie nach sich. Insgesamt wird also eine Rotverschiebung der Übergangsenergie beim QCSE beobachtet.
- Durch die stärkere Separation ist ein geringerer Überlapp der Elektron- und Lochwellenfunktion gegeben, wodurch eine reduzierte Oszillatorstärke des Übergangs vorhanden ist. Dies führt zu einer geringeren Intensität und erhöhter Lebensdauer des optischen Übergangs.

## 1 Grundlagen

- Desweiteren lässt die stärkere Separation auf eine verminderte Coulombwechselwirkung und damit auf eine geringere Bindungsenergie exzitonischer Komplexe schließen.
- Mit der Erhöhung des elektrischen Dipols von Elektron und Loch beim QCSE wirken sich Fluktuationen des elektrischen Feldes stärker auf den exzitonischen Übergang aus.

In den Gruppe III-Nitriden existieren starke inhärente spontane und piezoelektrische Polarisationsfelder (siehe Abschnitte 1.1, 1.1). Durch die schichtweise Änderung der Polarisationsfeldstärke kommt es aufgrund der Diskontinuitäten der Polarisationsfelder an den Heterostruktur Grenzflächen zu einer Ausbildung von Grenzflächenladungen, die zu einem inhärenten elektrischen Feld in der Quantenstruktur führen. Das Feld in einem Einzelquantenfilm kann durch

$$F = \frac{1}{\epsilon_0 \epsilon_Q} [(P_{sp,B} + P_{pz,B}) - (P_{sp,Q} + P_{pz,Q})] \quad (1.17)$$

$F$	– elektrische Feld
$\epsilon_Q$	– relative Permittivität der Quantenstruktur
$P_{sp,B}, P_{pz,B}$	– spontane, piezoelektrische Polarisierung der Barriere
$P_{sp,Q}, P_{pz,Q}$	– spontane, piezoelektrische Polarisierung der Quantenstruktur

berechnet werden.

## 1.4 Statistische Eigenschaften von Licht

Licht kann in Abhängigkeit von der statistischen Photonverteilung in drei Klassen eingeteilt werden: thermisches, kohärentes und nichtklassisches Licht. Die Photon-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung  $g^2(\tau)$ , die über die Funktion

$$g^2(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}^\dagger(t+\tau)\hat{a}(t)\hat{a}(t+\tau) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}(t) \rangle^2} \quad (1.18)$$

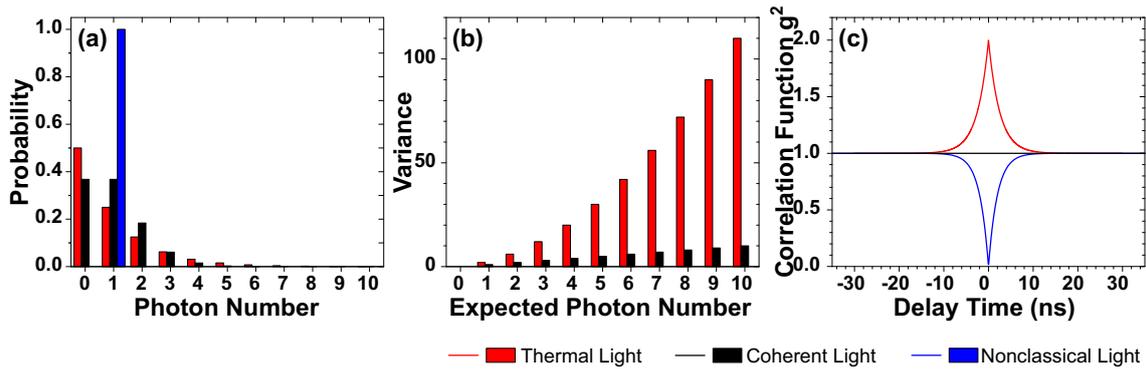
- $\tau$  – Zeitverzögerung
- $\hat{a}^\dagger/\hat{a}$  – Erzeugungs- bzw. Vernichtungsoperator eines Photons
- $\langle \rangle$  – quantenmechanischer Erwartungswert

formuliert wird, lässt Aussagen zur Photonstatistik zu. Im Photonbild kann  $g^2(\tau)$  als bedingte Wahrscheinlichkeit interpretiert werden, mit der zur Zeit  $t + \tau$  ein Photon von einer Quelle emittiert wird, nachdem bereits zur Zeit  $t$  ein Photon ausgesandt wurde. Mit dem Verhalten von  $g^2(\tau)$  für  $\tau \rightarrow 0$ , womit die zeitliche Koinzidenz der Emission zweier Photonen definiert ist, lassen sich die unterschiedlichen Klassen der Photonstatistik unterscheiden. In der Schreibweise klassischer elektromagnetischer Wellen nimmt die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung folgende Gestalt an:

$$g^2(\tau) = \frac{\langle I(t+\tau)I(t) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2}. \quad (1.19)$$

- $I$  – Intensität der elektromagnetischen Welle
- $\langle \rangle$  – zeitlicher Mittelwert

**Thermisches Licht** resultiert aus einer Vielzahl voneinander unabhängiger Emitter, deren Lichtfelder sich inkohärent überlagern. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung liegt der Bose-Einstein-Statistik zugrunde und kann als geometrische Verteilung dargestellt werden, deren Breite (bei gleicher mittlerer Photonenzahl) deutlich breiter als eine Poisson-Verteilung ist. Man spricht daher von einer Super-Poisson-Statistik der Photonen. Aufgrund des zufälligen Charakters der elementaren Emissionsprozesse schwankt thermisches Licht in seiner Intensität sehr stark. Dies drückt sich in der hohen Varianz der geometrischen Verteilung aus. Für die Photon-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung ergibt sich ein Wert von zwei bei  $\tau = 0$ , was charakteristisch für ein klassisches Lichtfeld ist und als *bunching* bezeichnet wird. Dies bedeutet, dass Photonen einer thermischen Lichtquelle vorzugsweise in Gruppen emittiert werden. Dabei wird anhand der Verteilungswahrscheinlichkeit in Abb. 1.6 (a) deutlich, dass am häufigsten kein einziges Photon ausgesandt wird.



**Abbildung 1.6:** Statistische Eigenschaften von thermischem, kohärentem und nichtklassischem Licht: (a) Wahrscheinlichkeitsverteilungen in Abhängigkeit der Photonenzahl für einen Erwartungswert von einem Photon, (b) Varianz als Funktion des Erwartungswertes der Photonenzahl (Varianz von nichtklassischem Licht beträgt null), (c) Auto-Korrelationsfunktion zweiter Ordnung.

**Kohärentes Licht** kann in der quantenmechanischen Beschreibung in Form von Glauber-Zuständen dargestellt werden, die die Eigenzustände des Vernichtungsoperators sind. Die Eigenschaften dieser kohärenten Zustände erlauben eine Beschreibung in klassischer Schreibweise, wodurch sie als quasi-klassische Zustände gelten und der Vorstellung einer klassischen, kohärenten, ebenen Welle am nächsten kommen. Die Poisson-Verteilung stellt die Wahrscheinlichkeitsverteilung für kohärentes Licht dar. Die Photonen sind also statistisch unabhängig voneinander, d.h. die bedingte Wahrscheinlichkeit ist unabhängig davon, ob unmittelbar vorher ein Photon emittiert wurde oder nicht. Die Photonen-Autokorrelationsfunktion nimmt in diesem Fall den Wert eins an, womit ein zeitlich völlig stabiles Lichtfeld verbunden ist. Bei gleicher mittlerer Photonenzahl ist die Poisson-Verteilung deutlich schmäler als die geometrische Verteilung. Kohärentes Licht ist damit durch sehr geringe Schwankungen in der Photonenzahl ausgezeichnet.

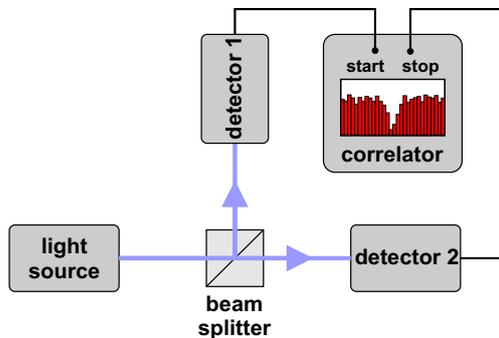
**Nichtklassisches Licht** wird durch Fock-Zustände repräsentiert. Diese stellen die reinste Form des Lichts dar und sind als Eigenzustände des Besetzungszahloperators definiert. Ein Fock-Zustand besitzt demnach eine exakt definierte Photonenzahl<sup>5</sup>. Folgerichtig nimmt die Schwankung um den Erwartungswert exakt den Wert null an. Man spricht bei dieser Art der Wahrscheinlichkeitsfunktion aufgrund ihrer verschwindenden Varianz von einer Sub-Poisson-Verteilung.

<sup>5</sup>und nach der Heisenbergrelation eine völlig unbestimmte Phase

Im Fall der idealen Einzelphotonenquelle nimmt  $g^2(\tau = 0)$  exakt den Wert null an. Für verschwindende Verzögerungszeiten finden keine zeitlichen Koinzidenzen für die Emission mehrerer Photonen statt. Vielmehr werden die Photonen in gleichmäßigen Zeitintervallen emittiert als dies für eine klassische Lichtquelle der Fall wäre. Für eine Zweiphotonenquelle gilt hingegen  $g^2(\tau = 0) = 0,5$ . In Experimenten wird daher für eine Einzelphotonenquelle die Bedingung  $g^2(\tau = 0) < 0,5$  angewendet, womit von weniger als zwei Photonen bzw. zwei Einzelphotonenemittern ausgegangen werden kann. Das ausgeprägte Minimum der  $g^2$ -Funktion bei verschwindenden Verzögerungszeiten wird als *antibunching* bezeichnet.

### 1.4.1 Messung der Autokorrelationsfunktion

Für den Nachweis der statistischen Eigenschaften des Lichtes dient in der Quantenoptik das Hanbury-Brown & Twiss-Interferometer (HBT) [51]. Hierbei werden die Photonenkoinzidenzen von einem lichtemittierenden System zeitlich korreliert. Dies geschieht durch eine Zerlegung des emittierten Lichtstrahls in zwei äquivalente Teilstrahlen an einem 50:50-Strahlteiler (siehe Abb. 1.7). Nachfolgend werden die (verzögerten) Koinzidenzen von Photonen an beiden Detektoren gezählt, d.h. eben solche Ereignisse, bei denen beide Detektoren entweder gleichzeitig ansprechen oder der eine um eine Verzögerungszeit  $\tau$  später als der andere. Es ergibt sich ein Histogramm mit der Anzahl an Koinzidenzen als Funktion der Zeit. Die gemessene Koinzidenzzählrate ist dann direkt proportional zur Auto-Korrelationsfunktion zweiter Ordnung  $g^2(\tau)$  des Strahlungsfeldes.



**Abbildung 1.7:** Schematische Darstellung des Hanbury Brown & Twiss Interferometers mit 50:50-Strahlteiler und zwei Detektoren, deren Start- und Stoppsignale die Messung der verzögerten Koinzidenzereignisse ermöglichen und im Korrelator als Histogramm dargestellt werden.

## 1.5 Mikrokavitätslaser

In erster Näherung kann Laserlicht als kohärentes Licht aufgefasst werden. Um kohärentes, monochromatisches Licht in Halbleiterbauelementen zu realisieren, müssen diese aus zwei Grundbausteinen bestehen. Zum einen muss ein aktives Medium vorhanden sein, welches Licht generiert und eine optische Verstärkung des Strahlungsfeldes ermöglicht. In Halbleitermaterialien wird in der Regel die strahlende Rekombination von Elektronen und Löchern in Volumenhalbleitern oder Halbleiterquantenstrukturen benutzt. Um eine optische Verstärkung des generierten Lichtes zu ermöglichen, muss die Separation der Quasi-Ferminiveaus von Elektronen und Löchern im aktiven Medium größer sein als die Energie der emittierten Strahlung. Diese Grundvoraussetzung wird als Bernard-Duraffourg-Bedingung bezeichnet [52] und geht mit der Besetzungsinversion der Ladungsträger einher. Hierdurch wird der Absorptionskoeffizient negativ, was einer Verstärkung des Lichtfeldes gleichkommt. Zum anderen muss eine Kavität die optische Rückkopplung ermöglichen. Folgerichtig zirkuliert Licht in dieser Kavität hin und her, um bei jedem Umlauf das aktive Medium zu durchqueren und das Licht durch stimulierte Emission zu verstärken.

Wenn die Verstärkung die optischen Verluste der Kavität übersteigt, steigt die Rate stimulierter Emission und Lasertätigkeit kann beobachtet werden. Damit kann die Schwellwertbedingung für einen Laser folgendermaßen formuliert werden:

$$\Gamma g_{th} = \frac{1}{2L_c} \ln \frac{1}{R_1 R_2} + \alpha_{int}. \quad (1.20)$$

- $\Gamma$  – relativer Füllfaktor
- $g_{th}$  – Verstärkung bei Einsetzen der Lasertätigkeit
- $R_{1,2}$  – Reflektivitäten der Kavitätsspiegel
- $\alpha_{int}$  – interne optische Verluste

Die linke Seite der Gl. 1.20 beschreibt den Nettogewinn bei Einsetzen der Lasertätigkeit, wobei der relative Füllfaktor den räumlichen Überlapp der elektromagnetischen Mode mit dem aktiven Medium beschreibt.  $\Gamma$  hängt sehr stark von der Positionierung des aktiven Mediums zum Lichtfeld ab. Im Fall eines infinitesimal dünnen Quantenfilms nimmt der relative Füllfaktor den Wert zwei an, wenn der QW in den Antinoden des Stehwellenfeldes der Kavitätsmode liegt. Befindet sich der infinitesimal dünne QW gerade in den Noden so ist  $\Gamma$  verschwindend klein [53]. Die rechte Seite der Gl. 1.20 stellt hingegen die optischen Verluste dar, wobei der erste Summand gerade den Photonenverlust durch die Spiegel repräsentiert.

In vertikal emittierenden Oberflächenlaserdioden (VCSEL) basiert die Kavität auf dem Konzept der planaren Mikrokavität mit hochreflektierenden DBR-Spiegeln, bei der das Licht senkrecht zum aktiven verstärkendem Medium emittiert wird. Aus der Schwellwertbedingung Gl. 1.20 ist erkennbar, dass aufgrund der geringen Kavitätsabmessungen von

VCSEL höhere optische Verluste als bei Kantenemittern (bei gleichen Spiegelreflektivitäten) zu erwarten sind. Dies ist nach Gl. 1.20 nur durch äußerst hohe Reflektivitäten der DBRs kompensierbar, um geringe Schwellwerte der VCSEL zu realisieren.

Verglichen zu konventionellen kantenemittierenden Laserdioden besitzen VCSEL eine Vielzahl an Vorteilen:

- Im Gegensatz zu kantenemittierenden LDs benötigt ein VCSEL keine Spaltflächen, um reflektierende Facetten als Spiegel zu benutzen. Damit muss ein VCSEL vor einem Funktionstest nicht aus dem Wafer herausgetrennt werden. Eine schnellere und kostengünstigere Selektierung von VCSEL-Bauelementen durch das *on-wafer testing* ist dadurch möglich. Daraus resultiert auch der Fakt, dass VCSEL im Gegensatz zu Kantenemittern in zweidimensionalen Anordnungen prozessiert werden können.
- Aufgrund der kleinen Kavitätsabmessungen existiert ein großer freier Spektralbereich, der die Stoppbandbreite der DBRs übersteigen kann. Damit befindet sich in der Regel lediglich eine einzige Kavitätsmode innerhalb des DBR-Stoppbandes. Hierdurch ist die Realisierung des Einzelmodenbetriebs bei VCSEL einfacher umzusetzen.
- VCSEL können in kreisrunder Symmetrie als Säulen prozessiert werden, womit ein zirkularer Strahl mit kleinem Divergenzwinkel emittiert wird, der einfacher zu kollimieren ist als ein elliptischer Laserstrahl bei Kantenemitter.
- VCSEL besitzen eine geringere Laserschwelle als ihr kantenemittierendes Pendant. Dies kann auf zwei Ursachen zurückgeführt werden. Zum einen steht in einer Mikrokavität eine geringe Anzahl an optischen Moden zur Verfügung, in die ein eingebetteter Emittierer emittieren kann. Die Laserschwelle tritt an dem Punkt auf, an dem ein spontan emittiertes Photon zum aktiven Medium zurückkehrt und die nächste Photonenemission stimuliert. Damit ist die Rezirkulation der Photonen enorm wichtig für den Laserbetrieb. Durch die Reduktion der Anzahl an Kavitätsmoden wird verhindert, dass die emittierten Photonen in nichtlasende Moden koppeln. Zum anderen muss das System zur Inversion gebracht werden. Bei geringerem zur Verfügung stehendem Volumen des aktiven Mediums, müssen weniger Ladungsträger injiziert/generiert werden, um Inversion zu erreichen. Damit skaliert die Gesamtenergie für das Erreichen der Inversion mit dem Volumen des aktiven Materials.

Dies sind nur einige der vielen Vorteile gegenüber Kantenemittern.

## 1.6 Einzelphotonenemitter

Eine Einzelphotonenquelle ist durch die Emission von einzelnen zeitlich separierten Photonen definiert. Aus den Betrachtungen des Abschnitts 1.4 wird ersichtlich, dass ein Abschwächen einer thermischen oder kohärenten Lichtquelle nicht ausreicht, um einzelne Photonen bei Bedarf zu erzeugen. Es wird dadurch zwar der Erwartungswert der Photonenzahl verringert, jedoch verschwinden die Schwankungen um diesen Erwartungswert nicht. Schwächt man beispielsweise einen Laser derart stark ab, dass im Mittel nur 0,1 Photonen pro Puls emittiert werden, so besitzt ein Puls zu 5% zwei oder mehr Photonen und 90% aller Pulse enthalten kein einziges [54]. Damit sind nur nichtklassische Lichtquellen geeignet, um einzelne Photonen auf Knopfdruck zu erzeugen.

Nichtklassische Zustände des Lichtes lassen sich durch Verwendung von Halbleiterquantenpunkten erzeugen. Dazu muss eine von null verschiedene Bindungsenergie des Biexzitons im QD vorliegen, um die benötigte energetische Entartung des Grundzustandes zu erzeugen [55]. In diesem Fall ist nach der Emission eines Photons durch die exzitonische Rekombination der Grundzustand unbesetzt, und es kann somit kein zweites Photon emittiert werden. Für praktische Anwendungen der Einzelphotonenemission muss die biexzitonische spektral deutlich von der exzitonischen Rekombination separierbar sein. Andernfalls wird die Zuverlässigkeit des Einzelphotonenprozesses zunichtegemacht [56].

Eine Schlüsselkomponente für den Betrieb einer Einzelphotonenquelle bei Raumtemperatur ist ein großer Ladungsträgeranschluss, damit ein thermisch induzierter Übergang der Ladungsträger in die Benetzungsschicht oder Barriere verhindert wird. Desweiteren muss die Biexzitonienbindungsenergie die Phononen-induzierte Linienverbreiterung bei erhöhten Temperaturen übersteigen. Nur dann liegt keine spektrale Überlagerung der exzitonischen und biexzitonischen Emissionslinien vor.

In beiden Fällen zeigen GaN-QDs probate Eigenschaften. Die enormen Banddiskontinuitäten übersteigen deutlich die thermische Energie bei Raumtemperatur [57, 58, 59, 60, 61]. Damit ist eine Vermeidung des thermisch induzierten Ladungsträgerverlustes aus dem QD-Potential möglich. Die Biexzitonienbindungsenergie kann sowohl positive als auch negative Werte [62, 63] von bis zu 52 meV annehmen [64]. Diese spektrale Separation zwischen exzitonischer und biexzitonischer Emission ist im Vergleich zu linienverbreiternden Prozessen zu betrachten. Bei hohen Temperaturen wird die Linienbreite von akustischen Seitenbanden dominiert [65, 66], die zu einer FWHM der exzitonischen Lumineszenz von 36 meV bei Raumtemperatur führen [67]. Damit ist eine spektrale Separation der Phononen-verbreiterten biexzitonischen und exzitonischen Emissionslinie bei hohen Temperaturen durchaus möglich.

Santori und Koautoren konnten 2005 erstmals *antibunching* und getriggerte Einzelphotonengeneration an GaN/AlN-QDs demonstrieren [68]. In einer Reihe von Veröffentlichungen konnte die Arbeitsgruppe um Prof. Arakawa von der Tokyo Universität die Einzelphoto-

nenemission von GaN-QDs bei erhöhten Temperaturen [69] über Raumtemperatur [67] bis hin zu „heißen“ Temperaturen [70] aufzeigen. Dies zeigt das Potential von GaN-QDs für die Realisierung von bei Raumtemperatur operierenden Einzelphotonenbauelementen.

Damit eine Einzelphotonenquelle auf Knopfdruck mittels Halbleiterquantenpunktstrukturen realisiert werden kann, benötigt man darüberhinaus eine hohe Auskoppelleffizienz der generierten Photonen. Aufgrund der inneren Totalreflexion an der Halbleiter-Vakuum-Grenzfläche ist diese Effizienz jedoch limitiert. Photonen können nur innerhalb des Austrittskegels, der durch den Winkel der Totalreflexion vorgegeben ist, aus dem Halbleiter austreten. Licht, welches außerhalb dieses Kegels emittiert wird, verbleibt in der Halbleiterstruktur. Eine Möglichkeit zur Erhöhung der Photonenauskopplung ist die Verwendung eines DBRs unterhalb der QDs, wodurch die in den unteren Halbraum emittierten Photonen zurück in Richtung Halbleiter-Vakuum-Grenzfläche reflektiert werden. Es ergibt sich eine maximale Steigerung der Effizienz um einen Faktor zwei. Eine zusätzliche Steigerung der externen Quanteneffizienz kann durch die Einbettung von Quantenpunkten in Mikrokavitäten erfolgen. Hierbei ist eine Optimierung durch Erhöhung des Purcell-Faktors und der Verringerung optischer Verluste notwendig, damit eine Steigerung der Photonenauskoppelleffizienz erreicht werden kann [71].



# Experimentelle Methoden



## 2 Kathodolumineszenzspektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop

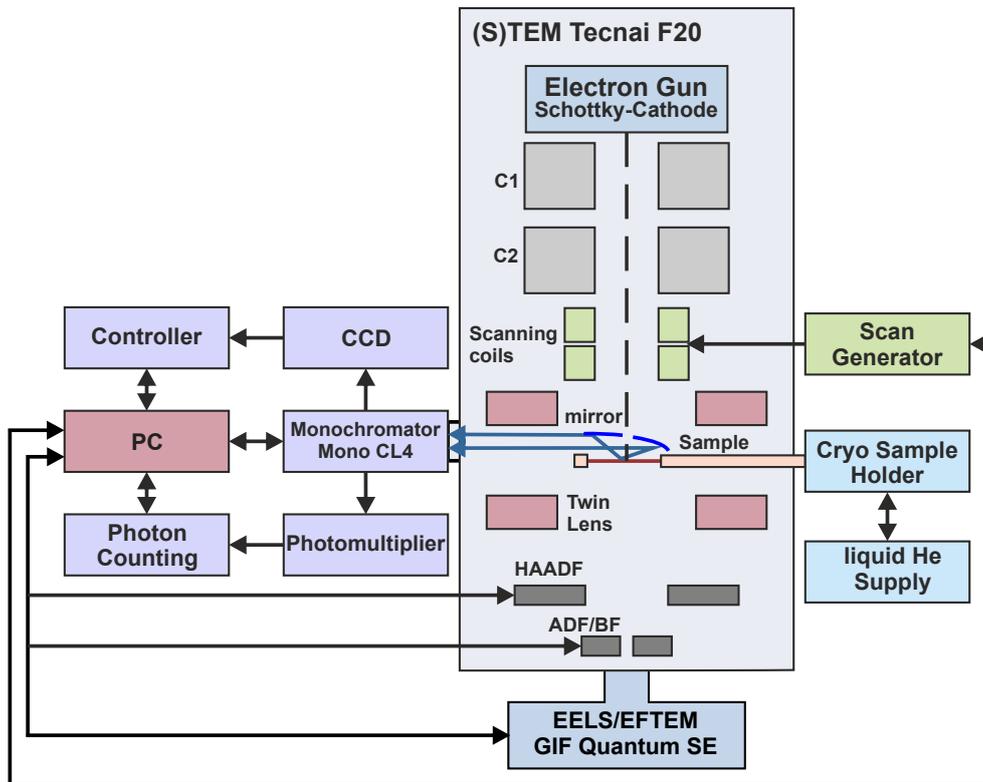
Für eine detaillierte Untersuchung von Halbleiterheterostrukturen ist eine systematische Bestimmung und Korrelation der strukturellen, chemischen, elektronischen und optischen Eigenschaften auf Nanometerskala essenziell. Lumineszenzanalysen gehören zu den empfindlichsten, zerstörungsfreien Methoden der Halbleiterforschung. Die Kombination der Lumineszenzspektroskopie - insbesondere bei Flüssig-Helium-Temperatur (LHe) - mit der hohen örtlichen Auflösung eines Rastertransmissionselektronenmikroskops, wie es durch die Kathodolumineszenzmikroskopie im STEM realisiert wird, stellt eine einzigartige, äußerst wirksame Methode für die optische Nanocharakterisierung von Halbleitern und deren Heterostrukturen zur Verfügung.

In dieser Arbeit soll der Fokus auf die optische Nanocharakterisierung mittels LHe-STEM-CL gelegt werden. Dabei ist die hier angewandte STEM-CL-Mikroskopie bei LHe-Temperaturen weltweit einmalig<sup>1</sup>. Lediglich eine geringe Anzahl an Arbeitsgruppen beherrschen dieses Verfahren bei Raumtemperatur bzw. Flüssig-Stickstoff-Temperatur (LN<sub>2</sub>). In diesem Kapitel wird deshalb detailliert die STEM-CL-Methode vorgestellt. Zu Beginn wird der technisch realisierte Aufbau beschrieben. Nachfolgend wird auf die grundlegenden Aspekte der Abbildungsmodi und der Strahlaufweitung in der Rastertransmissionselektronenmikroskopie eingegangen. Daran anschließend wird die Kathodolumineszenz im STEM erläutert und Effekte, die bei der CL-Spektroskopie an dünnen für die Transmissionselektronenmikroskopie präparierten Schichten zu berücksichtigen sind, diskutiert.

---

<sup>1</sup>bis zum Zeitpunkt der Fertigstellung dieser Arbeit

## 2.1 Aufbau des STEM-CL-Messplatzes



**Abbildung 2.1:** Schematische Darstellung der STEM-CL-Apparatur für höchstauflösende Kathodolumineszenzuntersuchungen und optionaler Elektronenenergieverlustanalyse.

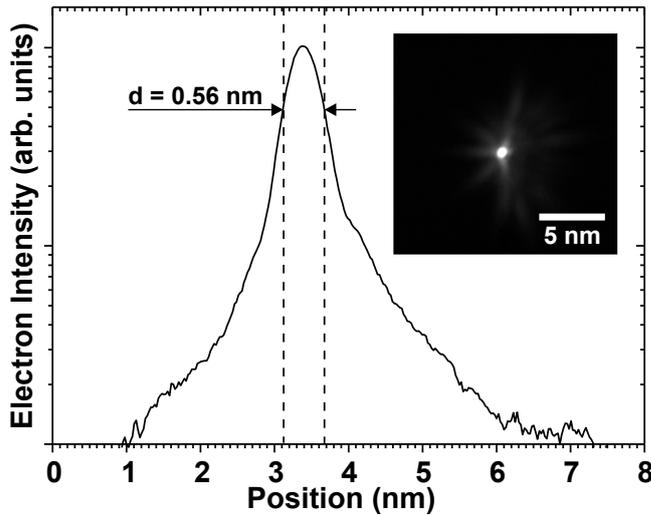
Die verwendete STEM-CL-Apparatur basiert auf einem (Raster-)Transmissionselektronenmikroskop TECNAIF20 der Firma FEI, welches um ein kommerzielles Kathodolumineszenzsystem MONOCL4 von der Firma GATAN erweitert wurde. Abbildung 2.1 zeigt eine schematische Darstellung des experimentellen Gesamtaufbaus der STEM-CL-Apparatur. Als Elektronenquelle dient eine Schottky-Feldemissionkathode, die bei einer Extraktionsspannung von 4100 V betrieben wird. Die Beschleunigungsspannung des Primärelektronenstrahls des STEM kann von 20 kV bis 200 kV variabel eingestellt werden. Der Elektronenstrahl wird im STEM-Modus auf das TEM-Präparat fokussiert. Die gestreuten Elektronen werden mit Hilfe des ringförmigen Weitwinkeldunkelfelddetektors (HAADF) Modell 3000 der Firma FISCHIONE detektiert. Die durch Primärelektronenbeschuss induzierte Kathodolumineszenz wird durch einen Parabolspiegel in das Monochromatorsystem eingekoppelt. Im Spektrometer wird die Lumineszenz als pan- oder monochromatische Intensität mit Hilfe eines GaAs-Photoelektronenvervielfachers R934-02 der Firma HAMAMATSU detektiert. Für eine parallele spektrale CL-Akquirierung steht ein LN<sub>2</sub>-gekühlter Si-CCD-Detektor des Typs SPEC-10:100B der Firma PRINCETON INSTRUMENTS zur Verfügung.

Die Erfassung des CL-Signals geschieht simultan zur Aufzeichnung des STEM-Signals. Die TEM-Folie kann mit Hilfe eines Kryo-Probenhalters mit Flüssig-Helium unterhalb von 16 K heruntergekühlt werden. In allen STEM-CL Experimenten wird zur Reduktion der Strahlschädigung und Kathodolumineszenzdegradation unter Elektronenanregung [24] eine Beschleunigungsspannung von 80 kV konsequent genutzt.

Zusätzlich steht ein Elektronenenergieverlustspektrometer (EELS) GIF QUANTUM SE der Firma GATAN zur Verfügung. Die Aufnahme des Elektronenenergieverlusts (EEL) als auch der energiegefilterten TEM-Aufnahmen (EFTEM) erfolgt mittels CCD-Detektor vom Typ ULTRASCAN. Das System verfügt über einen weiteren STEM-Detektor, der direkt vor der Eintrittsapertur des EELS positioniert ist und wahlweise als annularer Dunkelfeld- oder Hellfelddetektor (ADF/BF) genutzt werden kann.

Die Erfassung des CL-Signals als auch des EEL-Signals geschieht simultan zur Aufzeichnung der STEM-Signale (HAADF und ADF/BF) und wird rechnergesteuert von der Software DIGITAL MICROGRAPH übernommen.

Fotografische Abbildungen und weitere schematische Zeichnungen zu einzelnen Bestandteilen der STEM-CL-Messapparatur können in den Arbeiten von Schmidt [72], Bastek [24] und Müller [73] eingesehen werden.



**Abbildung 2.2:** Intensitätsprofil des einfallenden Elektronenstrahls im STEM-Modus lässt auf Strahldurchmesser  $d$  von 0,56 nm schließen, eingefügte Grafik: auf CCD-Kamera abgebildetes Bild der zweidimensionalen Intensitätsverteilung des Strahls.

## 2.2 Rastertransmissionselektronenmikroskopie

Bei dem von Manfred v. Ardenne 1938 realisierten Verfahren der Rastertransmissionselektronenmikroskopie wird im Gegensatz zur homogenen Ausleuchtung des Probenausschnitts im konventionellen Transmissionselektronenmikroskop das Objekt mit möglichst stark fokussiertem Elektronenstrahl abgerastert [74]. Elektronen, die das Objekt transmittieren, werden mit entsprechenden Detektoren sequenziell Punkt-für-Punkt erfasst. Der große Vorteil des STEM gegenüber des konventionellen TEM besteht in der simultanen ortskorrelierten Akquirierung von Sekundärsignalen, wie der Kathodolumineszenz.

### 2.2.1 Sondendurchmesser und Elektronenstrahlaufweitung

Im STEM ist der Durchmesser der einfallenden Elektronenstrahlsonde möglichst gering zu halten, um eine größtmögliche Ortsauflösung zu ermöglichen. Im TECNAI F20 wird die Fokussierung des Elektronenstrahls über eine Minikondensorlinse der Objektivlinse, die als *twin*-Linse bezeichnet wird, realisiert. Die Ermittlung des Durchmessers des Elektronenstrahls wurde im *nano-probe*-Modus mittels CCD-Kamera ORIUSSC600A (Firma GATAN) vorgenommen. Hierbei wurde der kleinstmögliche Durchmesser bei der geringsten Spotgröße SS11 mit den Aperturbblendeneinstellungen C1:4 (Blendendurchmesser 2 mm) und C2:1 (Blendendurchmesser 30  $\mu\text{m}$ ) bestimmt. In Abbildung 2.2 ist die laterale Intensitätsverteilung des Elektronenstrahls zu sehen. Die Halbwertsbreite als Maß des Elektronenstrahldurchmessers  $d$  konnte zu 0,56 nm bestimmt werden. In der eingefügten Grafik ist das dazugehörige zweidimensionale Strahlprofil abgebildet. Grundsätzlich erhöht sich mit Vergrößerung der *spotsize*<sup>2</sup> und der Kondensorblenden auch der Elektronenstrahldurchmesser.

Für die spätere Ermittlung der Ortsauflösung innerhalb der STEM-CL muss neben dem

<sup>2</sup>Als *spotsize* sei hier wie üblich die Anregung der C1-Linse des Kondensorlinsensystems bezeichnet.

Sondendurchmesser auch die Streuung der Primärelektronen mit der Probe berücksichtigt werden, da es aufgrund der auftretenden Wechselwirkungen der Primärelektronen mit dem Probenmaterial zur Aufweitung des Elektronenstrahls senkrecht zur Strahlrichtung kommt. Dieser Effekt limitiert die Auflösung im Rastermodus des TEMs. Die Verbreiterung eines infinitesimal breiten Elektronenstrahls kann mit Hilfe des Modells der elastischen Einzelstreuung von Goldstein *et al.* beschrieben werden [75]. Der umformulierte analytische Ausdruck mit relativistischer Korrektur lautet [76]:

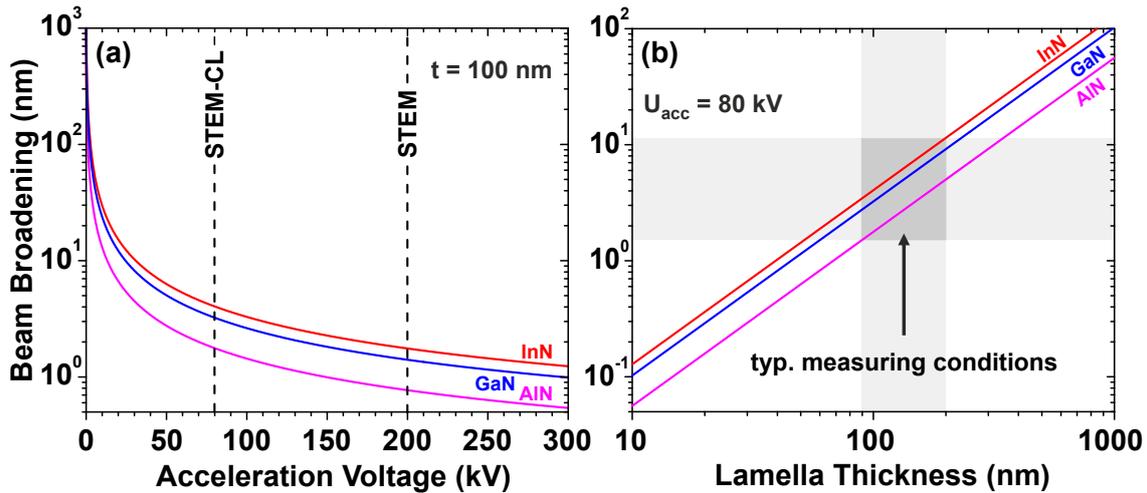
$$b_{STEM} = 1,05 \cdot 10^5 \left( \frac{\rho}{\bar{A}} \right)^{1/2} \frac{\bar{Z}}{E_e} \frac{1 + E_e/E_{e0}}{1 + E_e/2E_{e0}} d_{foil}^{3/2}. \quad (2.1)$$

$b_{STEM}$	– Strahlverbreiterung in [cm]
$\rho$	– Massendichte in [g/cm <sup>3</sup> ]
$\bar{A}$	– mittlere relative Atommasse in [g/mol]
$\bar{Z}$	– mittlere Ordnungszahl
$E_e$	– Primärelektronenenergie in [eV]
$E_{e0}$	– Ruhenergie des Elektrons in [eV]
$d_{foil}$	– Lamellendicke des TEM-Präparats in [cm]

Anhand dieser Gleichung lässt sich eine Verringerung der Strahlverbreiterung mit steigender Beschleunigungsspannung und abnehmender Schichtdicke feststellen. In der Abbildung 2.3 (a) ist die Strahlverbreiterung in Abhängigkeit der Beschleunigungsspannung exemplarisch für AlN, GaN und InN zu sehen. Hierfür wurde eine für die STEM-CL-Charakterisierung zweckmäßige Schichtdicke von 100 nm angenommen. Man erhält bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV, wie für die STEM-CL-Experimente stets gewählt, eine Strahlverbreiterung von 3,2 nm für GaN. Bei STEM-Messungen mit 200 kV Beschleunigungsspannung beträgt die Verbreiterung des Elektronenstrahls nur 1,7 nm für GaN. Die Strahlaufweitung als Funktion der Lamellendicke ist für 80 kV in Abb. 2.3 (b) dargestellt. Die typischen TEM-Lamellendicken für STEM-CL-Experimente liegen im Bereich von 90 nm bis 200 nm.

Gleichung 2.1 stellt eine einfache Berechnung der Strahlaufweitung dar, die lediglich elastische Einzelstreuereignisse berücksichtigt [75, 76]. Gerade für große Lamellendicken oberhalb der mittleren freien Weglänge kommt es allerdings zunehmend zur Mehrfachstreuung. Alternativ soll deshalb hier die Strahlaufweitung eines infinitesimal kleinen Primärelektronenstrahls aus Monte Carlo-Simulationen ermittelt werden und mit den analytisch berechneten Werten verglichen werden. In Abb. 2.4 ist eine Monte Carlo-Simulation für eine 100 nm dicke GaN-TEM-Lamelle bei 80 kV Beschleunigungsspannung zu sehen<sup>3</sup>. Der Durchmesser des einfallenden Elektronenstrahls wurde als infinitesimal klein angenommen. Das simulierte Ortshistogramm des Primärelektronenaustritts aus der TEM-Lamelle ist in Abb. 2.4 (b) dargestellt. Darin ist die Anzahl der transmittierten Elektronen als Funktion

<sup>3</sup>Als Software wurde das Monte Carlo-Simulationsprogramm CASINO v2.48 verwendet.



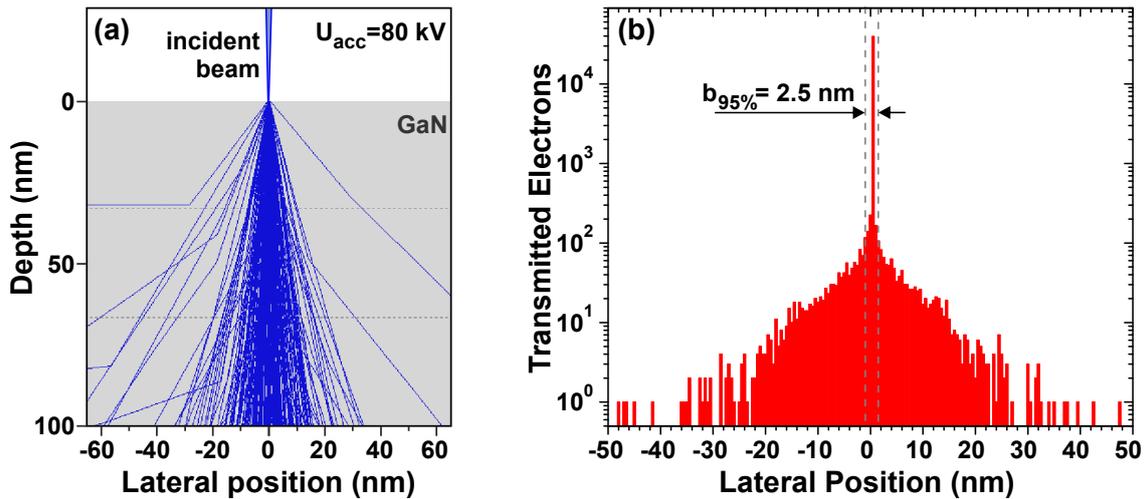
**Abbildung 2.3:** Auflösungslimitierende Strahlaufweitung im STEM-Modus als Funktion der (a) Beschleunigungsspannung bei einer TEM-Foliendicke von 100 nm und (b) der Lamellendicke bei konstanter Beschleunigungsspannung von 80 kV für GaN, AlN und InN.

der lateralen Position bei deren Austritt aus der TEM-Lamelle zu sehen. Für die Definition der Strahlaufweitung kann die Breite, in der sich 95 % aller transmittierten Elektronen befinden, angegeben werden. Damit ergibt sich eine Strahlaufweitung von  $b_{STEM}^{95\%} = 2,5$  nm und ist geringfügig kleiner als die berechnete Aufweitung nach Gl. 2.1.

Damit scheint Gleichung 2.1 eine gute Abschätzung der Strahlverbreiterung für eine typische Schichtdicke von 100 nm in GaN zu sein. Anhand von STEM-Experimenten an Polystyrolkugeln konnten Reimer *et al.* [76] verifizieren, dass die nach Gl. 2.1 berechnete Strahlaufweitung eine obere Schranke der experimentell bestimmten Ortsauflösung über einen großen Lamellendickenbereich darstellt. Es sei jedoch angemerkt, dass sowohl die analytische Berechnung mittels Gleichung 2.1 als auch die Bestimmung der Strahlaufweitung mit Hilfe der Monte Carlo-Simulation nicht die kristalline Beschaffenheit des Festkörpers in Betracht zieht. Es werden also keine Bragg-gebeugten Elektronen und keine *channeling*-Effekte (siehe nachfolgenden Absatz 2.2.2) berücksichtigt. Damit können Strahlaufweitungen streng genommen lediglich für amorphe Proben angegeben werden.

### 2.2.2 Abbildungsmodi im Rastertransmissionselektronenmikroskop

Mit der STEM-CL-Apparatur stehen drei komplementäre STEM-Detektoren (HAADF, ADF und BF) und damit unterschiedliche Abbildungsmodi zur Verfügung. Die Detektion transmittierter Elektronen in einem limitiertem Raumwinkelbereich ist allen gemeinsam. Die in weite Winkel quasi-elastisch gestreuten Elektronen werden mittels HAADF-Detektor oberhalb von 50 mrad erfasst. Der ADF-Detektor befindet sich im Winkelbereich zwischen 10 mrad und 50 mrad. Für den BF-Detektor, der vornehmlich ungestreute bis in kleine



**Abbildung 2.4:** Monte Carlo-Simulation der Elektrontrajektorien in einer 100 nm dicken GaN-Lamelle bei 80 kV Beschleunigungsspannung: (a) Querschnittsdarstellung der Elektrontrajektorien, (b) Ortshistogramm der transmittierten Elektronen bei Lamellenaustritt; 95 % aller Elektronen passieren die GaN-Lamelle in einem Bereich von 2,5 nm.

Winkel gestreute Elektronen registriert, wird ein Bereich von 0-10 mrad genutzt. In Abb. 2.5 ist eine schematische Darstellung der Detektoranordnung zu sehen.

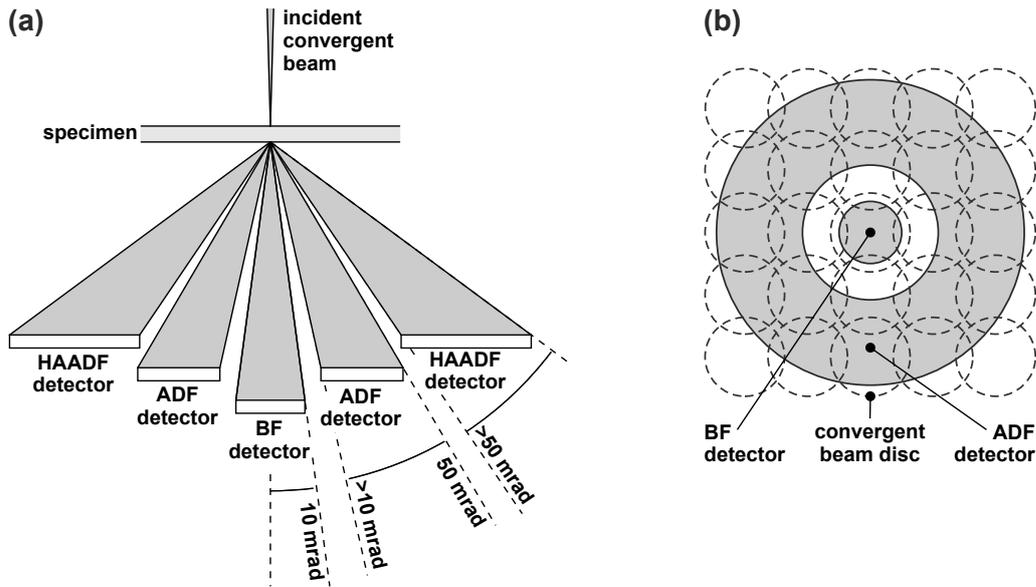
In dieser Arbeit wird vor allem auf die qualitative Interpretation der STEM-Aufnahmen eingegangen. Dafür ist ein Verständnis der Streumechanismen notwendig, worauf im Folgenden eingegangen wird.

### Abbildung durch Weitwinkelstreuung – HAADF

Im Jahr 1973 wurde von Humphreys die Abbildung durch Weitwinkelstreuung im Rastertransmissionselektronenmikroskop eingeführt [74]. Zur Kontrastentstehung werden quasi-elastisch, inkohärent gestreute Elektronen genutzt. Diese in weite Winkel ( $>50$  mrad) gestreuten Elektronen werden von einem HAADF-Detektor registriert.

Betrachtet man Streuintensitäten unter weiten Winkeln ist hauptsächlich die Streuung an Atomen relevant, deren Position von der Gitterperiodizität abweicht. Denn die elastische Streuung am perfekten Kristall führt die Intensität eines kohärenten Elektronenstrahls einzig in Bragg-Reflexe. Sobald Atome von den idealen Gitterpositionen abweichen, kommt es zu einem Intensitätsanteil außerhalb der Bragg-Reflexe, der zu einem diffusen Untergrund führt [78]. Derartige Verschiebungen der Atome aus ihrer Ruhelage kann durch deren thermische Bewegung herbeigeführt werden, sodass Primärelektronen thermisch diffus an diesen verschobenen Atomen streuen.

Für große Streuwinkel ist die thermisch diffuse Streuung dominant und hauptsächlich Streuung am Atomkern zu beobachten. Denn die Intensität der Bragg-reflektierten, elas-



**Abbildung 2.5:** Schematische Darstellung der (a) Detektor-Anordnung im STEM und (b) Aufsicht auf ADF- und BF-Detektor mit Beugungsscheibchen, nach [77, 74].

tisch gestreuten Elektronen reduziert sich mit zunehmendem Streuwinkel, sodass dieser Streumechanismus das HAADF-Signal kaum beeinflusst [79]. Die Intensität der thermisch diffusen Streuung ist für große Streuwinkel annähernd proportional zu  $Z^2$  [80]. Deshalb wird der im HAADF-Bild detektierte Kontrast auch als Z-Kontrast bezeichnet. Aufgrund der Abschirmung des Coulombpotentials des Atomkerns ergeben sich jedoch Abweichungen von der  $Z^2$ -Abhängigkeit der HAADF-Intensität. Für eine quantitative Auswertung des HAADF-Signals muss  $I_{HAADF} \propto Z^\alpha$  angenommen werden. Der Exponent  $\alpha$  ist dabei kleiner als zwei und abhängig vom inneren und äußeren HAADF-Detektorwinkel [81].

Durch die Abweichung der streuenden Atome von der Gitterperiodizität besitzen die Sekundärwellen keine vollständige Phasenbeziehung mehr. Folglich ist die thermisch diffuse Streuung bzw. sind in weite Winkel gestreute Elektronen inkohärent [82, 78]. Damit können HAADF-Intensitäten als Faltung der Elektronensonde mit dem Objekt verstanden werden und bieten somit eine intuitive Interpretation von STEM (HAADF)-Aufnahmen [74].

Aufgrund der höheren Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Primärelektronen in der Nähe der Atomkerne verglichen zum interstitiellen Bereich, kommt es zu einer Selbstfokussierung des Elektronenstrahls auf vertikale Atomreihen. Man spricht dann vom sogenannten *channeling*-Effekt (Gitterführungseffekt) [83]. Dies führt zu einer größeren Wahrscheinlichkeit der thermisch diffusen Streuung mit den vibrierenden Atomen und damit höherer HAADF-Intensität an der Position der Atomreihen für die Weitwinkelstreuung [84]. Statische Strukturveränderungen, wie z.B. Kristalldefekte, können die Gitterperiodizität als auch Gitterführung stören und somit die Intensitätsverteilung verändern [82]. Dieses Phä-

nomen ist als *dechannelling* bekannt [85], bei dem es zu einer erhöhten Intensität in hohe Streuwinkel kommt. Ein so entstehender *dechannelling*-Kontrast kann beispielsweise zur Beobachtung von Kristalldefekten im HAADF-Kontrast genutzt werden [85].

### Hellfeldabbildung

Die Beugung des kohärenten konvergenten Primärelektronenstrahls führt im STEM zu Beugungsscheibchen. Für die Abbildung im STEM wird der BF-Detektor in eine zur hinteren Fokalebene konjugierten Ebene positioniert, wodurch die Beugungsscheibchen direkt auf den BF-Detektor abgebildet werden (siehe Abb. 2.5 (b)). Damit kann im BF-Modus sowohl der direkte ungebeugte Strahl als auch deren Überlagerung mit den ersten Beugungsscheibchen erfasst werden. Die Hellfeldabbildung im STEM zeigt damit einen Beugungskontrast und ist qualitativ der TEM (BF)-Abbildung gleichzusetzen [74]. Dies wird durch das Prinzip der Reziprozität zwischen TEM und STEM bestätigt [76].

### Dunkelfeldabbildung

Die Dunkelfeldabbildung im STEM stellt eine Überlagerung des Z-Kontrastes und des Beugungskontrastes dar. Zum einen werden die Beugungsscheibchen in der Laue-Zone nullter und höherer Ordnungen erfasst. Zum anderen nimmt die Intensität der thermisch diffus gestreuten Elektronen für größere Streuwinkel relativ zu elastisch gestreuten zu.

## 2.3 Kathodolumineszenzspektroskopie

Kathodolumineszenz resultiert aus der strahlenden Rekombination von elektronenstrahl-generierten Überschussladungsträgern. Die CL-Intensität ist somit ein direktes Maß für die Konzentration an Überschussladungsträgern. Die Erzeugung jener Überschussladungsträger ist damit eine Voraussetzung für die CL-Spektroskopie. Dies ist der Fall, wenn inelastische Streueignisse, die zur Erzeugung von Elektronen im Leitungsband als auch Löcher im Valenzband führen, vermehrt auftreten.

### 2.3.1 Ortsauflösung

In der CL-Mikroskopie ist die örtliche Auflösung durch zwei Faktoren bestimmt: das Generationsvolumen und die Diffusion der generierten Ladungsträger. Das Anregungsvolumen lässt sich durch Verwendung von dünnen Schichten und hohen Beschleunigungsspannungen in der STEM-CL-Mikroskopie deutlich gegenüber der Kathodolumineszenz im Rasterelektronenmikroskop (SEM) verbessern. Dies kann auf die Erhöhung der mittleren freien Weglänge für elastische und inelastische Streuprozesse mit steigender Elektronenenergie zurückgeführt werden. Dies äußert sich unmittelbar in einer Verringerung der Strahlaufweitung für steigende Beschleunigungsspannungen und reduzierender Dicke der TEM-Lamelle (siehe Abschnitt 2.2.1).

#### Generationsvolumen

Das Generationsvolumen in der STEM-CL-Mikroskopie ist durch den Raumbereich, in dem Überschussladungsträger erzeugt werden, definiert. Geht man davon aus, dass jedes un-/gestreute Primärelektron Überschussladungsträger generieren kann, so kann der in Abschnitt 2.2.1 diskutierte Sondendurchmesser als auch die Strahlverbreiterung zur Berechnung der Anregungsweite bzw. des Generationsvolumens herangezogen werden. Unter der Annahme eines Gaußschen Intensitätsprofils des Primärelektronenstrahls lässt sich die laterale Anregungsweite nach

$$\Delta R = \sqrt{b_{STEM}^2 + R_{probe}^2} \quad (2.2)$$

$\Delta R$  – laterale Anregungsweite der Elektronen bei Lamellenaustritt  
 $R_{probe}$  – Durchmesser des einfallenden Elektronenstrahls

definieren [77].  $\Delta R$  ist die Anregungsweite der Primärelektronen beim Lamellenaustritt. Für eine Lamellendicke von 100 nm, einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und einem Sondendurchmesser von 0,56 nm ergibt sich eine laterale Anregungsweite von 3,3 nm.

### Ladungsträgerdiffusion

Aufgrund der globalen Detektion der Kathodolumineszenz in der STEM-CL-Mikroskopie ist die Diffusion der Ladungsträger die limitierende Größe für die örtliche Auflösung. Dabei verringert sich die Ortsauflösung bei konstanter Beschleunigungsspannung mit steigender Diffusionslänge der Ladungsträger.

Da bei der Elektron-Loch-Generation ein Ladungsträgerkonzentrationsunterschied zwischen Anregungsvolumen und umgebenen Material besteht, kommt es zur Diffusion der Überschussladungsträger in benachbarte Bereiche. Für eine deltaförmige Anregung lautet die Lösung der eindimensionalen Diffusionsdifferentialgleichung:

$$\Delta p(x) = G_0 \tau_{life} e^{-\frac{|x|}{L}}. \quad (2.3)$$

$\Delta p$	– Dichte der generierten Löcher
$G_0$	– Generationsrate
$\tau_{life}$	– Lebensdauer
$L_{diff}$	– Diffusionslänge

Jedoch muss für ein endlich ausgedehntes Anregungsprofil die Gleichung 2.3 mit der Generationsverteilung gefaltet werden. Im Fall eines Gaußförmigen Anregungsprofils kann der örtliche Verlauf der Überschussladungsträgerkonzentration mit Hilfe der Gaußschen Fehlerfunktion ausgedrückt werden. Zur Ableitung der Diffusionsgleichungen und Anwendung auf spezielle Probleme der Kathodolumineszenzmikroskopie sei auf [86, 87, 88, 89] verwiesen.

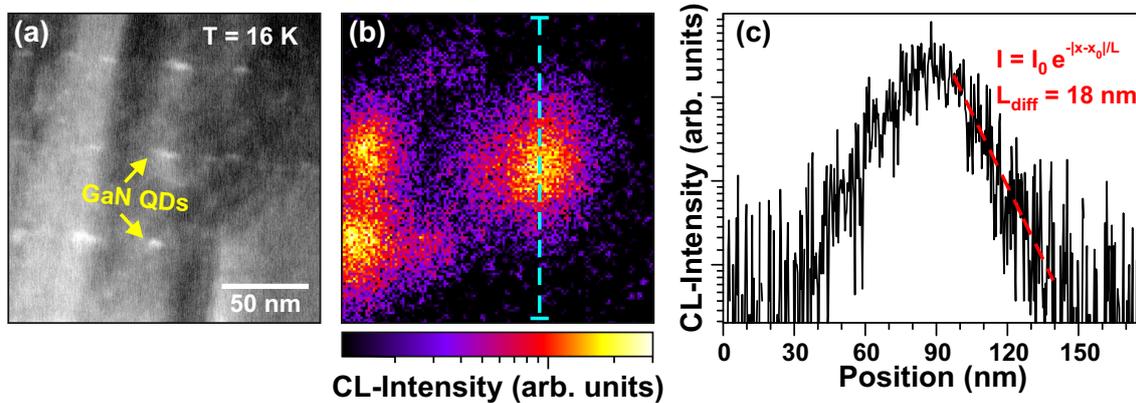
Exemplarisch soll für die Diffusion von Überschussladungsträgern eine STEM-CL-Charakterisierung an einer mittels MBE gewachsenen GaN/AlN-Quantenpunkt-heterostruktur gezeigt werden<sup>4</sup>. Eine mit Hilfe der metallorganischen Gasphasenepitaxie auf einem Saphirsubstrat abgeschiedene AlN-Schicht dient als Template für den nachfolgenden Wachstumsprozess. Anschließend wurde ein Stapel von zehn GaN-QD-Schichten, jede in eine 50 nm dicke AlN-Barriere eingebettet, auf dem AlN-MOVPE/Saphir-Template unter Stranski-Krastanow-Wachstumsbedingungen gewachsen. Rasterkraftmikroskopaufnahmen der Referenzstruktur ohne obere AlN-Deckschicht weisen eine homogene QD-Verteilung mit einer Dichte von  $3\text{-}4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  auf.

In den STEM-Aufnahmen der querschnittspräparierten Probe sind deutlich die AlN-Barrieren und die Quantenpunktschichten zu sehen. Beim Vergleich der STEM-Bilder mit den bei 16 K simultan aufgezeichneten panchromatischen CL-Intensitätsbildern ist eine zirkuläre Lumineszenzverteilung um die im ADF erkennbaren QDs zu beobachten (siehe Abb. 2.6 (a, b)). Es sind allerdings nicht alle im ADF-Kontrast sichtbaren QDs optisch aktiv. Bei der Untersuchung der Lumineszenzverteilung einzelner Quantenpunkte wurde ein

<sup>4</sup>Die GaN/AlN-Quantenpunktstruktur wurde am CEA-Grenoble am Institut Nanosciences et Cryogénie in der Gruppe von Frau Dr. Eva Monroy von Aparna Das gewachsen.

## 2 Kathodolumineszenzspektroskopie im STEM

Bereich von  $175 \cdot 175 \text{ nm}^2$  im panchromatischen Modus abgerastert. Das Intensitätsprofil in Abb. 2.6 (c) zeigt einen monoexponentiellen Intensitätsanstieg in Richtung eines einzelnen QDs. Da die Intensität der Kathodolumineszenz direkt proportional zur Überschussladungsträgerdichte ist, kann die exponentielle Abhängigkeit aus Gl. 2.3 als Anpassungsfunktion genutzt werden. Damit konnte eine Diffusionslänge der generierten Ladungsträger von 18 nm extrahiert werden.



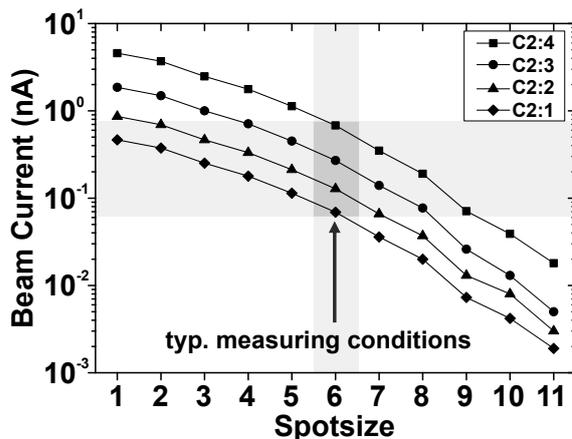
**Abbildung 2.6:** STEM-CL-Messung bei 16 K an einem GaN/AlN-Quantenpunktstapel: (a) ADF-Aufnahme aus dem Quantenpunktstapel mit GaN-QD in hellgrauem Kontrast, (b) simultan aufgezeichnetes panchromatisches CL-Intensitätsbild zeigt zirkuläre Intensitätsverteilung um QDs, (c) Linienscan über einen optisch aktiven QD (in (b) markierte cyan-farbene Strichlinie) mit ermittelter Diffusionslänge von 18 nm [90].

### 2.3.2 Anregungsbedingungen

Für die Interpretation der Lumineszenzspektren ist es von äußerster Wichtigkeit die gegebenen Anregungsbedingungen zu kennen. Je nach Anregungsfall kann sich u. a. die Rekombinationskinetik deutlich ändern. Hierbei sind zwei Grenzfälle der Anregung zu unterscheiden. Im Niederanregungsfall ist die Überschussladungsträgerdichte deutlich geringer als die Majoritäts- bzw. Dotierkonzentration und *vice versa* im Hochanregungsfall. Im Folgenden soll die Anregungsdichte bzw. Generationsrate in der STEM-CL-Spektroskopie beleuchtet werden. Dazu ist zunächst eine Bestimmung des Primärelektronenstrahlstroms von Nöten.

#### Primärelektronenstrahlstrom

Der Primärelektronenstrahlstrom im TECNAIF20 wurde mit Hilfe eines Doppelkipphalters mit integriertem Faradaycup Modell 646 der Firma GATAN bestimmt. In Abbildung 2.7 ist der gemessene Strahlstrom des Primärelektronenstrahls als Funktion der *spotsize* bei unterschiedlichen Einstellungen der Kondensorapertur C2 und fester C1-Apertur. Es können Strahlströme von 2 pA bis 4,6 nA realisiert werden. Für die typisch in STEM-CL-Experimenten verwendete *spotsize* von 6 lassen sich mit der Variation der C2-Apertur Strahlströme von 70 pA bis 680 pA einstellen.



**Abbildung 2.7:** Strahlstrom in Abhängigkeit der *spotsize*-Einstellungen für unterschiedliche Aperturblenden der C2-Kondensorlinse.

#### Abschätzung der Generationsrate und Anregungsdichte

Im Gegensatz zur CL-Spektroskopie an Volumenmaterial im Rasterelektronenmikroskop, bei der ein einzelnes Primärelektron Kaskaden inelastischer Wechselwirkungen erfahren kann, erfährt ein Primärelektron im STEM in dünnen Schichten lediglich einige wenige bis keine inelastischen Streuvorgänge. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron  $j$  Kollisionen erfährt, lässt sich für unabhängige inelastische Streuvorgänge mit Hilfe der Poissonstatistik berechnen [91]:

$$P_j = \frac{(d_{foil}/l_{imfp})^j}{j!} e^{-d_{foil}/l_{imfp}}. \quad (2.4)$$

- $P_j$  – Wahrscheinlichkeit für  $j$  inelastische Streuereignisse  
 $j$  – Anzahl der Streuereignisse  
 $l_{imfp}$  – mittlere freie Weglänge für inelastische Streuung der Primärelektronen

Die mittlere freie Weglänge stellt die mittlere Distanz dar, die ein Primärelektron zwischen einzelnen inelastischen Streuvorgängen zurücklegt. Diese inelastischen Streuprozesse treten mehrfach auf, wenn die Dicke der TEM-Lamelle  $l_{imfp}$  übersteigt. Das in Gl. 2.4 auftretende Verhältnis  $d_{foil}/l_{imfp}$  wird als relative Schichtdicke bezeichnet und ist gleichzeitig der Erwartungswert dieser Wahrscheinlichkeitsverteilung. Damit kann eine Aussage zur mittleren Anzahl an Streuereignissen  $\bar{N}_{inel}$  auf die Angabe der relative Schichtdicke reduziert werden: Primärelektronen erfahren im Mittel  $\bar{N}_{inel} = d_{foil}/l_{imfp}$  inelastische Wechselwirkungen. Folglich finden für Werte der relativen Schichtdicke von *eins* im Mittel Einzelstreuereignisse statt. Nach Gl. 2.4 beträgt die Wahrscheinlichkeit, dass ein Primärelektron nicht inelastisch gestreut wird, 36,8% beim Passieren einer Schicht mit der relativen Schichtdicke  $d/l_{imfp} = 1$ . Weitere 36,8% der Primärelektronen erfahren genau einen inelastischen Streuprozess. Für GaN ist dies der Fall, wenn die Lamellendicke den Wert der mittleren freien Weglänge von 87 nm besitzt<sup>5</sup> [92]. Der Erwartungswert der Anzahl an inelastischen Streuvorgängen ist gerade der relativen Schichtdicke gleichzusetzen.

Die zur Generation von Überschussladungsträgern benötigte Energie  $E_i$  kann nach Kobayashi *et al.* [93] empirisch aus der Kenntnis der Bandlückenenergie des Halbleiters berechnet werden:

$$E_i = 2,596 E_g + 0,714. \quad (2.5)$$

- $E_i$  – Elektron-Loch-Paar-Bildungsenergie in [eV]  
 $E_g$  – Bandlückenenergie in [eV]

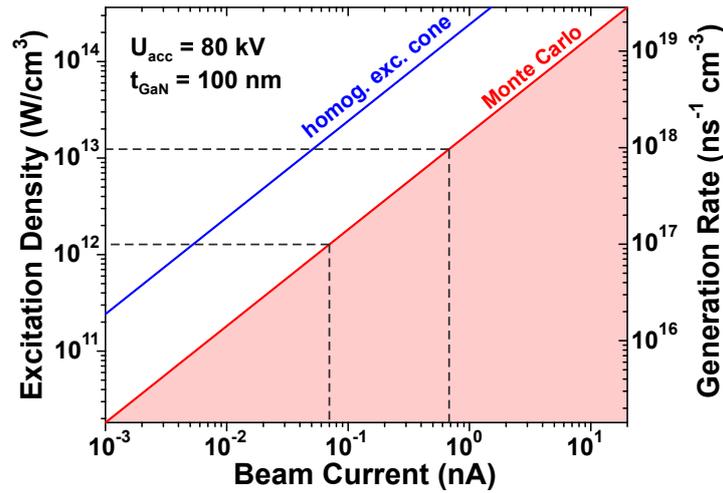
Für GaN ergibt sich hieraus eine Energie von 9,8 eV. Bei inelastischen Streuprozessen mit einem Energieverlust oberhalb von  $E_i$  besteht die Möglichkeit der Generation von Überschussladungsträgern. Der mittlere Energieverlust der Primärelektronen pro inelastischer Streuung  $\overline{\Delta E_{inel}}$  kann aus der Poisson-Statistik berechnet werden [91]:

$$\overline{\Delta E_{inel}} = \sum_{j=0}^{\infty} E_j P_j = E_p \frac{d}{l_{imfp}}, \quad (2.6)$$

- $E_p$  – Plasmonenenergie

---

<sup>5</sup>bei 80 kV Beschleunigungsspannung und einem Akzeptanzwinkel von 5 mrad



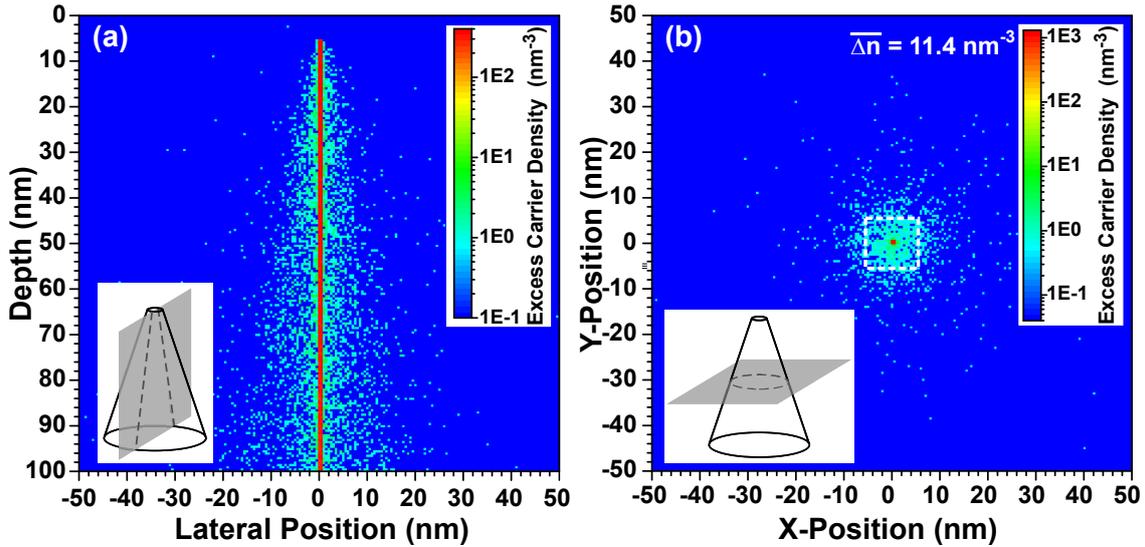
**Abbildung 2.8:** Abgeschätzte Anregungsdichte und Generationsrate bei 80 kV Beschleunigungsspannung als Funktion des Primärelektronenstrahls für eine 100 nm dicke GaN-Lamelle in der STEM-CL: rote Linie - aus Monte Carlo-Simulation bestimmte Abhängigkeit; blaue Linie - Modell des homogen angeregten Kegelstumpfes.

wobei das Niederenergie-Verlustspektrum der Primärelektronen einzig durch eine Serie scharfer Plasmonenpeak-Repliken approximiert wurde. Da das Verlustspektrum im EELS-Experiment durch einen intensiven Plasmonenpeak für  $\Delta E > 0$  und deren Repliken stark dominiert ist, scheint diese Annahme offensichtlich gerechtfertigt. Damit ist der mittlere Energieverlust indentisch zur Plasmonenenergie für relative Schichtdicken von eins. Im Fall von GaN beträgt der mittlere Energieverlust gerade 19,7 eV [94] bei  $d/l_{imfp} = 1$  und übersteigt damit  $E_i$ .

Da in GaN  $\overline{\Delta E_{inel}} > E_i$  und  $\overline{N}_{inel} = 1$  für  $d/l_{imfp} = 1$  gilt, kann angenommen werden, dass jedes Primärelektron im Mittel *ein* Elektron-Loch-Paar generiert. Diese eins-zu-eins Konvertierung der Primärelektronen in Überschussladungsträger kann als erste Approximation der Ladungsträgergeneration angesehen werden. Damit lässt sich mit Hilfe der simplen Näherung des Generationsvolumens zum Kegelstumpf<sup>6</sup> eine Generationsrate bzw. Anregungsdichte abschätzen. In Abb. 2.8 ist die Generationsrate bzw. Anregungsdichte als Funktion des Strahlstroms für eine 100 nm dicke GaN-Lamelle im Fall des Modells der eins-zu-eins Konvertierung im homogen angeregten Kegelstumpf (blaue Linie in Abb. 2.8) dargestellt. Für die in STEM-CL-Experimenten typischen Strahlströme erhält man Anregungsdichten bzw. Generationsraten im Bereich von  $1,7 \cdot 10^{13}$  bis  $1,6 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>-3</sup> bzw.  $1,3 \cdot 10^{18}$  bis  $1,3 \cdot 10^{19}$  ns<sup>-1</sup>cm<sup>-3</sup>.

Um eine präzisere Abschätzung der Anregungsdichte vorzunehmen, wurden Monte Carlo-Simulationen an einer 100 nm dicken GaN-Schicht bei einer Beschleunigungsspannung von

<sup>6</sup>Der Durchmesser der Deckfläche bzw. Grundfläche des Kegelstumpfs sei gerade der Sondendurchmesser  $R_{probe}$  bzw. strahlverbreiteter Durchmesser  $\Delta R$ .



**Abbildung 2.9:** Simulierte (Monte Carlo) Verteilungen der maximalen Überschussladungsträgerdichte für unterschiedliche Schnittdarstellungen: (a) Querschnitt, (b) Transversalschnitt durch die Lamellenmitte (weiß gestrichelter Bereich mit  $11,4 \text{ nm}^{-3}$  mittlerer Ladungsträgerdichte).

80 kV durchgeführt<sup>7</sup>. Der Sondendurchmesser des einfallenden Elektronenstrahls wurde zu  $0,56 \text{ nm}$  (experimentell bestimmter Wert, siehe Abschnitt 2.2.1) gewählt. Die aus der Simulation resultierende Dichteverteilungen der Überschussladungsträger sind in Abb. 2.9 im (a) Längs- und (b) Transversalschnitt durch das Generationsvolumen zu sehen. Die abgebildete Ladungsträgerdichte ergibt sich aus der Anzahl der Streueignisse je Pixelvolumen mit einem Energieverlust, der die Elektron-Loch-Paar-Bildungsenergie  $E_i$  übersteigt<sup>8</sup>. Da nicht jede Streuung zur Generation von Überschussladungsträgern führen muss, ist die angegebene Dichte als obere Schranke aufzufassen.

Die Querschnittsdarstellung der Ladungsträgerdichteverteilung in Abb. 2.9(a) zeigt die höchste Anzahl generierter Ladungsträger pro Volumen im Bereich des direkten Elektronenstrahls, der an der lateralen Position  $x=0$  senkrecht durch die TEM-Lamelle verläuft. Für  $x \neq 0$  nimmt die Dichte in lateraler Richtung ab. Im Transversalschnitt durch die Lamellenmitte in Abb. 2.9(b) befindet sich der einfallende Elektronenstrahl an der lateralen Position ( $x=0, y=0$ ), wo die höchste Überschussladungsträgerdichte von  $1306 \text{ nm}^{-3}$  auftritt. Die Generationsdichte nimmt drastisch außerhalb des direkten Elektronenstrahls ab. Das weiß-gestrichelt markierte Gebiet beinhaltet 95% aller generierten Ladungsträger in dem Transversalschnitt und besitzt eine mittlere Ladungsträgerdichte von  $11,4 \text{ nm}^{-3}$ .

In Abb. 2.8 ist die Anregungsdichte wie auch die Generationsrate als Funktion des Pri-

<sup>7</sup>Es wurden 50000 Trajektorien mit der Monte Carlo-Simulationssoftware CASINO v2.48 simuliert.

<sup>8</sup>Das Volumen jedes Pixels wurde aus der Größe der Klasseneinteilung und der Breite des Schnittes berechnet.

märelektronenstrahlstroms dargestellt. Zur Berechnung der Abhängigkeit wurde die mittlere Überschussladungsträgerdichte des markierten Bereichs in Abb. 2.9 (b) angenommen. Daraus ergibt sich für typische STEM-CL-Messbedingungen eine Anregungsdichte von  $1,3 \cdot 10^{12}$  bis  $1,3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^{-3}$  bzw. eine Generationsrate von  $1,0 \cdot 10^{17}$  bis  $9,9 \cdot 10^{17} \text{ ns}^{-1} \text{ cm}^{-3}$ . Bei einer Lebensdauer von 1 ns der Überschussladungsträger ergibt sich daraus eine Überschussladungsträgerdichte oberhalb der üblichen Hintergrunddotierung von GaN und unterhalb des Mott-Übergangs.

Es sei angemerkt, dass bei der Abschätzung der Anregungsdichte bzw. Generationsrate sowohl aus Monte Carlo-Simulationen als auch nach dem Modell des homogen angeregten Kegelstumpfes keine weiteren Konkurrenzprozesse berücksichtigt wurden. Insbesondere wurde die Generation von Auger-Elektronen, Plasmonen und Röntgenstrahlen nicht einbezogen. Es kann daher angenommen werden, dass durch die zur Überschussladungsträgergeneration konkurrierenden Prozesse weniger Ladungsträger in der TEM-Lamelle generiert werden. Damit sind die hier berechneten Abschätzungen der Anregungsdichte und Generationsrate als obere Schranken anzusehen.

Die experimentelle Bestimmung der Generationsrate bzw. Anregungsdichte in der STEM-CL-Mikroskopie erweist sich als schwierig. Als obere Schranke kann die relative Anzahl inelastischer Wechselwirkungen bei gegebenen Primärelektronenstrahl dienen. Mit Hilfe der Elektronenenergieverlustspektroskopie lässt sich die Intensität inelastischer Streuungen  $I_{EEL}^{inel}$ , die gerade proportional zur Anzahl inelastischer Wechselwirkungen ist, ermitteln. Dazu ist ein EEL-Spektrum mit einem großen Energieverlustbereich zu messen. Das energetische Fenster muss den gesamten *zero-loss*-Peak (ZLP) und Energieverluste weit oberhalb des Plasmonenpeaks beinhalten. Durch Entfaltung des *zero-loss*-Peaks kann  $I_{EEL}^{inel}$  bei gegebener Lamellendicke bestimmt werden. Zur Ermittlung des relativen Anteils inelastischer Wechselwirkungen bei gegebenem Strom muss  $I_{EEL}^{inel}$  auf die detektierte EEL-Gesamtintensität des Primärstrahls *ohne Probe* normiert werden.

Genau hier ergeben sich Probleme. Im Fall der EEL-Spektroskopie ist der Winkelbereich gestreuter Elektronen, die das Spektrometer erfasst, durch den Akzeptanzwinkel limitiert. In der Probe elastisch und inelastisch gestreute Primärelektronen werden für Winkel oberhalb des Akzeptanzwinkels vom EELS nicht registriert. Jedoch finden im Fall der Detektion des EEL-Spektrums ohne Probe trivialerweise keine Wechselwirkungen statt, sodass nahezu alle Primärelektronen vom Spektrometer registriert werden können. Dadurch ist die Gesamtintensität des EEL-Spektrums mit Probe beträchtlich geringer als die Gesamtintensität ohne Probe. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten EEL-Messungen ergaben eine Erfassung des EEL-Spektrometers von weniger als 20 % der ursprünglich im einfallenden Strahl befindlichen Primärelektronen. Damit ist eine Aussage zur Generationsrate bzw. Anregungsdichte mittels EELS-Experimenten nur unter der zusätzlichen Berücksichtigung der im kompletten Halbraum gestreuten Elektronen möglich.

### 2.3.3 Schichtdickenabhängigkeit der Kathodolumineszenz

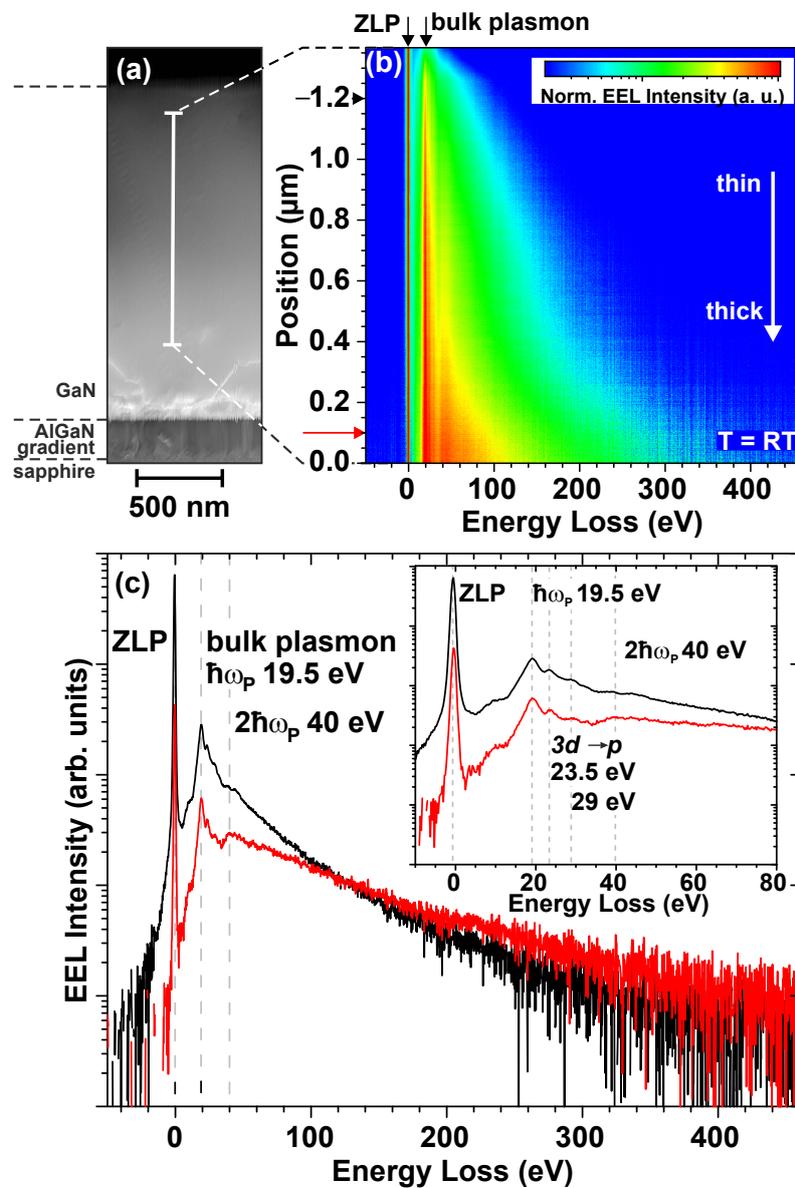
Für die Ermittlung der minimalen TEM-Lamellendicke, ab der Kathodolumineszenz in GaN zu beobachten ist, wird im Folgenden eine Korrelation der relativen Schichtdicke der TEM-Lamelle zur CL-Intensität der bandkantennahen Emission von GaN durchgeführt. Ein Zugang zur Ermittlung der TEM-Lamellendicke verglichen zu  $l_{im,fp}$  ist die relative Schichtdicke, die aus Elektronenenergieverlustspektren gewonnen werden kann.

Als Probenmaterial dient für diese Untersuchung eine nominell undotierte GaN-Schicht, welche auf einem Saphirsubstrat mit AlGaIn-Gradientenschicht mittels MOVPE gewachsen wurde<sup>9</sup>. In Abb. 2.10 (a) ist das STEM (HAADF)-Bild der querschnittspräparierten Probe zu sehen. Aufgrund der Dickenabnahme der TEM-Lamelle vom Substrat zur Oberfläche nimmt der HAADF-Kontrast im GaN in Wachstumsrichtung ab. Entlang des Schichtdickengradienten (weiße Strichlinie Abb. 2.10 (a)) wurde der Elektronenenergieverlust im versetzungsfreien GaN-Kristall bei 80 keV Primärelektronenenergie analysiert. In Abb. 2.10 (b) ist der auf den ZLP normierte EEL-Linienscan dargestellt. Von dünnen zu dicken TEM-Lamellen nimmt die EEL-Intensität im *low-loss*-Bereich ( $0 \text{ eV} < \text{EEL} < 50 \text{ eV}$ ) relativ zum ZLP zu, da die Anzahl inelastischer Wechselwirkungen mit steigender Schichtdicke zunimmt. Dies ist deutlich in den lokalen Spektren in Abb. 2.10 (c) erkennbar. Die maximale EEL-Intensität im *low-loss*-Bereich bei 19,5 eV ist dem Plasmonenpeak zuzuordnen [94]. Zur weiteren Identifikation der Streuprozesse ist in der eingefügten Grafik der Abb. 2.10 (c) eine vergrößerte Ansicht des *low-loss*-Bereiches zu sehen. Die Erhöhung der Energieverlustfunktion mit deutlich ausgeprägten Schultern zwischen 2 eV und 20 eV spiegelt den Anstieg der Zustandsdichte mit steigender Energie wieder. In diesem Energiebereich finden Intra-bandübergänge statt [95]. Auf der hochenergetischen Seite des Plasmonenpeaks können zusätzlich Übergänge der 3d-Elektronen in p-Orbitale bei 23,5 eV und 29 eV ausgemacht werden [94]. Dem schließt sich eine weitere Bande oberhalb von 40 eV an. Dieser Verlustprozess kann als Replik des Plasmonenpeaks identifiziert werden [91]. Durch eine zweifache Streuung der Primärelektronen an Plasmonen kommt es hier zur Ausbildung eines Übergangs bei  $2\hbar\omega_p$ . Aufgrund der Wahrscheinlichkeit der Elektronenanregung ins Kontinuum fällt die EEL-Intensität für höhere Energieverluste kontinuierlich ab [91].

Unabhängige inelastische Streueignisse liefern für die Wechselwirkung der Primärelektronen eine Poissonstatistik (siehe Gl. 2.4). Daraus lässt sich die auf  $l_{im,fp}$  normierte Schichtdicke - die relative Schichtdicke - nach

---

<sup>9</sup>Diese Probe wird ausführlich in Abschnitt 3.1.2 behandelt. Details zum Probenwachstum können dort entnommen werden.



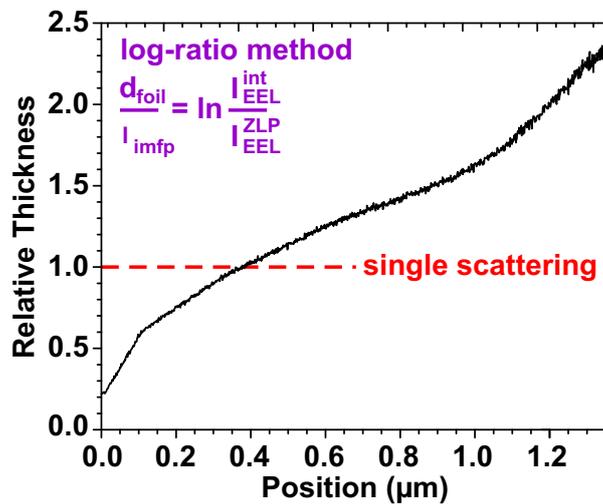
**Abbildung 2.10:** Analyse des Elektronenenergieverlustes in GaN bei 80 keV Primärelektronenenergie entlang des Dickengradienten der TEM-Lamelle: (a) STEM (HAADF)-Bild des untersuchten Probenbereichs mit eingezeichneter Linienscanposition (weiße Linie), (b) auf ZLP normierter EEL-Linienscan (Pfeile markieren Position der lokalen Spektren), (c) lokale EEL-Spektren aus dünnem (schwarz) und dicken (rot) Bereichen.

$$\frac{d_{\text{foil}}}{l_{\text{imfp}}} = \ln \frac{I_{\text{EEL}}^{\text{integral}}}{I_{\text{EEL}}^{\text{ZLP}}}. \quad (2.7)$$

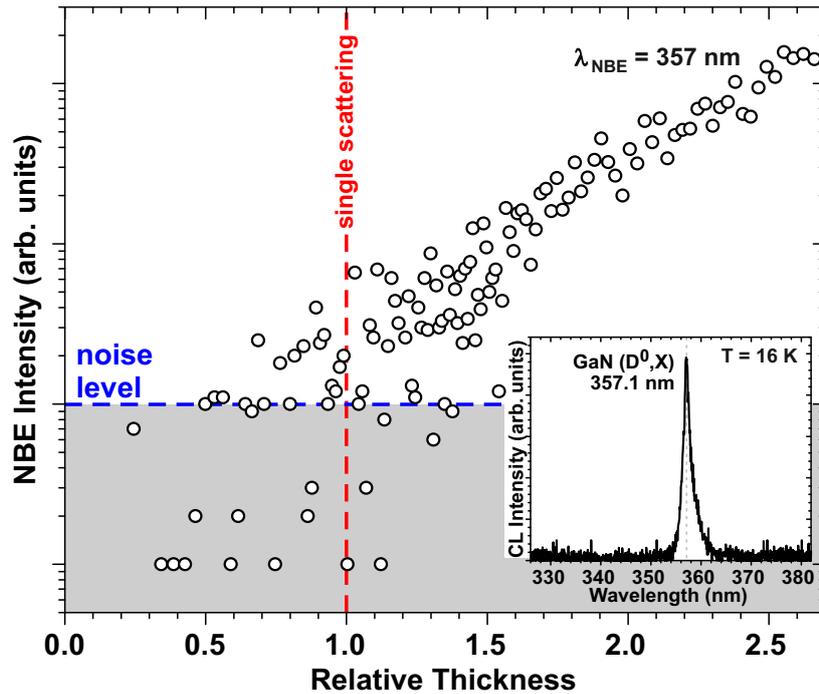
- $d_{\text{foil}}/l_{\text{imfp}}$  – relative Schichtdicke  
 $I_{\text{EEL}}^{\text{integral}}$  – integrale Intensität des Elektronenenergieverlustes  
 $I_{\text{EEL}}^{\text{ZLP}}$  – EEL-Intensität des zero-loss-Peaks

bestimmen [91]. Dieses als *log-ratio*-Methode bekannte Verfahren wurde für alle EEL-Spektren des Linienscans in Abb. 2.10 (b) durchgeführt und ist in der Praxis gültig für relative Schichtdicken bis zu einem Wert von vier [96, 97]. Die ermittelte lokale relative Dicke als Funktion der Linienscanposition ist in Abb. 2.11 dargestellt. Für eine relative Lamellendicke von eins finden vornehmlich Einzelstreueignisse in der TEM-Folie statt. Für  $d/l_{\text{imfp}} > 1$  werden inelastische Mehrfachwechselwirkungen wahrscheinlicher.

An derselben Position des EEL-Linienscans (siehe Abb. 2.10) wurde bei 16 K ein monochromatischer Intensitätslinienscan der bandkantennahen Emission (NBE) von GaN durchgeführt. Das ortsintegrale Spektrum aus dem Bereich ist in der eingefügten Grafik in Abb. 2.12 zu sehen. Die CL-Intensität der GaN-NBE wurde anschließend der aus EEL-Spektren gewonnenen relativen Schichtdicke zugeordnet und in Abbildung 2.12 dargestellt. Für relative Schichtdicken von 0 bis 0,7 ist lediglich CL-Intensität der GaN-NBE unterhalb des Rauschniveaus zu erkennen. CL-Intensität oberhalb des Rauschniveaus ist ab einer relativen Schichtdicke von  $d/l_{\text{imfp}} = 1 \pm 0,3$  zu sehen. Mit steigender relativer Schichtdicke nimmt die Intensität kontinuierlich zu.



**Abbildung 2.11:** Nach der log-ratio-Methode ermittelte relative Schichtdicke der TEM-Lamelle als Funktion der Linienscanposition (siehe Abb. 2.10 (b)).



**Abbildung 2.12:** CL-Intensität der bandkantennahen Emission in GaN (357 nm) bei  $T = 16$  K als Funktion der aus EELS-Messungen bestimmten relativen Schichtdicke der TEM-Lamelle, eingefügte Grafik: ortintegrale CL-Spektrum aus dem Bereich in Abb. 2.10 (a) zeigt die GaN-NBE.

Für die relative Schichtdicke von  $d/l_{imfp} = 1 \pm 0,3$ , ab der merklich CL-Intensität in GaN zu beobachten ist, sind mehrere mögliche Faktoren zu berücksichtigen. Da die Gesamtintensität der Kathodolumineszenz direkt proportional zur Überschussladungsträgerdichte ist, muss selbstverständlich zunächst eine Generation von Elektron-Loch-Paaren stattfinden. Dies ist der Fall, wenn eine signifikante Wahrscheinlichkeit für einen inelastischen Streuprozess bei dem ein Energieverlust oberhalb der Elektron-Loch-Paar-Bildungsenergie  $E_i$  vorliegt. Anhand der Poisson-Statistik der Streuung von Primärelektronen ist der Erwartungswert für die Anzahl inelastischer Wechselwirkungen durch die relative Schichtdicke gegeben. Bei einer relativen Schichtdicke von  $1$  findet im Mittel  $1$  inelastisches Streueignis mit einem mittleren Energieverlustes von  $E_P$  statt. Damit ist bei dieser relativen Schichtdicke die Wahrscheinlichkeit gegeben, Elektron-Loch-Paare zu erzeugen.

Der signifikante Unterschied der Kathodolumineszenz an Volumenkristallen im SEM zur STEM-CL ist die Spektroskopie an sehr dünnen Schichten. Da die Ladungsträgergeneration äußerst nahe der Oberfläche der TEM-Lamelle stattfindet, kann die Oberflächenrekombination eine entscheidende Rolle in der STEM-CL spielen. Die dazugehörige Differentialgleichung der Oberflächenrekombination lautet [98]:

$$s \Delta p = D \left. \frac{\partial \Delta p}{\partial z} \right|_{z=0}. \quad (2.8)$$

- $s$  – Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit  
 $D$  – Diffusivität

Die Lösung der Gleichung 2.8 skaliert mit  $e^{-z/L_{diff}}$  [98], mit  $L_{diff}$  als Diffusionslänge der generierten Ladungsträger. Damit erreichen die Überschussladungsträger innerhalb ihrer Diffusionslänge die Oberfläche der TEM-Lamelle, wo sie nichtstrahlend rekombinieren. Für  $L_{diff} \gg d_{foil}$  ist deshalb davon auszugehen, dass hauptsächlich nichtstrahlende Oberflächenrekombination stattfindet. Dieses Problem ist hinlänglich im GaAs-Materialsystem bekannt, in dem eine sehr große Diffusionslänge und Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit vorherrscht. Nur durch die Passivierung der Oberfläche ist es möglich STEM-CL an diesen Schichten durchzuführen [99].

Nach der Gegenüberstellung von NBE-Intensität und relativer Schichtdicke in Abb. 2.12 setzt die Kathodolumineszenz im Bereich von  $d/l_{imfp} = 1$  ein. Dies kann als ein Einsetzen der CL interpretiert werden, sobald inelastische Streueignisse des Primärelektrons wahrscheinlich werden. Dieses intuitive Bild ist vor dem Hintergrund der Oberflächenrekombination allerdings nicht als allgemeingültig vorzusetzen.

### 2.3.4 Strahlschädigung

Die Schädigung der Probe und die Degradation der Lumineszenz unter Elektronenstrahl-anregung spielt eine bedeutende Rolle in der STEM-CL-Mikroskopie. Die drei grundlegenden Schädigungsmechanismen, die bei der Elektronenbestrahlung auf Festkörper auftreten können, sind *knock-on*-Schädigung, Radiolyse und Aufheizen der Probe. Nach den Untersuchungen von B. Bastek [24] konnte für das GaN-Materialsystem eine drastische Reduktion der Lumineszenzdegradation bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV beobachtet werden. Im Folgenden werden die Schädigungsarten genauer diskutiert und für das InGaN-Materialsystem herausgearbeitet. Anschließend wird auf die Effekte der Elektronenbestrahlung auf die Kathodolumineszenz in der STEM-CL-Mikroskopie an einer InGaN-Mehrfachquantenfilmstruktur eingegangen und deren Ursachen diskutiert.

#### *knock-on*-Schädigung

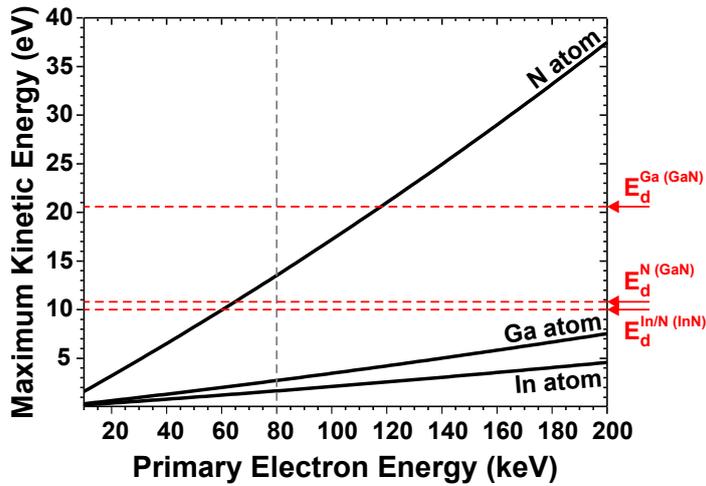
Die *knock-on*-Schädigung beinhaltet die Wechselwirkung der Primärelektronen mit den Atomen des Festkörpers und umfasst den Energie- und Impulstransfer des einstrahlenden Primärelektrons auf das Atom des Festkörpers mit der darauffolgenden dauerhaften Verlagerung des Atoms [100]. Diese Positionsverlagerung benötigt eine im Allgemeinen richtungsabhängige minimale kinetische Energie [101]. Oberhalb dieser Grenzwertenergie kann ein Atom vom eintreffenden Teilchen dauerhaft auf einen Zwischengitterplatz transferiert werden. Unterhalb der Verlagerungsenergie findet kein *knock-on*-Prozess statt.

Die Primärelektron-Atom-Wechselwirkung kann grundsätzlich als elastischer Stoßprozess beschrieben werden. Die maximale Energie, die auf das Atom übertragen wird, lautet [102]:

$$E'_A|_{max} = \frac{2m_e (E_e + 2m_e c^2) E_e}{M_A m_e c^2}. \quad (2.9)$$

- $E'_A|_{max}$  – maximale kinetische Energie des Atoms nach dem Stoßprozess
- $m_e$  – Ruhmasse des Elektrons
- $E_e$  – Primärelektronenenergie vor Stoßprozess
- $M_A$  – Ruhmasse des Atoms

In Abbildung 2.13 ist  $E'_A|_{max}$  für die jeweilige Atomsorte des (In)(Ga)N-Materialsystems in Abhängigkeit von der Energie der Primärelektronen aufgetragen. Darin kann man erkennen, dass bei gleicher Primärelektronenenergie die kinetische Energie von Indium über Gallium zu Stickstoff steigt.



**Abbildung 2.13:** Berechnete maximale kinetische Energie eines Indium-, Gallium- und Stickstoffatoms nach einem elastischen Stoßprozess mit einem Primärelektron als Funktion der anfänglichen Primärelektronenenergie (schwarze Linien) und Grenzwertenergie  $E_d$  des *knock-on*-Prozesses (rote Strichlinien) für die atomaren Spezies in GaN bzw. InN.

Damit ein Atom permanent die Gitterposition verlässt, muss dessen kinetische Energie die zur Verlagerung benötigte Energie überschreiten. Unterhalb dieser Grenzwertenergie ist eine Verschiebung des Atoms unwahrscheinlich. Bisher konnte eine Grenzwertenergie an GaN mit einer Bestrahlung von 0,7 MeV- bis 1 MeV-Elektronen für ein Galliumatom zu 20,5 eV und für ein Stickstoffatom zu 10,8 eV bestimmt werden [103]. Da bisher keine experimentellen Daten für die Grenzwertenergie von InN bekannt sind, wurde nach Mera *et. al* [104] ein mittlerer Wert von 10 eV für die Aktivierungsenergie des *knock-on*-Prozesses berechnet<sup>10</sup>. Die Grenzwertenergien für die beiden Materialien GaN und InN sind in der Abbildung 2.13 eingetragen. Ein initialer *knock-on*-Prozess findet für Gallium- bzw. Indiumatome erst oberhalb von 200 keV Primärelektronenenergie statt. Jedoch kann eine Verlagerung des Stickstoffatoms in GaN bzw. InN bereits oberhalb von 65 keV bzw. 60 keV auftreten. Damit ist ein am Stickstoffatom einsetzender *knock-on*-Prozess im GaN bzw. InN möglich. Diese Stickstoffverlagerung wurde bereits für 100 keV beobachtet [100].

### Lokales Aufheizen des Präparats

Inelastische Wechselwirkungen der Primärelektronen sind mit einem Energieverlust der einstrahlenden Elektronen verbunden. Unter der Annahme, dass der Energieverlust ausschließlich das Aufheizen des Festkörpers begünstigt, kann die eingestrahlte Leistung  $P_{in}$  mit Hilfe der generierten Wärme pro Einheitslänge  $dQ/dx$  nach oben abgeschätzt werden [76]:

<sup>10</sup>Die Aktivierungsenergie kann nach Mera *et al.* nach der empirischen Formel  $E_d = 0,859(10/c)^{4,363}$  berechnet werden ( $c$  sei die Gitterkonstante). Für InN wurde die  $c$ -Gitterkonstante mit 5,7 Å zur Berechnung der Grenzwertenergie verwendet.

$$P_{in} = \frac{I_e \bar{N}_{inel}}{e} \frac{dQ}{dz} d_{foil}. \quad (2.10)$$

- $I_e$  – Strom des einfallenden Primärelektronenstrahls  
 $e$  – Elementarladung  
 $\bar{N}_{inel}$  – mittlere Anzahl inelastischer Stöße je Primärelektron  
 $dQ/dz$  – generierte Wärme pro Einheitslänge

Der erste Term in Gleichung 2.10 stellt die Anzahl der inelastisch wechselwirkenden Primärelektronen je Zeiteinheit dar. Die mittlere Anzahl inelastischer Wechselwirkungen je Primärelektron  $\bar{N}_{inel}$  ist identisch zur relativen Schichtdicke (siehe Abschnitt 2.3.2). Der zweite Term drückt den Energieverlust in der Schicht mit der Dicke  $d_{foil}$  aus. Dieser Term kann durch den mittleren Energieverlust je Primärelektron ausgedrückt werden, der durch  $E_P \cdot d_{foil}/l_{imfp}$  gegeben ist (siehe Abschnitt 2.3.2). Um die stationäre Temperatur innerhalb des Bestrahlungsspots zu erhalten, wird  $P_{in}$  der durch Wärmeleitung und Wärmestrahlung an die Umgebung abgegebenen Leistung gleichgesetzt. Der Einfluss der Wärmestrahlung kann aufgrund des geringen Emissionsvermögens vernachlässigt werden [76, 105]. Die Differentialgleichung lautet damit für einen fokussierten Elektronenstrahl und einem Abstand zur Elektronensonde  $r$  größer als  $R_{probe}/2$  [76]:

$$P_{in} = -2\pi r t \kappa \frac{dT}{dr} \rightarrow \frac{dT}{dr} = -\frac{I_e \bar{N}_{inel}}{2\pi e \kappa} \frac{dQ}{dz} \frac{1}{r}. \quad (2.11)$$

- $r$  – radialer Abstand zur Elektronensondenmitte  
 $\kappa$  – Wärmeleitfähigkeit

Die Temperaturerhöhung am Rand des Bestrahlungsflecks beträgt somit

$$\Delta T = \frac{I_e}{2\pi e \kappa} \frac{E_P d_{foil}}{l_{imfp}^2} \ln \left( \frac{2R}{d} \right). \quad (2.12)$$

- $R$  – Abstand zu Bestrahlungsmittelpunkt bei dem  $T = T_0$   
 $T_0$  – Temperatur der TEM-Lamelle ohne Elektronenbestrahlung

Der Radius  $R$  ist dabei der Abstand vom Bestrahlungsmittelpunkt zu den Punkten, bei denen die Temperatur gerade wieder  $T_0$  beträgt. Die geringe Temperaturerhöhung vom Rand zum Mittelpunkt des Elektronenspots kann gegenüber der Temperaturdifferenz von  $R$  zum Elektronensondenrand vernachlässigt werden und somit die Gleichung 2.12 für die Abschätzung der maximalen Temperatur genutzt werden [76].

Für die Berechnung wurde der experimentell bestimmte Sondendurchmesser von 0,56 nm und eine mittlere freie Weglänge von 90 nm verwendet. Mit dem am TECNAIF20 maximal realisierbaren Strahlstrom von 4,6 nA, 100  $\mu$ m Abstand zum Sondenmittelpunkt und

einer Wärmeleitfähigkeit für GaN von  $1,3 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$  [106] ergibt sich eine Temperaturerhöhung von 18 mK. Die lokale Erwärmung und damit die Schädigung durch Aufheizen bei Raumtemperatur [100] als auch bei LHe-Temperatur kann somit als vernachlässigbar angenommen werden.

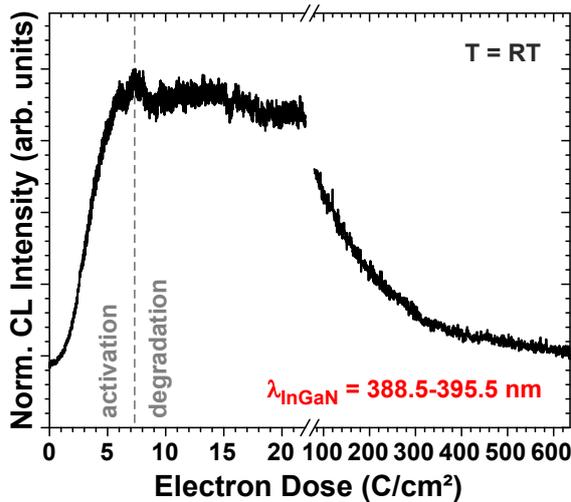
### Radiolyse

Radiolyse, die in Materialien mit ionischem und/oder kovalentem Bindungsanteil auftritt, wird durch die inelastische Streuung von Primärelektronen an Elektronen des Festkörpers verursacht [76, 77]. Mögliche Streuprozesse, die den radiolytischen Prozess initiieren, sind die Ionisierung der inneren Schalen mit der einhergehenden Emission eines Röntgenquants oder Augerelektrons, die Anregung von Plasmonen, die Generation von Elektron-Loch-Paaren bzw. Wannierexzitonen und die Erzeugung von lokal gebundenen Exzitonen [76]. Die Kathodolumineszenz ist dementsprechend die Folge strahlender Rekombination von Elektron-Loch-Paaren, die durch einen radiolytischen Prozess generiert wurden. Darüberhinaus kann Radiolyse die Generation von nichtstrahlenden Rekombinationszentren verursachen.

### Elektronenstrahlschädigung an einer InGaN-Mehrfachquantenfilmstruktur

Die Effekte der Elektronenbestrahlung auf die Kathodolumineszenz in der STEM-CL-Mikroskopie werden im Folgenden an einer InGaN-Mehrfachquantenfilmstruktur (MQW) untersucht. Bei der Probe wurde auf einem c-planaren Saphirsubstrat eine GaN-Schicht epitaktisch abgeschieden, um danach einen dreifach InGaN-Quantenfilm aufzuwachsen. Die Schichtdicke der GaN-Barrieren beträgt 18,5 nm. Die auf dem MQW befindliche GaN-Schicht weist eine Schichtdicke von 54 nm auf. Darauf wurde eine elektronenblockierende AlGaN-Schicht und eine 164 nm dicke GaN-Deckschicht gewachsen. Diese Probe wurde als TEM-Folie für Draufsichtuntersuchungen präpariert.

Zur bewusst herbeigeführten Elektronenstrahlschädigung an der InGaN-MQW-Struktur wurde eine Fläche von  $1,2 \cdot 1,2 \mu\text{m}^2$  bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV abgerastert. Um die zeitliche Entwicklung der InGaN-MQW-Intensität zu untersuchen, wurde die CL-Intensität im spektralen Fenster von  $(392 \pm 3,5) \text{ nm}$  erfasst. In Abbildung 2.14 ist die CL-Intensität des InGaN-MQWs als Funktion der Elektronendosis dargestellt. Darin ist im Bereich von 0 bis  $7,5 \text{ C/cm}^2$  ein anfänglicher Intensitätsanstieg zu beobachten. Die Zunahme der InGaN-MQW-Intensität ist mit einer Erhöhung der strahlenden Rekombinationsrate verbunden und kann damit als Aktivierungsprozess interpretiert werden. Ein derartiger Intensitätsanstieg konnte für jedwede Einstellung des Primärstrahlstroms [72] und anderen InGaN-MQW-Strukturen beobachtet werden. Nach dem Erreichen des Intensitätsmaximums ist ein relativ zum anfänglichen Intensitätsanstieg geringfügiger Abfall der InGaN-Intensität zu verzeichnen. Für Elektronendosen oberhalb von  $7,5 \text{ C/cm}^2$  kann



**Abbildung 2.14:** Normierte CL-Intensität der InGaN-MQW-Emission bei RT als Funktion der Elektronendosis bei fester Beschleunigungsspannung von 80 kV.

somit auf einen Degradationsprozess der MQW-Kathodolumineszenz mit nichtlinearem Intensitätsverlauf geschlossen werden.

In TEM-CL-Strahlschädigungsexperimenten von Boyall *et al.* an InGaN-MQWs wurde lediglich eine deutliche Intensitätsabnahme und *kein* Aktivierungsprozess berichtet [107]. Jedoch wurde bei Boyall *et al.* eine Beschleunigungsspannung von 120 kV und ein vergleichsweise hoher Strahlstrom von 9,5 nA verwendet, bei der nach den Beobachtungen von Bastek [24] eine merklich höhere Strahlschädigung als bei 80 kV vorherrscht.

Gleiche Beobachtungen eines Aktivierungsprozesses mit anschließender Degradation innerhalb der STEM-CL-Mikroskopie wurden von Scheel *et al.* an Cu(In,Ga)Se<sub>2</sub> gemacht [108]. Darin wird der anfängliche Anstieg der Intensität mit einer Erhöhung der Konzentration von strahlenden Rekombinationszentren in Verbindung gesetzt. Es wird angenommen, dass diese Generationsrate proportional zur Stromdichte ist und zusätzlich generierte strahlende Zentren wieder in nichtstrahlende umgewandelt werden. Mit der von Scheel *et al.* vorgeschlagenen Funktion der Schädigungskinetik lässt sich zwar der Aktivierungsbereich und unmittelbar anschließende Intensitätsabfall anpassen. Jedoch weicht für hohe Elektronendosen die Anpassungsfunktion stark von den experimentellen Werten ab.

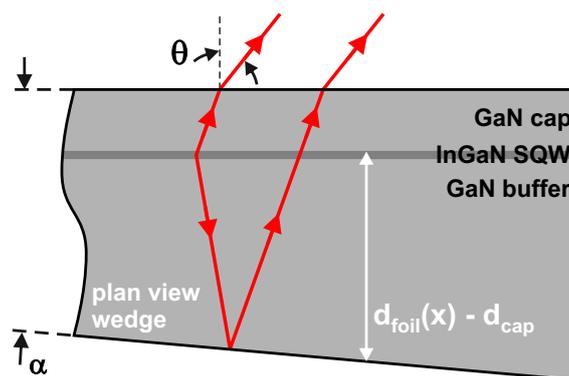
Im Degradationsbereich zeigt das von Ohno *et al.* [109] eingeführte Lumineszenzmodell und dessen Modifikation von Bastek [24] bessere Übereinstimmung. Darin wird angenommen, dass die Konzentration nichtstrahlender Rekombinationszentren mit der Elektronendosis zeitlich ansteigt. Ein konstanter Einfangquerschnitt der Ladungsträger und eine konstante Ladungsträgerdriftgeschwindigkeit bzw. -lebensdauer für die strahlende und nichtstrahlende Rekombination wird vorausgesetzt. Das Modell der Degradation nach Ohno/Bastek ist damit eine mögliche Ursache des Intensitätsabfalls der InGaN-MQW-Lumineszenz für hohe Elektronendosen. Boyall *et al.* postulieren in diesem Zusammenhang analog zur Bildung von Farbzentren in Alkalihalogeniden einen Radiolyseprozess, der für die Elektronenstrahlschädigung verantwortlich sein soll [107].

### 2.3.5 Dünnschichtinterferenzen

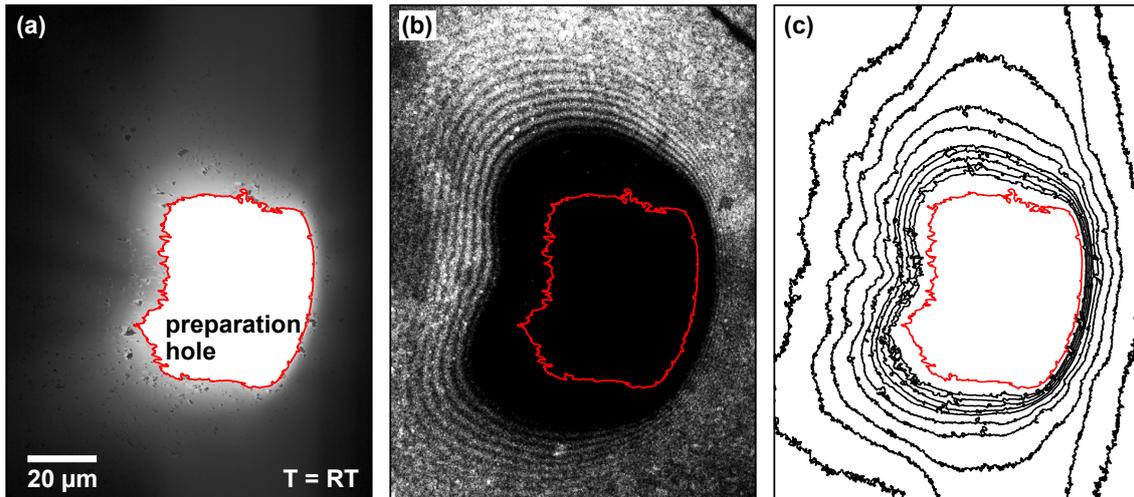
Dünnschichtinterferenz ist ein allgemeines Phänomen, welches bei der kohärenten Überlagerung von an der Grenzfläche Material-Umgebungsmedium reflektierten und/oder transmittierten Lichtstrahlen auftritt. Die präparierten Lamellen müssen zur Realisierung der Elektronentransparenz in der Transmissionselektronenmikroskopie notwendigerweise Dicken weit unterhalb von 500 nm aufweisen. Damit existiert die Möglichkeit der Ausbildung von Interferenzerscheinungen in TEM-Filmen. Derartige Dünnschichtinterferenzphänomene wurden bisher in einigen STEM-CL-Experimenten beobachtet [110, 111, 112, 113].

Im Folgenden sollen Dünnschichtinterferenzen an einer in Draufsicht präparierten TEM-Folie aufgezeigt und diskutiert werden. Die verwendete Probe beinhaltet einen InGaN-SQW mit GaN-Barrieren. Der schematische Aufbau der präparierten Probe ist in Abb. 2.15 zu sehen. Weitere Informationen zur Pufferstruktur und Wachstum der Probe kann in Abschnitt 3.1.2 nachgelesen werden.

In Abbildung 2.16 ist die STEM-CL-Übersichtsaufnahme bei Raumtemperatur zu sehen. Das STEM (HAADF)-Bild in Abb. 2.16 (a) zeigt die konzentrisch zum Präparationsloch (rot markiert) dicker werdende Probe. Hohe/geringe HAADF-Intensitäten im STEM-Bild entsprechen großen/geringen Schichtdicken, da mit zunehmender Schichtdicke weniger Primärelektronen die Probe transmittieren. Damit stellt das HAADF-Signal ein Maß für die Schichtdicke des Präparats dar. Das simultan aufgezeichnete panchromatische Intensitätbild in Abb. 2.16 (b) zeigt konzentrisch zum Präparationsloch angeordnete Interferenzstreifen mit deutlichen Intensitätsminima/-maxima für die ersten Interferenzringe. In Abb. 2.16 (c) sind einzelne Isolinien des HAADF-Signals dargestellt, die mit Linien gleicher Schichtdicke assoziiert werden können. Beim Vergleich des HAADF-Bildes bzw. der HAADF-Isolinienkarte mit dem panchromatischen CLI zeigt sich, dass die Interferenzstreifen



**Abbildung 2.15:** Schematische Darstellung der keilpräparierten Probe mit InGaN-SQW und Keilwinkel  $\alpha$  und eingezeichnetem Strahlengang der vom InGaN-SQW emittierten Strahlen (rote Linien) bei einem Austrittswinkel  $\theta$ .



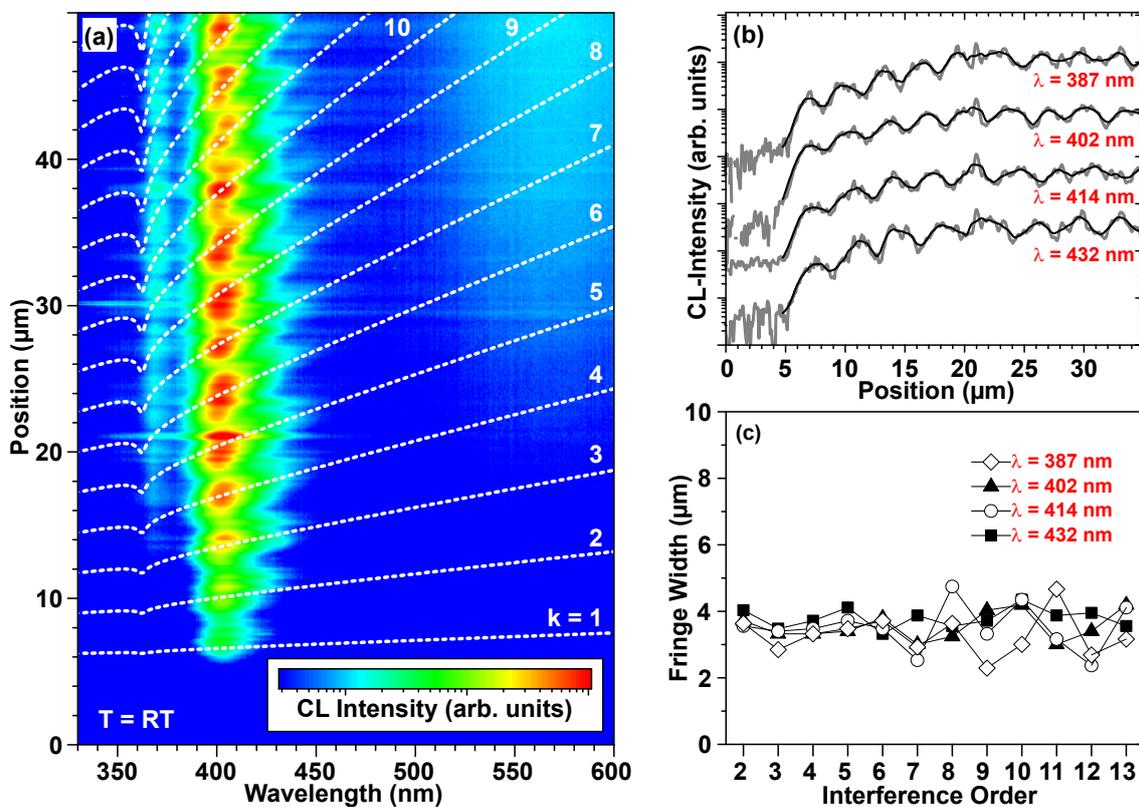
**Abbildung 2.16:** Dünnschichtinterferenzen im Draufsichtpräparierten TEM-Film: (a) STEM (HAADF)-Bild in Übersicht mit Präparationsloch (rot markiert), (b) simultan aufgezeichnetes panchromatisches CL-Intensitätsbild zeigt konzentrisch um das Präparationsloch angeordnete Interferenzstreifen, (c) Isolinien-Karte des HAADF-Kontrastes ( $T = RT$ ).

fen parallel zu den Bereichen gleicher HAADF-Intensität und damit gleicher Schichtdicke verlaufen. Der Kontrast zwischen Intensitätsminima und -maxima nimmt dabei mit zunehmender Interferenzordnung ab. Dies könnte unter anderem auf die begrenzte Kohärenz der emittierten Lumineszenz zurückgeführt werden [111]. Eine endliche Kohärenz hat den Effekt der unterdrückten Interferenzfähigkeit für Strahlen großen Gangunterschieds.

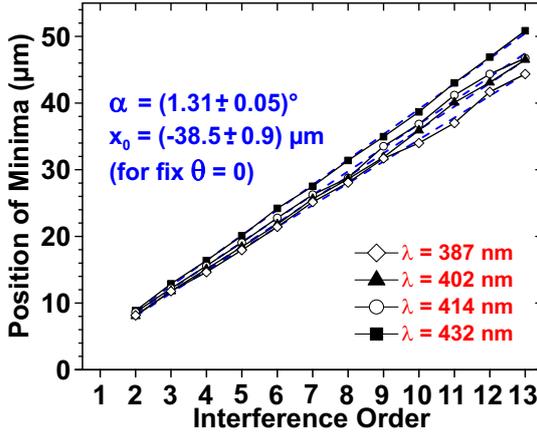
Die spektrale Charakteristik dieses Interferenzphänomens ist in Abhängigkeit der Position mittels Linienscans bei Raumtemperatur analysiert worden. Dabei wurde der Linienscan entlang des Schichtdickengradienten durchgeführt. In Abb. 2.17 (a) ist dieser Linienscan zu sehen, worin die gelbe Defektlumineszenz ( $\lambda = 575 \text{ nm}$ ) und bandkanten nahe Emission vom GaN ( $\lambda = 370 \text{ nm}$ ) als auch die InGaN-SQW-Lumineszenz ( $\lambda = 403 \text{ nm}$ ) auftritt. Erst ab einer Position von  $x = 5 \mu\text{m}$  setzt die InGaN-SQW-CL ein, da für  $x < 5 \mu\text{m}$  die minimale Schichtdicke für CL-Spektroskopie unterschritten ist. Sowohl die bandkanten nahe Emission von GaN als auch die InGaN-SQW-CL zeigen eine deutliche örtliche Modulation der Intensitäten. D.h. es sind bei konstanter Emissionswellenlänge örtlich Intensitätsmaxima und -minima erkennbar. Im Folgenden wird der Fokus auf die InGaN-Emission gelegt, da für die Auswertung der Dünnschichtinterferenzen die GaN-NBE-Intensität zu gering ist. In Abb. 2.17 (b) ist der Intensitätsverlauf für vier verschiedene Wellenlängen aus dem Spektralbereich der InGaN-SQW-CL ( $\lambda = 387 \text{ nm}$ ,  $402 \text{ nm}$ ,  $414 \text{ nm}$ ,  $432 \text{ nm}$ ) dargestellt. Graue Kurven stellen die Messdaten und schwarze Linien deren Glättung dar. Für jeden monochromatischen Intensitätsverlauf in Abb. 2.17 (b) sind oberhalb von  $x = 5 \mu\text{m}$  ausgeprägte

Intensitätsmaxima und -minima zu sehen, die auf die beobachteten Interferenzstreifen im panchromatischen Übersichtsbild 2.16 (b) zurückgeführt werden können. Um das Interferenzphänomen einzuordnen, wurde die Breite der Interferenzstreifen über deren Ordnung in Abb. 2.17 (c) abgetragen. Die Breite der Streifen bleibt über dem betrachteten örtlichen Bereich näherungsweise konstant für die betrachteten InGaN-SQW-Emissionwellenlängen.

Das Phänomen der Dünnschichtinterferenz an einem Keil mit konstantem Schichtdickengradienten zeigt eine örtlich konstante Streifenbreite [37, 114]. Damit kann angenommen werden, dass in diesem hier betrachteten Bereich Interferenz am Keil vorliegt. Dies erscheint vor dem Hintergrund der Keilschliffpräparation als sinnvoll.



**Abbildung 2.17:** Spektrale Charakteristik der Dünnschichtinterferenzen: (a) CL-Linienscan bei RT entlang des Schichtdickengradienten zeigt örtliche Intensitätsmodulation der InGaN-SQW-Emission (weiße gestrichelte Linien: berechnete Photonenmode k-ter Ordnung des Keilpräparats, siehe Abb. 2.18 (b)), (b) monochromatische örtliche Intensitätsverläufe mit ausgeprägten Intensitätsminima und -maxima ( aus CL-Linienscan extrahiert), (c) Breite der in (b) dargestellten Interferenzstreifen.



**Abbildung 2.18:** Position der Interferenzminima als Funktion der Interferenzordnung zeigt lineares Verhalten für bei einem Keilwinkel von  $\theta = 1,3^\circ$  und der Position der Keilspitze bei  $x_0 = -42 \mu\text{m}$  für den Fall senkrechten Strahlenaustritts (graue gestrichelte Linien: lineare Anpassungsfunktionen).

Mit dem Modell der Dünnschichtinterferenzen an einem Keil kann im Fall der InGaN-SQW-Emission (siehe schematische Abb. 2.15) der Gangunterschied für destruktiv interferierende Strahlen angegeben werden:

$$j \lambda = 2(d_{\text{foil}}(x) - d_{\text{cap}}) \sqrt{n^2 - \sin^2 \theta} \quad (2.13)$$

$$\text{mit } d_{\text{foil}}(x) = (x - x_0) \tan \alpha. \quad (2.14)$$

- $j$  – Interferenzordnung
- $d_{\text{foil}}(x)$  – ortsabhängige TEM-Lamellendicke
- $d_{\text{cap}}$  – Dicke der Deckschicht
- $\theta$  – Detektionswinkel
- $x_0$  – Position der Keilspitze
- $\alpha$  – Keilwinkel

In Abb. 2.18 (b) ist die laterale Position der Interferenzminima über der Interferenzordnung abgetragen. Für die jeweiligen Wellenlängen ergibt sich ein linearer Verlauf, der durch die funktionelle Abhängigkeit  $x(j)$  aus Gleichung 2.13 angepasst wurde. Um die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex zu berücksichtigen, wurden die Werte für den Brechungsindex aus [41, 42] herangezogen. Die Schichtdicke der GaN-Deckschicht wurde mit Hilfe von TEM-Untersuchungen zu  $d_{\text{cap}} = 66 \text{ nm}$  ermittelt (siehe Abschnitt 3.1.2).

Zur Berechnung der Interferenzterme im Vielstrahlmodell müssen alle am CL-Spiegel überlagernden Strahlen berücksichtigt werden. Dies impliziert eine Summierung von Strahlen, die in einem Winkelbereich von  $0^\circ$  (senkrechter Austritt) bis zum maximalen vom Einsammelspiegel vorgegebenen Austrittswinkel austreten. Im Vergleich zum einfachen senkrechten Austritt wird im Fall der Winkelintegration lediglich die Amplitude der Intensitätsmodulation verändert; die Periodizität/Abstände der Interferenzstreifen bleibt erhalten [113]. Deshalb wird für die hier angewandte Analyse der einfache senkrechte Austritt  $\theta = 0^\circ$  betrachtet. In diesem Fall ergibt sich ein Keilwinkel von  $\alpha = 1,31^\circ$  mit der Position

## 2 Kathodolumineszenzspektroskopie im STEM

der Keilspitze bei  $x_0 = -38,5 \mu\text{m}$ .

Derartige Dünnschichtinterferenzen in der STEM-CL sind erfahrungsgemäß deutlich in Draufsichtspräparierten Proben zu erkennen. Hingegen sind in Querschnittsuntersuchungen Interferenzphänomene nur schwierig auszumachen. Dies kann einerseits an der Probengeometrie liegen. Andererseits wird bei der Draufsichtspräparation die Probenoberfläche nicht behandelt, sodass hier eine scharfe Grenzfläche zum Vakuum existiert. Im Gegensatz dazu werden bei der Querschnittspräparation beide Oberflächen mechanisch poliert und geätzt.

# Nitridische Mikrokavitäten



# 3 Nitridische Mikrokavitäten mit InGaN-Quantenfilmen als aktives Medium

Aufgrund der außerordentlichen optischen Eigenschaften sind InGaN/GaN-Quantenheterostrukturen die Basis aktiver Schichten in lichtemittierenden Dioden, deren Realisierung mit dem Nobelpreis 2014 honoriert wurde. Im Gegensatz zu diesen bemerkenswerten und außergewöhnlichen technischen Durchbrüchen sind die physikalischen Eigenschaften von InGaN-QWs weiterhin nicht vollständig verstanden und werden in der wissenschaftlichen Gemeinschaft fortwährend diskutiert. Denn trotz der hohen Versetzungsdichte von mehr als  $10^9 \text{ cm}^{-2}$  im GaN-Barrierematerial, besitzen auf Fremdsubstraten gewachsene InGaN/GaN-QWs mit geringer Indiumkonzentration ( $[\text{In}] < 20\%$ ) typischerweise eine hohe interne Quanteneffizienz.

Dieser Vorteil gegenüber anderen Materialien wird unter anderem der Unterdrückung der Ladungsträgerdiffusion hin zu Versetzungen (TD) zugeschrieben. In Kapitel 3.1 wird eine mögliche Ursache dieses Mechanismus im Kontext des Verzerrungsfeldes und der Konzentrationsfluktuationen nahe Versetzungen vorgestellt. Eine Diskussion zu bisher angenommenen Mechanismen schließt sich dem an.

Der hohe Grad an Ladungsträgerlokalisierung, die aus Indium-Kompositionsfluktuationen resultiert, führt zu einer effektiven Rekombination. Dieser Aspekt wird als wesentliche Ursache der hohen internen Quantenausbeute von InGaN/GaN-QWs betrachtet. In Kapitel 3.1 und 3.3 werden hochauflösende STEM-CL-Messungen präsentiert, die auf eine starke Ladungsträgerlokalisierung schließen lassen. Diese ist mit quantenpunktartigen Emissionslinien verbunden.

Im Vergleich zu binären QWs führen diese Fluktuationen allerdings zu einer großen inhomogenen Linienverbreiterung, wodurch die spektrale Resonanz zur Kavitätsmode nur für einen Anteil der emittierten Strahlung erfüllt ist. Die Konsequenz sind höhere Schwellwerte bei VCSEL oder das Verbleiben im schwachen Kopplungsregime. Um derartigen Effekt zu umgehen, würde eine Erhöhung der QW-Anzahl in diesen Strukturen *a priori* zu einer Erhöhung des Einschränkungsfaktors für VCSEL bzw. der Exziton-Photon-Kopplungsstärke führen. In Kapitel 3.2 wird die maximale Anzahl an möglichen QWs in einer GaN-Mikrokavität aufgrund von Relaxationsmechanismen vorgestellt.

### *3 Nitridische MCs mit InGaN-QWs als aktives Medium*

In Kapitel 3.4 wird eine hybride Mikrokavität, die unter optischem Pumpen Lasingverhalten zeigt, vorgestellt. Die Konsequenzen der exzitonischen Unordnung in InGaN/GaN-QWs werden zusammen mit der photonischen Unordnung für diese VCSEL-Struktur mit Hilfe orts aufgelöster Photolumineszenzmessungen (PL) analysiert und diskutiert.

Einige der in diesem Kapitel dargestellten Ergebnisse sind bereits in folgenden Veröffentlichungen erschienen [115, 116].

## 3.1 Einfluss von Versetzungen auf die optischen Eigenschaften eines InGaN-Einzelquantenfilms

Verglichen zu ihrem Gruppe III-Arsenid-Pendant, beinhalten heteroepitaktisch gewachsene Quantenfilmschichten auf III-Nitrid-Basis eine relativ hohe Anzahl an vollständigen Versetzungen. Aus diesem Grund wird angenommen, dass die Effizienz lichtemittierender III-Nitrid-Bauelemente durch nichtstrahlende Rekombinationsprozesse an Versetzungen drastisch reduziert ist. Gleichwohl demonstrierte S. Nakamura *et al.* [117] trotz der hohen Versetzungsdichte die Realisierung höchsteffizienter LEDs und LDs auf Basis von InGaN/GaN-Quantenfilmen, welche zum heutigen Zeitpunkt vollständig kommerzialisiert sind. Im Gegensatz zu diesen bemerkenswerten und außergewöhnlichen technischen Durchbrüchen sind die physikalischen Eigenschaften der essentiellen Komponente - das aktive Medium - weiterhin nicht vollständig verstanden und werden in der wissenschaftlichen Gemeinschaft fortwährend diskutiert.

Im Folgenden sollen die Auswirkungen von Versetzungen auf InGaN/GaN-Quantenfilme diskutiert werden. Dazu wird zunächst eine Theorie zu lokalen elektrischen Eigenschaften von GaN in Versetzungsnähe präsentiert, um dann auf die lokalen Eigenschaften einer InGaN/GaN-Heterostruktur in der Nähe von einzelnen Versetzungen schließen zu können.

### 3.1.1 Theoretische Aspekte zu Versetzungen im GaN

Allgemein sind Versetzungen lineare Kristallgitterdefekte, die die atomare Anordnung als auch die interatomaren Abstände verändern. In unmittelbarer Nähe zum Versetzungskern können dadurch stark veränderte Bindungslängen [118], nicht abgesättigte Bindungen [119, 120] oder atomare Defekte, wie interstitielle Punktdefekte, Vakanzen [121] oder Störstellen [122] auftreten, was zu einer Veränderung der elektrischen Eigenschaften in Versetzungsnähe führen kann.

Darüber hinaus erzeugt eine Versetzung ein weitreichendes Verzerrungsfeld. Je nach Verzerrungsart kann die Modifizierung der atomaren Abstände zu einer energetischen Verschiebung der Leitungs- und Valenzbänder und somit zur Bandlückenveränderung führen. Zur Bestimmung des Verzerrungsfeldes einer TD kann die Kontinuumselastizitätstheorie für Abstände größer als 1 nm zum Kern herangezogen werden [123]. Daraus resultiert für die Komponenten des Verzerrungstensors im Fall einer Stufenversetzung mit Burgersvektor  $\vec{b} = 1/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$  im unendlich ausgedehnten Kristall und kartesischen Koordinaten [124, 125, 126]:

$$\epsilon_{xx} = \frac{b}{4\pi} y \frac{(3C_{11} + C_{12})x^2 + (C_{11} - C_{12})y^2}{C_{11}(x^2 + y^2)^2}, \quad (3.1)$$

$$\epsilon_{yy} = \frac{b}{4\pi} y \frac{-(C_{11} + 3C_{12})x^2 + (C_{11} - C_{12})y^2}{C_{11}(x^2 + y^2)^2}, \quad (3.2)$$

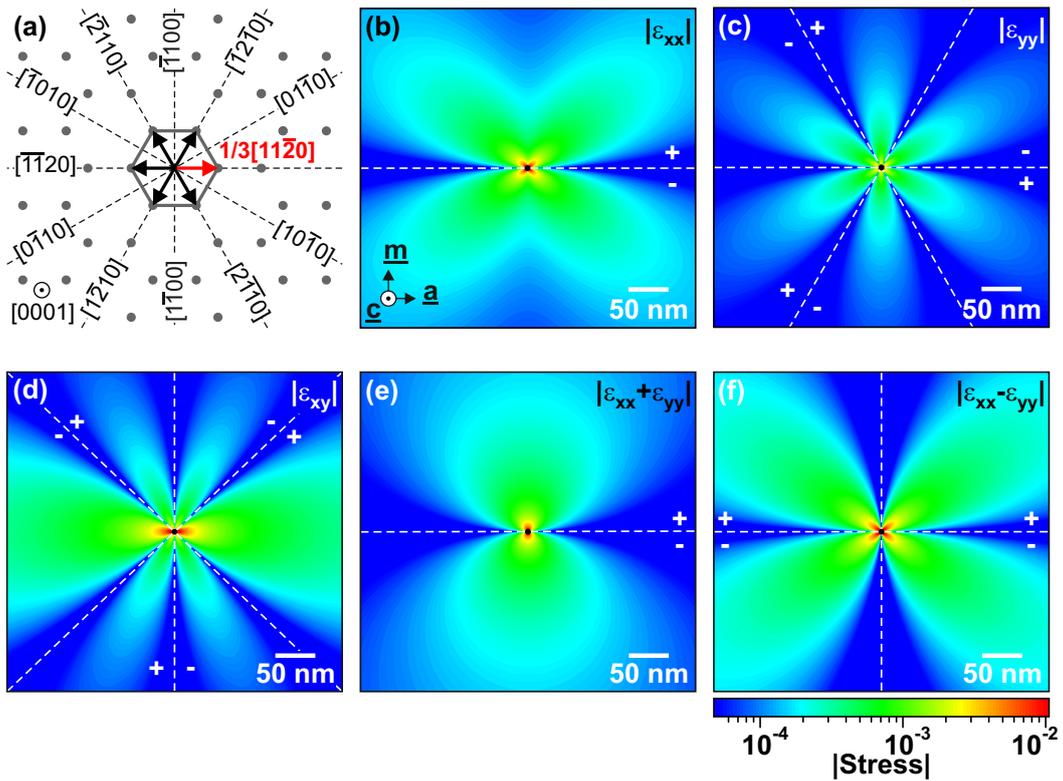
$$\epsilon_{xy} = \frac{b}{2\pi} \frac{C_{11} + C_{12}}{C_{11}} x \frac{x^2 - y^2}{(x^2 + y^2)^2}, \quad (3.3)$$

$$\epsilon_{zz} = \epsilon_{xz} = \epsilon_{yz} = 0. \quad (3.4)$$

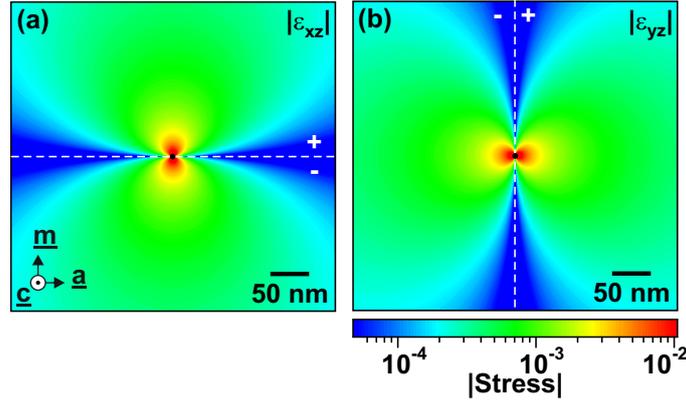
$b$  – Länge des Burgersvektors

$C_{ij}$  – Komponenten des Elastizitätstensors

Aufgrund der sechszähligen Symmetrie der Wurtzitstruktur existieren sechs äquivalente stufenartige Versetzungen. Im kartesischen Koordinatensystem ist  $x$  parallel zum Burgersvektor ( $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -Richtung) und  $y$  senkrecht dazu ( $\langle \bar{1}100 \rangle$ -Richtung) zu wählen [125, 126]. In Abbildung 3.1 (a) sind die sechs Burgersvektoren einer Stufenversetzung schematisch in



**Abbildung 3.1:** Theoretische 2D-Ortsverteilungen um Stufenversetzung in GaN: (a) Burgersvektoren (schwarze/roter Pfeil) der sechs äquivalenten Stufenversetzungen, (b-f) Verzerrungskomponenten; schwarzer Punkt - Versetzungskern, Dreibein in (b) gilt für (b-f), weiße gestrichelte Linie - Nullniveaulinie, Plus-/Minuszeichen - Vorzeichen.



**Abbildung 3.2:** Berechnungen der Ortsverteilungen um eine Schraubenversetzung: (a, b) Verrungskomponenten (Skala unter (b) gilt für (a, b)); schwarzer Punkt - Position der Versetzung, weiße gestrichelte Linie - Nullniveaulinie, Plus-/Minuszeichen - Vorzeichen.

c-Projektion des Wurtzitkristalls dargestellt. Die zweidimensionale Verteilung des Betrags der Verzerrungen in der c-Ebene ist in den Abb. 3.1 (b-f) dargestellt, wobei die Position der Versetzung durch einen schwarzen Punkt markiert ist. Mittels Plus- bzw. Minuszeichen ist das Vorzeichen der Verzerrung und durch eine weiße Strichlinie die Nullniveaulinie gekennzeichnet. Die kristallographischen Richtungen sind durch das Dreibein (siehe Abb. 3.1 (b)) festgelegt und beziehen sich wie auch die farbkodierte Verzerrungsskala auf die Abb. 3.1 (b-f). Zur Berechnung der Verzerrungen wurden die elastischen Konstanten aus Vurgaftman *et al.* [127] herangezogen und der Betrag des Burgersvektors zu  $3,189 \text{ \AA}$  gewählt.

In Abb. 3.1 (d) ist zu erkennen, dass die Scherverzerrung  $\epsilon_{xy}$  für  $x=0$  als auch  $y=\pm x$  verschwindet. Die anisotrope Verzerrung  $\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}$  (siehe Abb. 3.1 (f)) wird ausschließlich für  $x=0$  oder  $y=0$  Null. Reine biaxiale Verzerrung ( $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$ ) ist damit lediglich in der Ebene gegeben, die senkrecht zum Burgersvektor steht und den Versetzungskern beinhaltet. Weiterhin ist der Betrag der hydrostatischen Verzerrung  $\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}$  in Abb. 3.1 (e) zu sehen.

Für die Verzerrungskomponenten einer Schraubenversetzung im unendlich ausgedehnten Kristall gilt hingegen [124, 125, 126]:

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{zz} = \epsilon_{xy} = 0, \quad (3.5)$$

$$\epsilon_{xz} = -\frac{b}{4\pi} \frac{y}{x^2 + y^2}, \quad (3.6)$$

$$\epsilon_{yz} = \frac{b}{4\pi} \frac{x}{x^2 + y^2}. \quad (3.7)$$

Damit existieren im Fall der Schraubenversetzung ausschließlich Scherverzerrungskomponenten, deren Betrag und Vorzeichen in Abb. 3.2 (a, b) dargestellt ist. Das Dreibein in Abb. 3.2 (a) zeigt die kristallographische Orientierung, die sich ebenfalls auf Abb. 3.2 (b)

bezieht. Die weißen Strichlinien kennzeichnen die Nullniveaulinie und das Plus- bzw. Minuszeichen symbolisiert das Vorzeichen der Verzerrung im jeweiligen Gebiet.

### Änderung der Übergangsenergien um Versetzungen

Wie im vorherigen Abschnitt erläutert wurde, erzeugen sowohl Stufen- als auch Schraubenversetzungen ein Verzerrungsfeld. Das Verzerrungsfeld ist im Allgemeinen charakterisiert durch Scherkomponenten und anisotrope Beiträge  $\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy} \neq 0$ . Damit wird die hexagonale Symmetrie des Wurtzitkristalls gebrochen und die Deformationspotentiale bzgl. Scherung und Anisotropie müssen berücksichtigt werden [128, 129]. Innerhalb der  $6 \times 6$  k-p-Methode kann die verzerrungsbedingte Energieverschiebung des Leitungs-  $\Delta E_C$  und der beiden obersten Valenzbänder  $\Delta E_{1,2}$  am  $\Gamma$ -Punkt für den Fall einer Stufenversetzung wie folgt angegeben werden:

$$\Delta E_C = a_{ct}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) \quad (3.8)$$

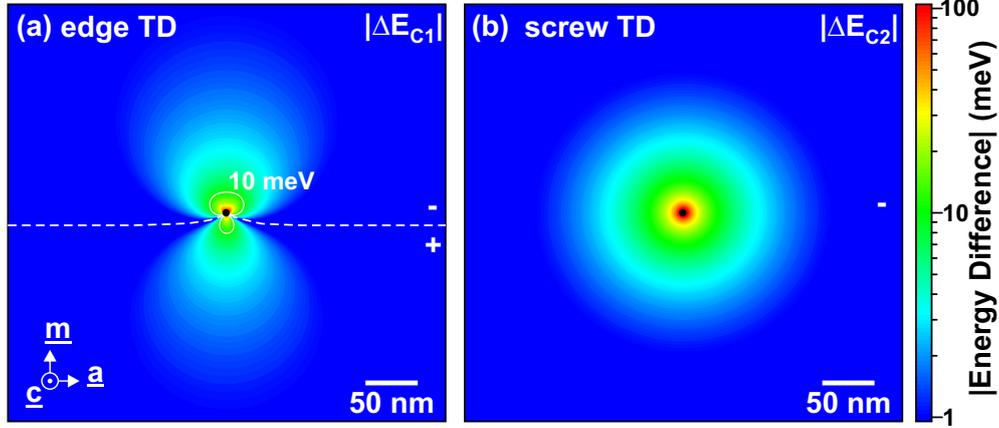
$$\Delta E_{1,2} = (D_2 + D_4)(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) \pm \sqrt{\Delta_2^2 + D_5^2[(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy})^2 + \epsilon_{xy}^2]}. \quad (3.9)$$

- $\Delta E_C$  – energetische Verschiebung der Leitungsbandkante
- $\Delta E_{1,2}$  – energetische Verschiebung der Valenzbandkanten
- $a_{ct}$  – Deformationspotential des Leistungsbandes
- $D_{2,4,5}$  – Deformationspotentiale der Valenzbänder
- $\Delta_2$  – Spin-Bahn-Aufspaltung

Diese analytischen Ausdrücke ergeben sich durch Lösung des Energieeigenwertproblems mit dem Hamiltonian des k-p-Störungsansatzes nach Bir und Pikus [128], wobei hierin für eine Stufenversetzung typisch  $\epsilon_{zz}$ ,  $\epsilon_{xz}$  und  $\epsilon_{yz}$  zu Null gewählt wurde. Nur bei verschwindender anisotroper Verzerrung und gleichzeitig verschwindender Scherverzerrung ergibt sich der Ausdruck für einen biaxial verspannten Wurtzitkristall [128, 130]. In Abb. 3.3 (a) ist die Veränderung der Übergangsenergie vom Leitungs- zum obersten Valenzband  $\Delta E_{C1}$  im Verzerrungsfeld einer Schraubenversetzung dargestellt. Der schwarze Punkt in Bildmitte markiert den Versetzungskern und die gestrichelte weiße Linie kennzeichnet die Nullniveaulinie der Energieverschiebung. Unterhalb (oberhalb) der weißen Linie ist eine Erhöhung (Verringerung) der Übergangsenergie verglichen zum unverspannten Fall durch ein Plus- (Minus-)Zeichen symbolisiert. Die weiße Strichlinie zeigt die Niveaulinie bei der die energetische Verschiebung 10 meV beträgt, die bei einem maximalen Abstand von 20 nm zum Versetzungskern vorzufinden ist. Eine höhere Energieverschiebung tritt bei Annäherung zum Versetzungskern ein.

Existiert ausschließlich eine Scherdehnung des Wurtzitkristalls  $\epsilon_{xz}$ ,  $\epsilon_{yz}$  oder  $\epsilon_{xy}$  so verändert sich die energetische Lage des Leistungsbandes nicht. Jedoch kann sich im Allgemeinen

die Lage der Valenzbänder und deren Reihenfolge verändern [129, 128]. Das Verzerrungsfeld der Stufenversetzung verursacht nach Gleichung 3.9 zwar eine Verschiebung der oberen beiden Valenzbänder  $E_{1,2}$ , jedoch bleibt deren Reihenfolge erhalten. Das Valenzband  $E_1$  bleibt als oberstes Valenzband bestehen. Dies ändert sich im Fall der Schraubenversetzung.



**Abbildung 3.3:** Änderung der Übergangsenergie zwischen Leitungs- und obersten Valenzband um (a) Stufen- und (b) Schraubenversetzung; schwarzer Punkt - Versetzungskern, Dreieck in (a) gilt für (a,b), weiße gestrichelte Linie - Nullniveaulinie, Plus-/Minuszeichen - Vorzeichen.

Für die Schraubenversetzung können innerhalb der  $6 \times 6$  k-p-Methode am  $\Gamma$ -Punkt folgende Energien für die Valenzbänder  $E_{1,2,3}$  angegeben werden:

$$E_1 = \Delta_{cr} \quad (3.10)$$

$$E_2 = \frac{\Delta_{cr}}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{\Delta_{cr}^2 + 8D_6^2(\epsilon_{xz}^2 + \epsilon_{yz}^2)}, \quad (3.11)$$

$$E_3 = \frac{\Delta_{cr}}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{\Delta_{cr}^2 + 8D_6^2(\epsilon_{xz}^2 + \epsilon_{yz}^2)}, \quad (3.12)$$

$\Delta_{cr}$  - Kristallfeld-Aufspaltung

wobei  $\Delta_{cr}$  die Kristallfeldaufspaltung ist und bei der Herleitung die Spin-Bahn-Aufspaltung zur Vereinfachung nicht berücksichtigt wurde. Anhand der Gleichungen 3.10, 3.11 und 3.12 ist erkennbar, dass das Valenzband 1 energetisch konstant bleibt, aber die Valenzbänder 2 und 3 im Verzerrungsfeld der Schraubenversetzung verschieben. Zusätzlich nimmt das Valenzband 2 bei nichtverschwindenden Scherverzerrungen die oberste energetische Position ein. In Abb. 3.3 (b) ist die energetische Differenz des Leitungs- zum obersten Valenzband um eine Schraubenversetzung dargestellt. In Richtung der Schraubenversetzung nimmt diese Energiedifferenz ab, was durch das negative Vorzeichen symbolisiert wird.

In Mikrophotolumineszenzexperimenten ( $\mu\text{PL}$ ) konnten Gmeinwieser *et al.* [125, 131] die langweitreichenden Verzerrungsfelder um Versetzungen als auch deren Wechselwirkung im GaN experimentell nachweisen. Die Verzerrungsmuster konnten durch die Energieverschiebungen der bandkantennahen Spektrallinien nachgewiesen werden und zeigen eine dipolartige Ortsverteilung um den Versetzungskern von Stufen- und Mischversetzungen.

### Einfluss des Verzerrungsfeldes auf die piezoelektrischen Eigenschaften

Sind die Diagonalelemente des Verzerrungstensors ungleich null, so ist ein piezoelektrisches Polarisationsfeld in  $c$ -Richtung nach Gleichung 1.3 vorhanden. Für die im unendlich ausgedehnten Kristall vorhandene Stufenversetzung ergibt sich hieraus eine zweidimensionale Verteilung der  $c$ -Komponente des piezoelektrischen Feldes wie in Abb. 3.4 (a). Die Scherverzerrung  $\epsilon_{xy}$  hat dabei keinen Einfluss auf die piezoelektrische Polarisation. Es zeigt sich eine Feldverteilung [126]

$$\vec{P}_{pz} \propto 1/r \sin\Theta \vec{e}_z \quad (3.13)$$

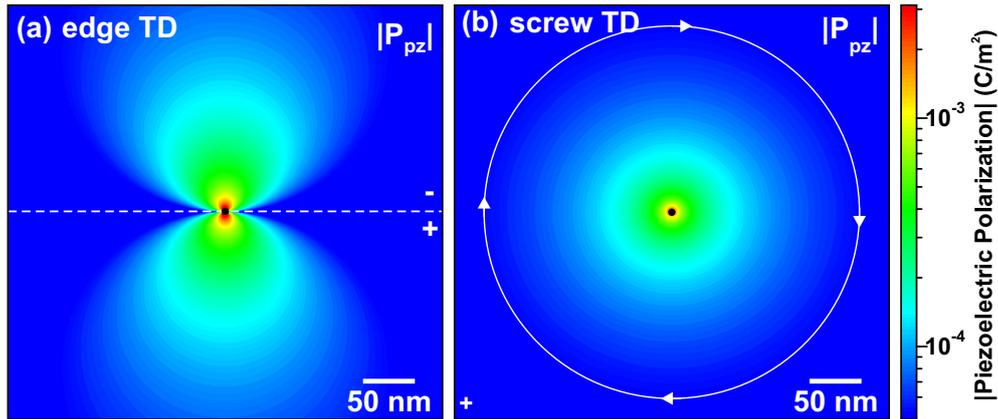
$r, \Theta, z$  – Zylinderkoordinaten  
 $\vec{e}_i$  – Einheitsvektor

mit negativem (positivem) Betrag in  $+m$ -Richtung ( $-m$ -Richtung).

Im Gegensatz zur Stufenversetzung existiert im Fall der Schraubenversetzung für den unverspannten GaN-Kristall keine piezoelektrische Polarisation in  $c$ -Richtung. Jedoch resultiert aus den Scherverzerrungen  $\epsilon_{xz}$  und  $\epsilon_{yz}$  eine nichtverschwindende piezoelektrische Polarisation in der basalen Ebene. In Abb. 3.4 (b) ist die zweidimensionale Verteilung des Betrags der piezoelektrischen Polarisation abgebildet. Die Richtung des piezoelektrischen Polarisationsvektors mit [126]

$$\vec{P}_{pz} \propto 1/r \vec{e}_\Theta \quad (3.14)$$

ist durch die angedeuteten Pfeile dargestellt. Zur Berechnung von  $P_{pz}$  wurden die theoretisch ermittelten piezoelektrischen Konstanten von Bernardini *et al.* [28] herangezogen.



**Abbildung 3.4:** Piezoelektrische Polarisation um (a) Stufen- und (b) Schraubenversetzung; schwarzer Punkt - Versetzungskern, weiße gestrichelte Linie - Nullniveaulinie, Plus-/Minuszeichen - Vorzeichen.

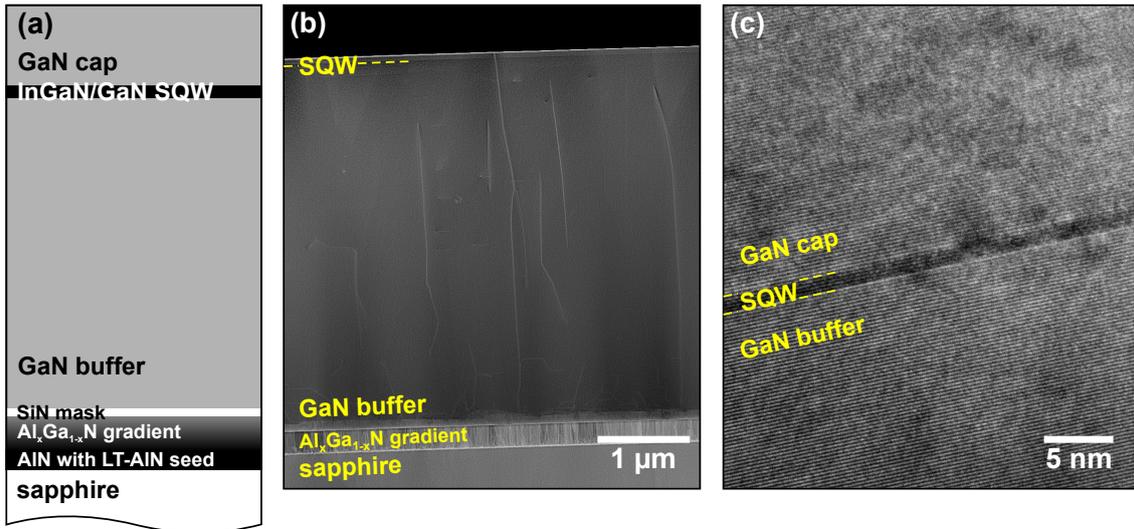
### 3.1.2 InGaN/GaN-Quantenfilmlumineszenz um Versetzungen

Nach der theoretischen Abhandlung zur Veränderung der elektrischen Eigenschaften von GaN um Versetzungen in Abschnitt 3.1.1, sollen nun die experimentellen Befunde zur lokalen Emissionseigenschaft eines InGaN/GaN-SQWs in Versetzungsnähe präsentiert werden.

Zur Untersuchung der mikro-/nanoskopischen Lumineszenzeigenschaften von InGaN/GaN-Quantenfilmen wurde ein einzelner InGaN-Quantenfilm mit GaN-Barrieren untersucht. Diese Probe wurde mittels MOVPE auf c-planarem Saphirsubstrat mit optimierter Pufferschicht hergestellt<sup>1</sup>. Die Pufferschicht beinhaltet eine AlN-Keimschicht mit nachfolgender 200 nm dicken AlN-Schicht und einer Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N-Gradientenschicht, bei der kontinuierlich die Al-Konzentration in Wachstumsrichtung verringert wurde. Zur Herabsetzung der Versetzungsdichte in der nachfolgenden GaN-Pufferschicht wurde eine SiN-Nanomaske epitaktisch auf der Gradientenschicht abgeschieden. Eingebettet in GaN wurde auf dem Puffer ein einzelner InGaN-Quantenfilm mit einem Ammoniak/Gruppe-III-Prekursor-Verhältnis von 3000 bei einer Temperatur von 815 °C für 40 s gewachsen. Um die Interdiffusion von In- und Ga-Atomen in der GaN/InGaN/GaN-Heterostruktur zu verringern, wurde die untere als auch obere GaN-Barriere bei einer geringeren GaN-Wachstumstemperatur von 935 °C für jeweils 4 min gewachsen. Die gesamte Struktur wurde anschließend mit einer GaN-Deckschicht bei 1115 °C bedeckt. Die schematische Zeichnung dieser Probenstruktur ist in Abbildung 3.5 (a) zu sehen.

Das HAADF-Übersichtsbild der querschnittspräparierten Probe ist in Abbildung 3.5 (b) dargestellt und zeigt im unteren Bereich das Saphirsubstrat mit der nachfolgenden Al(Ga)N-

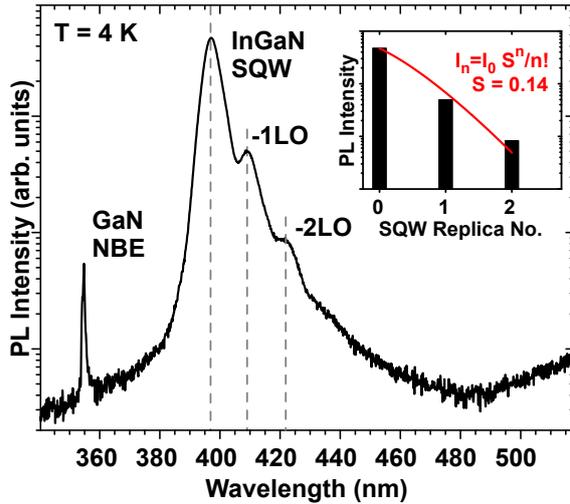
<sup>1</sup>Das MOVPE-Wachstum dieser Probe wurde an der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg in der Arbeitsgruppe um Prof. Armin Dadgar / PD Dr. André Strittmatter von Dipl.-Phys. Christoph Berger durchgeführt.



**Abbildung 3.5:** (a) schematische Darstellung des Gesamtprobenaufbaus der InGaN-SQW-Heterostruktur, (b) HAADF-Bild des Gesamtaufbaus mit (c) HRTEM-Abbildung der InGaN/GaN-Heterostruktur [115].

Keim- und Gradientenschichten. Die an der Saphir-Keimschicht-Grenzfläche generierten Versetzungen sind im HAADF-Kontrast als helle Linien erkennbar und werden an der SiN-Nanomaske effektiv annihilert, was in einer reduzierten Versetzungsdichte in der anschließenden GaN-Pufferschicht resultiert. Auf der GaN-Pufferschicht ist der InGaN/GaN-Einzelquantenfilm erkennbar, der sich an vereinzelten Positionen mit den zur Oberfläche propagierenden TDs kreuzt. Die untere GaN-Barriere zeigt in der HRTEM-Abbildung 3.5 (c) eine deutliche Abgrenzung zum InGaN-SQW. Dagegen erscheint trotz der verringerten Barrierenwachstumstemperatur die Grenzfläche zwischen Quantenfilm und oberer GaN-Barriere diffuser. Hierfür kann als mögliche Ursache eine Desorption von In-Atomen von der freiliegenden InGaN-Oberfläche während des einsetzenden GaN-Barrierewachstums genannt werden. Die Interdiffusion von In-Atomen in die darüberliegende GaN-Schicht kann ebenfalls nicht ausgeschlossen werden. Unter Berücksichtigung dieser Grenzflächenerscheinung kann aus der HRTEM-Abbildung 3.5 (c) eine mittlere Schichtdicke von  $(1,4 \pm 0,1)$  nm für die InGaN-Schicht im versetzungsfreien Bereich angegeben werden.

Die Abbildung 3.6 zeigt das ortsintegrale PL-Spektrum unter HeCd-Laseranregung der Probenoberfläche bei 4 K. Darin erscheint neben der bandkantennahen PL von GaN die intensivste Lumineszenz bei 396 nm (3,130 eV), die der Emission des InGaN-SQW zugeordnet werden kann. Auf der niederenergetischen Flanke der Hauptemission sind Repliken dieses Rekombinationskanals aufgrund von Phononenwechselwirkung zu sehen, die einen energetischen Abstand von 91 meV aufweisen. Damit stimmt der spektrale Replikenabstand mit der Energie der longitudinal optischen (LO) Phononen im GaN  $E_{A1(LO)} = 91,3$  meV



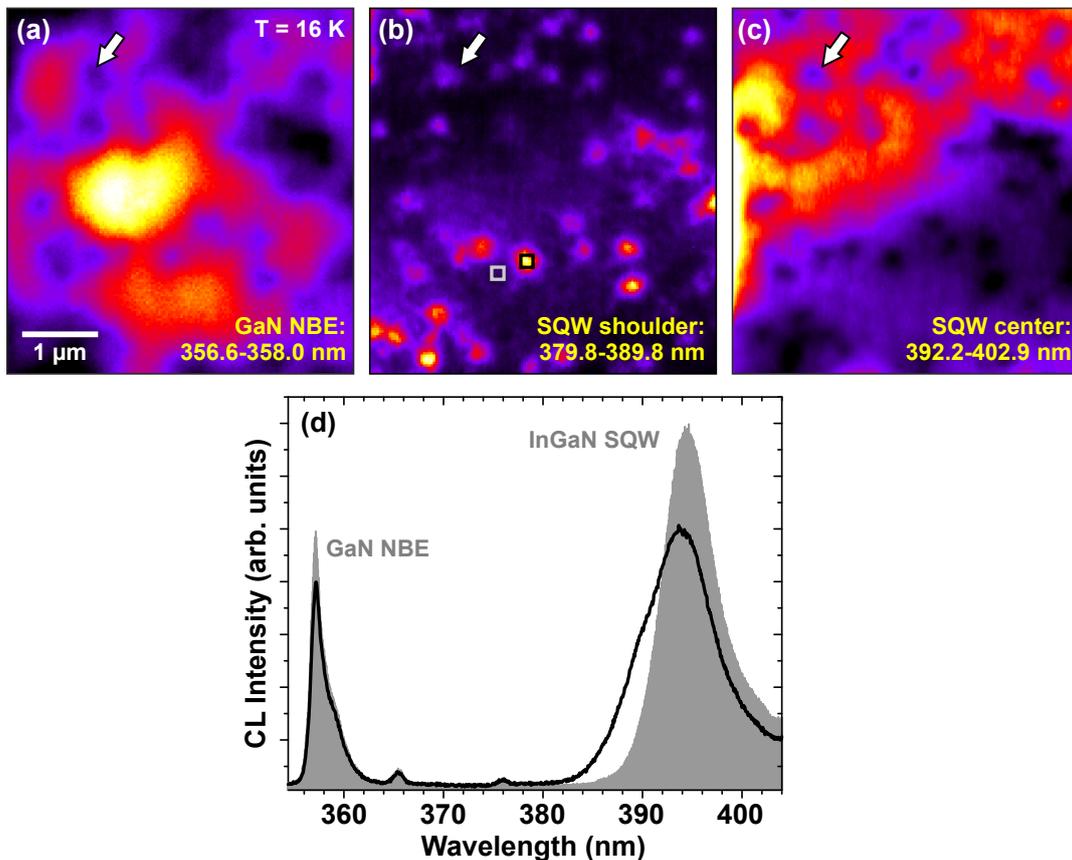
**Abbildung 3.6:** Ortsintegriertes PL-Spektrum bei HeCd-Laseranregung der Probenoberfläche zeigt die InGaN-SQW-Lumineszenz mit LO-Phononenrepliken bei 4 K; eingebettete Grafik: Intensitäten der LO-Phononenrepliken als Funktion ihrer Ordnung mit Anpassungsfunktion  $I_n = I_0 S^n / n!$  (rot) und Huang-Rhys-Faktor  $S = 0,14$ .

bzw.  $E_{E1(LO)} = 92,2 \text{ meV}$  annähernd überein [132]. Das ausgeprägte Auftreten der LO-Repliklinien ist ein Anzeichen für eine starke Ladungsträger-Phononen-Wechselwirkung. Das Intensitätsverhältnis zwischen Hauptemission und Replik ist von der Elektron-Phonon-Kopplungsstärke abhängig, die durch den Huang-Rhys-Faktor  $S$  beschrieben wird. Bei geringen Temperaturen steht die Lumineszenzintensität der  $n$ -ten Phononenreplik  $I_n$  mit der Hauptemissionslinie  $I_0$  durch  $I_n = I_0 S^n / n!$  in Beziehung [133]. In der eingefügten Grafik in Abbildung 3.6 ist die PL-Intensität über der LO-Replikordnung abgetragen. Der durch Anpassungsfunktion ermittelte Huang-Rhys-Faktor beträgt hierbei 0,14. Die Phononenrepliken sind ebenfalls in CL-Experimenten zu beobachten. Im Folgenden wird der Fokus auf die Hauptemission des InGaN-SQWs und dessen örtliche Lumineszenzverteilung gelegt.

Nach den Betrachtungen der makroskopischen optischen Eigenschaften der InGaN/GaN-QW-Heterostruktur soll nun die Lumineszenzverteilung mittels hochortsaufgelöster STEM-CL-Experimente in Aufsicht bei  $T = 16 \text{ K}$  diskutiert werden. Das TEM-Präparat ist in dieser Messung derart orientiert, dass direkt die  $c$ -planare Oberfläche im (S)TEM betrachtet wird. Damit wird bei der Positionierung des Primärelektronenstrahls sowohl der InGaN-SQW als auch das GaN-Barrierematerial angeregt. Die Abbildung 3.7 zeigt monochromatische CL-Intensitätsbilder der STEM-CL-Aufsichtsmessung an exakt gleicher Position. Die bandkanten nahe GaN-Emission zwischen  $356,6 \text{ nm}$  und  $358,0 \text{ nm}$  zeigt eine inhomogene Lumineszenzverteilung mit lokal deutlich verringerter Intensität (siehe Abb. 3.7 (a)). Intensitätseinbrüche der GaN-NBE lässt auf nichtstrahlende Rekombinationsprozesse im Barrierematerial schließen. Im Fall der SQW-Hauptemission (siehe Abb. 3.7 (c)) ist gleichermaßen zur GaN-NBE-Emission eine inhomogene Intensitätsverteilung mit lokal verringerter Intensität zu beobachten. Wie in Abb. 3.7 (a) offenbart das CLI in Abb. 3.7 (c) an den gleichen Positionen eine Intensitätsreduktion. Im Gegensatz dazu ist im monochromatischen Intensitätsbild der hochenergetischen SQW-Flanke (siehe Abb. 3.7 (b)) in exakt diesen Bereichen eine deutliche Intensitätserhöhung erkennbar. Exemplarisch sei

für die Korrelation auf die in Abbildung 3.7 (a-c) eingezeichneten Pfeile verwiesen. Wie später noch gezeigt wird, können diese charakteristischen Bereiche dem Wirkungsgebiet von vollständigen Versetzungen zugeordnet werden.

Das schwarze Spektrum in Abb. 3.7 (d) ist repräsentativ für die Emissionseigenschaften aus Bereichen hoher SQW-Flankenintensität (siehe schwarzes Quadrat in Abb. 3.7 (b)). Im Vergleich zum grauen Spektrum zeigt es eine ausgeprägte hochenergetische Schulter der InGaN-Emission bei gleichzeitiger Verringerung der GaN-NBE- und SQW-Peakintensitäten. Das graue Spektrum stammt dabei aus dem graumarkierten Bereich in Abb. 3.7 (b).



**Abbildung 3.7:** Monochromatische CL-Intensitätsbilder aus STEM-CL-Draufsichtmessung (16 K) an den spektralen Positionen der (a) GaN-NBE, (b, c) hochenergetischen Flanke bzw. Hauptmaximum der InGaN-SQW-Emission und (d) lokale Spektren, die in (b) markiert sind; (schwarzes Quadrat - schwarze Linie, graues Quadrat - graues Säulendiagramm).

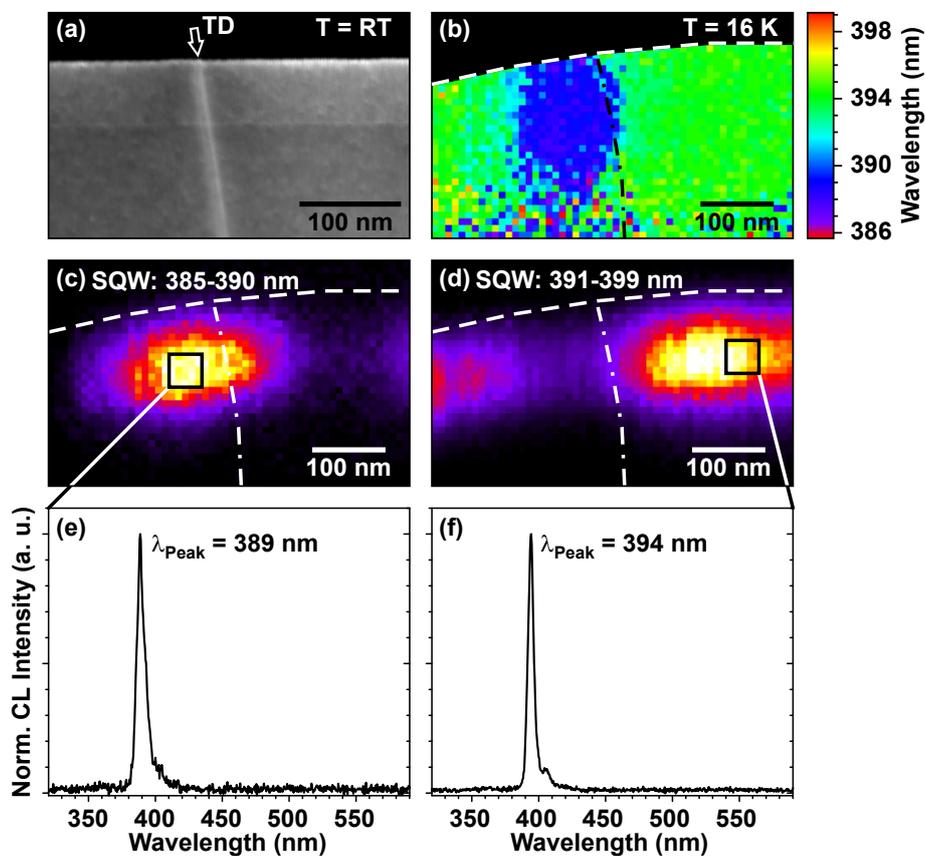
### 3.1.3 InGaN-Quantenfilmeigenschaften nahe einzelner Versetzungen

Zur Untersuchung der strukturellen Ursache der hochenergetischen InGaN-Quantenfilmemission wurden Querschnitt-STEM-CL-Experimente bei 16 K durchgeführt. Der Vorteil von querschnittspräparierten TEM-Lamellen liegt zum einen in der weniger aufwendigen Präparation. Zum anderen können Analysen an vergrabenen Strukturen bei sehr geringer Primärelektronenstrahlaufweitung durchgeführt werden. Damit sind höchstauflösende STEM-CL-Untersuchungen an bedeckten Heterostrukturen möglich. In TEM-Aufsichtsmessungen müssen hingegen die Deckschichten oberhalb der zu analysierenden Schicht erst durchdrungen werden. Im Folgenden werden die mittels STEM-CL-Querschnittsanalysen erarbeiteten Quantenfilmeigenschaften in unmittelbarer Nähe zu einzelnen Versetzungen präsentiert.

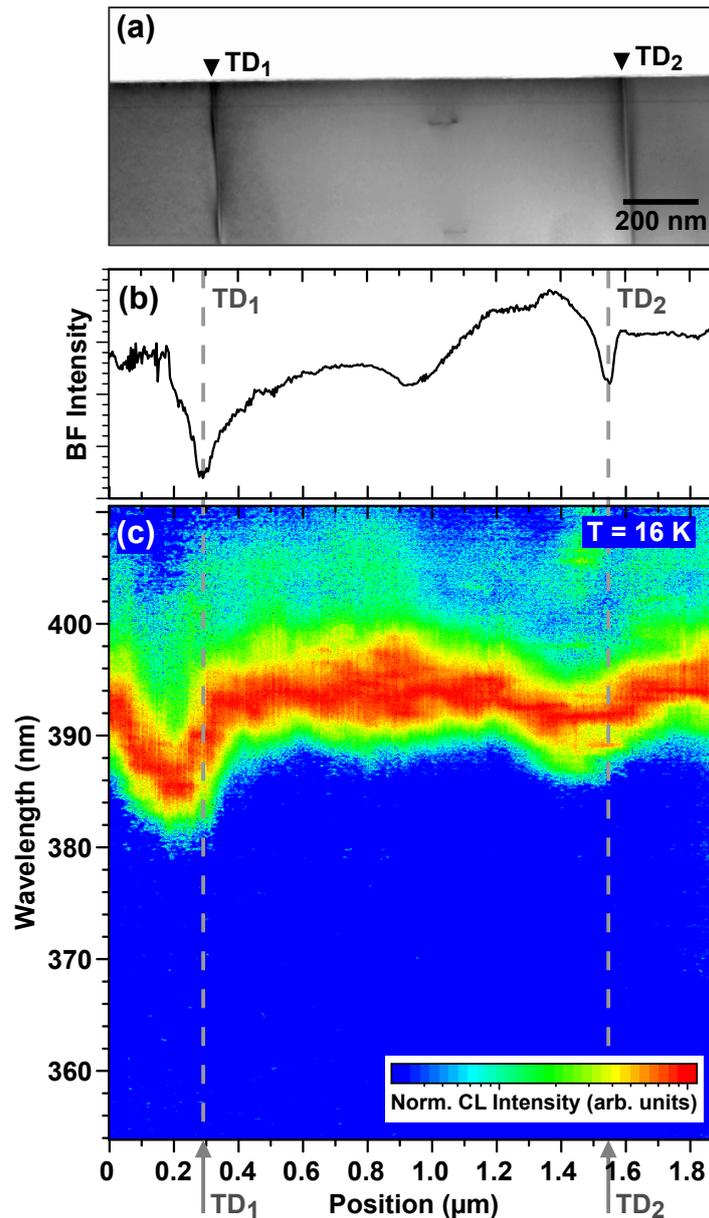
In Abbildung 3.8 ist ein STEM-CL-Mapping der querschnittspräparierten Probe dargestellt. Das HAADF-Bild 3.8 (a) zeigt die InGaN/GaN-Quantenfilmheterostruktur, die von einer Versetzung (mit Pfeil markiert) durchkreuzt wird. Die TD erscheint aufgrund der Störung des Gitterführungseffektes in hellem Graukontrast und propagiert vom GaN-Puffer in Richtung Oberfläche. Neben der Überlagerung des HAADF-Signals der InGaN-Schicht und der Versetzung sind keine weiteren Ausprägungen im HAADF-Kontrast am Kreuzungspunkt und in dessen unmittelbarer Umgebung zu beobachten. Die im HAADF-Bild dargestellte Region wurde bei Tieftemperatur abgerastert und an jeder Pixelposition ein CL-Spektrum akquiriert. Das aus diesem STEM-CL-Mapping resultierende CLWI in Abb. 3.8 (b) zeigt eine Peakwellenlänge der SQW-Hauptemission bei 394 nm außerhalb des Wirkungsbereichs der Versetzung. Eine ausgeprägte LO-Phononenreplik auf der niederenergetischen Seite ist im lokalen Spektrum (siehe Abb. 3.8 (f)) erkennbar. Unmittelbar an die Versetzung (als Strich-Punkt-Linie markiert) angrenzend tritt hingegen eine blauverschobene Emission des InGaN-SQW mit  $\lambda_{Peak} < 390$  nm auf. Das aus dieser Region extrahierte lokale Spektrum in Abbildung 3.8 (e) weist eine Peakwellenlänge von 389 nm (3,186 eV) auf. Auf der niederenergetischen Flanke dieses Spektrums ist keine Replik der SQW-Emission zu sehen, was auf eine geringere Exzitonen-Phononen-Wechselwirkung nahe der Versetzung hindeutet. Die Region der hochenergetischen SQW-CL erstreckt sich über mehr als 100 nm lateralem Abstand zur Versetzung (siehe Abb. 3.8 (c)).

Die detaillierte Analyse der Entwicklung der exzitonenischen SQW-Lumineszenz über zwei einzelne Versetzungen  $TD_1$  und  $TD_2$  ist in Abbildung 3.9 dargestellt. Die InGaN-SQW-Schicht wurde hierzu direkt angeregt und parallel dazu abgerastert. Im BF-Mikrograph 3.9 (a) sind  $TD_1$  und  $TD_2$  durch Dreiecke gekennzeichnet. Das STEM-Signal in Abb. 3.9 (b) zeigt eine deutliche Verringerung der BF-Intensität in unmittelbarer Nähe der Versetzung. Die Veränderung des Kontrastes ist in diesem Modus vorrangig auf Spannungskontraste zurückzuführen. Man kann bei beiden TDs linksseitig eine höhere BF-Intensität als rechtsseitig davon ausmachen. Dieser asymmetrische Kontrast-Verlauf könnte auf Verspan-

nungsasymmetrien in lateraler Richtung hindeuten. Die Abbildung 3.9(c) zeigt den CL-Linienscan. Startend bei der Position  $x = 0 \mu\text{m}$  verschiebt die SQW-Emission in Richtung  $\text{TD}_1$  kontinuierlich zu geringeren Wellenlängen (siehe Abb. 3.9(c)). Dem schließt sich eine Rotverschiebung des Versetzungskerns an. Rechtsseitig von  $\text{TD}_1$  setzt wiederum die Emission des ungestörten SQWs bei 394 nm ein. Das gleiche Verhalten der Blau-Rot-Verschiebung linksseitig der Versetzung zeigt auch  $\text{TD}_2$  und ist bei allen analysierten Versetzungen der Fall.



**Abbildung 3.8:** Querschnitt-STEM-CL-Mapping des InGaN-SQW mit durch den Quantenfilm durchlaufende Versetzung: (a) HAADF-Abbildung des SQW mit Versetzung (Pfeil), (b) CL-Peakwellenlängenbild, monochromatische CL-Intensitätsbilder aus dem Spektralbereich der (c) hochenergetischen Flanke und (d) Hauptemission der SQW Emission (Versetzung als Strich-Punkt-Linie bzw. Probe/Vakuum-Grenzfläche als Strichlinie in (b-d) markiert) und (e, f) lokale Spektren [115].



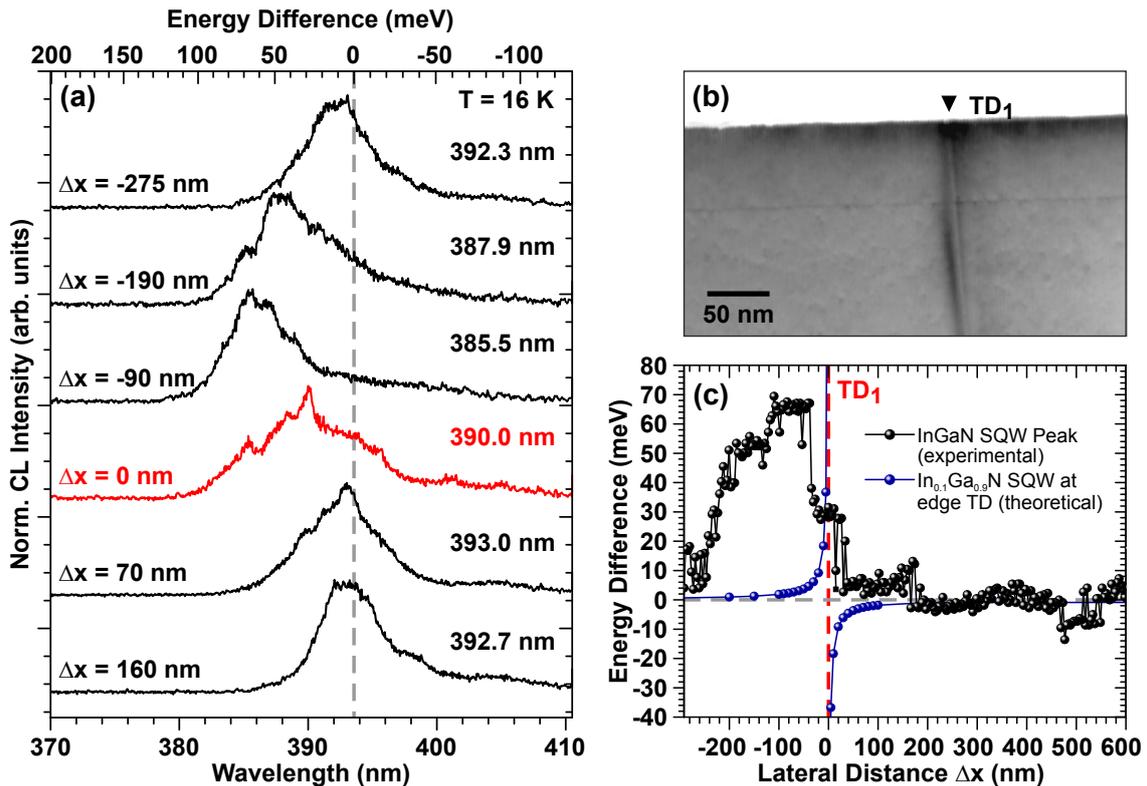
**Abbildung 3.9:** Linienscan entlang des Einzelquantenfilms in lateraler Richtung über Versetzungen  $TD_{1,2}$ : (a) BF-Abbildung des abgerasterten Bereichs, (b) BF-Intensitätsprofil mit (c) simultan aufgezeichnetem CL-Linienscan zeigt starke Blauverschiebung in der Nähe der Versetzungen  $TD_{1,2}$ .

Zur Quantifizierung der SQW-Peakverschiebung wurden lokale Spektren in der Nähe der Versetzung  $TD_1$  ausgewertet. Die Abbildung 3.10(a) stellt die lokale Emissionscharakteristik bei verschiedenen Abständen  $\Delta x$  zu  $TD_1$  in einem Wasserfalldiagramm dar. Positive Abstände entsprechen Orten rechtsseitig der Versetzung. Für jede Position ist in Abbildung 3.10(c) die Energiedifferenz zur SQW-Emission im versetzungsfreien Be-

reich bei  $\lambda_{Peak} = 393,6 \text{ nm}$  ( $3,149 \text{ eV}$ ) abgetragen. In diesen beiden Abbildungen 3.10 (a, c) entsprechen graue Strichlinien der ungestörten SQW-Peakemission und rote Markierungen der Position der Versetzung. Das lokale Spektrum bei  $\Delta x = -275 \text{ nm}$  in Abb. 3.10 (a) besitzt eine Peakwellenlänge von  $392,3 \text{ nm}$  ( $3,160 \text{ eV}$ ). Mit Verringerung des Abstands schiebt die SQW-CL zu geringeren Peakwellenlängen bis  $385,5 \text{ nm}$  ( $3,215 \text{ eV}$ ) bei  $\Delta x = -90 \text{ nm}$  (siehe Abb. 3.10 (c)). Dies entspricht einer Blauverschiebung von  $66 \text{ meV}$ . Verfolgt man die Entwicklung der CL weiter, erkennt man ein Einsetzen einer Rotverschiebung kurz vor dem Kreuzungspunkt SQW/TD<sub>1</sub> bei  $\Delta x = -38 \text{ nm}$ . Direkt am Versetzungskern beträgt die CL-Peakwellenlänge  $393,0 \text{ nm}$  ( $3,154 \text{ eV}$ ), was einer energetischen Verschiebung von  $\Delta E = 32 \text{ meV}$  entspricht. Die Rotverschiebung setzt sich rechtsseitig von TD<sub>1</sub> bis  $\Delta x = 30 \text{ nm}$  fort. Für  $\Delta x > 30 \text{ nm}$  betragen die Abweichung der SQW-Peakenergie zum versetzungsfreien Fall nur wenige meV.

Zur Einschätzung des Einflusses des Verzerrungsfeldes auf die InGaN-SQW-Emission wurden selbstkonsistente Schrödinger-Poisson-Simulationen<sup>2</sup> des versetzungsverspannten

<sup>2</sup>Hierzu wurde auf die kommerziell erhältliche Software *nextnano* zurückgegriffen, wobei die Verzerrungen der InGaN/GaN-Heterostruktur in die Simulationssoftware importiert worden.



**Abbildung 3.10:** (a) lokale Spektren aus dem InGaN-SQW bei unterschiedlich lateralen Abständen  $\Delta x$  zur Versetzung TD<sub>1</sub> (siehe Abb. 3.9), (b) BF-Aufnahme der Versetzung, (c) Differenz der SQW-Peakenergie in Abhängigkeit des lateralen Abstands.

### 3.1 Einfluss von Versetzungen auf InGaN-SQW-Eigenschaften

InGaN-SQWs durchgeführt. Dazu wurde für einen InGaN-Einzelquantenfilm mit einer In-Konzentration von 10% angenommen, dass der SQW pseudomorph auf dem Barrierematerial aufwächst und damit die gleiche Gitterkonstante wie das GaN-Material im Bereich der Versetzung annimmt. Die Verzerrung des pseudomorph verspannten InGaN-Quantenfilms ist über folgende Beziehung mit dem Verzerrungsfeld der Versetzung im GaN verknüpft:

$$\epsilon_{xx}^{InGaN} = \frac{a_0^{GaN}}{a_0^{InGaN}} (\epsilon_{xx}^{GaN} + 1) - 1 \quad (3.15)$$

$$\epsilon_{yy}^{InGaN} = \frac{a_0^{GaN}}{a_0^{InGaN}} (\epsilon_{yy}^{GaN} + 1) - 1. \quad (3.16)$$

Damit lässt sich innerhalb der Kontinuumselastizitätstheorie auf die Verspannung in der InGaN-Quantenfilmschicht schließen. Zum Vergleich zwischen Simulation und Experiment soll lediglich eine reine Stufenversetzung studiert werden, da bei Schraubenversetzungen ausschließlich eine Rotverschiebung in Richtung Versetzung zu erwarten ist (siehe Abschnitt 3.1.1). Zur Vereinfachung wurde aus dem in Abschnitt 3.1.1 dargestellten zweidimensionalen Verzerrungsprofil lediglich eine in m-Richtung und durch den Versetzungskern verlaufende Gerade betrachtet. Diese Reduktion auf eine eindimensionale Betrachtung ist dadurch gerechtfertigt, dass nach Abschnitt 3.1.1 entlang der m-Richtung durch den Versetzungskern die größten energetischen Verschiebungen stattfinden (siehe Abb. 3.1 (g)). Resultierend aus den Schrödinger-Poisson-Simulationen wird in Abb. 3.10 (c) die Änderung der niedrigsten SQW-Übergangsenergie (blaue Strich-Kreis-Linie) als Funktion des Abstands zur Versetzung gezeigt. Für negative  $\Delta x$  ist mit geringerem Abstand zur Versetzung eine Blauverschiebung erkennbar, die für  $\Delta x > -20$  nm die energetische Verschiebung von 10 meV übersteigt. Im Falle positiver  $\Delta x$  ist eine Rotverschiebung in Richtung des Versetzungskerns zu beobachten. Im Bereich des Versetzungskerns strebt die energetische Verschiebung der Übergangsenergie gegen  $+\infty$  für  $\Delta x \rightarrow -0$  bzw.  $-\infty$  für  $\Delta x \rightarrow +0$ . Dies ist auf die Verzerrungssingularität am Stufenversetzungskern innerhalb der elastischen Kontinuumsstheorie zurückzuführen.

Quantitativ stimmt die Simulation des pseudomorph verspannten  $In_{0.1}Ga_{0.9}N/GaN$ -Einzelquantenfilms mit den experimentell ermittelten Daten nicht überein. Verglichen zur Simulation setzt eine signifikante Blauverschiebung für  $\Delta x < 0$  wesentlich weiter entfernt zum Versetzungskern ein und eine Rotverschiebung in Richtung TD wird für positive  $\Delta x$  nicht beobachtet. Eine rein verspannungsinduzierte Blauverschiebung der InGaN-SQW-Emission in der Nähe einer Stufenversetzung lässt sich somit ausschließen. Vielmehr ist anzunehmen, dass sich die In-Konzentration und/oder die SQW-Schichtdicke in Richtung des Versetzungskerns verändern.

## 3.2 Plastische Relaxation eines 62-fachen InGaN-Quantenfilmstapels in einer GaN-Kavität

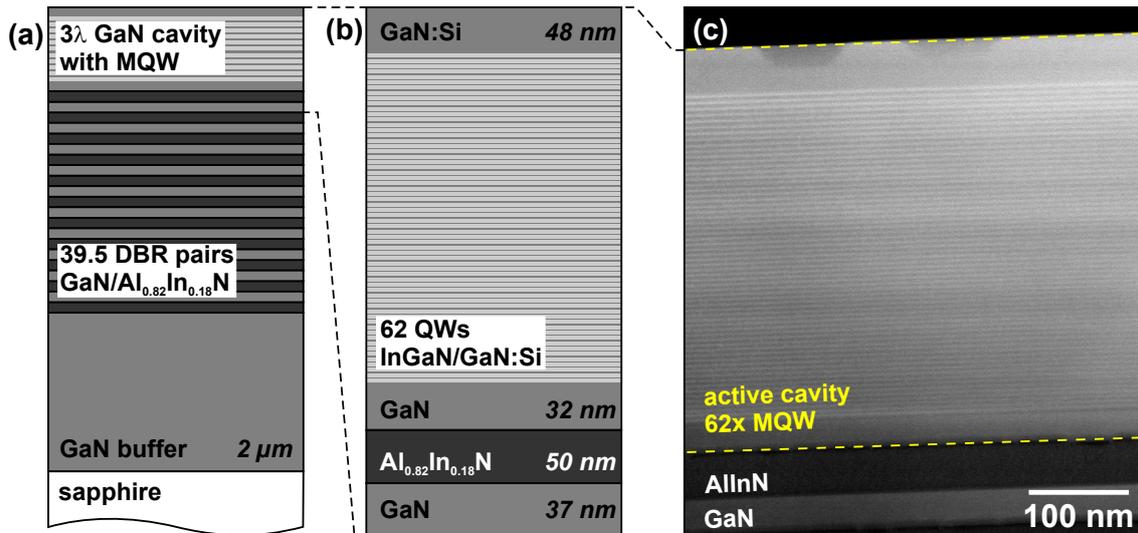
Die Anzahl an optisch aktiven elektrischen Dipolen in einer Mikrokavität ist für die Realisierung von Lasern niedriger Schwellwerte ein äußerst wichtiger Parameter. Im Fall von Mikrokavitäten mit Quantenfilmen als aktives Medium kann dies durch eine Erhöhung der QW-Anzahl umgesetzt werden. Neben der Zunahme der Absorptionswahrscheinlichkeit von Kavitätsphotonen ergibt sich für VCSEL-Strukturen ein erhöhter Einschränkungsfaktor [134], wodurch nach Gl. 1.20 eine Schwellwertverringerung der optischen Verstärkung verbunden ist. Für die Realisierung inversionslos arbeitender Mikrokavitätslaser - Polaritonlaser - ergeben sich ebenfalls Vorteile durch Einbettung einer hohen QW-Anzahl. Hier erhöht sich die Kopplungsstärke zwischen Exziton und Kavitätsphoton mit steigendem aktiven Volumen, wodurch das für diesen Lasertyp notwendige starke Kopplungsregime erreicht werden kann.

Es existiert jedoch eine Vielfalt an Einschränkungen für die Anzahl an eingebetteten QWs in einer Mikrokavität. Die signifikanteste Limitierung ist das wohlbekannte und ungewollte Phänomen der Verspannungsrelaxation des MQW-Stapels. Es resultiert aus der Heteroepitaxie gitterfehlangepasster Materialien und ist nachteilig für die Bauelemententwicklung von VCSEL und Polaritonlaser. Ein Verständnis des Relaxationsmechanismus' und der Bedingungen des Einsetzens der Relaxation ist daher notwendig. Nachfolgend wird die plastische Relaxation eines InGaN/GaN-MQW-Stapels in einer Mikrokavität mittels STEM-CL analysiert und damit die Grenzen des kohärenten Wachstums von InGaN/GaN-Quantenheterostrukturen auf gitterangepassten AlInN/GaN-DBR-Schichten untersucht.

Die hier betrachtete Probe beinhaltet 62 InGaN/GaN-Quantenfilme, die auf einem AlInN/GaN-Bragg-Reflektor in einer GaN  $3\lambda$ -Mikrokavität eingebettet sind<sup>3</sup>. Der gesamte Schichtstapel wurde mittels MOVPE auf einem 2" c-planarem Saphirsubstrat mit optimierter 2  $\mu$ m dicken GaN-Pufferschicht gewachsen. Der hochreflektive DBR mit einer Reflektivität von 99,6 % bei 420 nm besteht aus 39,5 Perioden Al<sub>0,82</sub>In<sub>0,18</sub>N/GaN-Schichten. Die  $3\lambda$ -Kavität setzt sich aus einer GaN-Unterschicht mit nachfolgend gewachsenem 62-fachen In<sub>0,14</sub>Ga<sub>0,86</sub>N-Mehrfachquantenfilm, der von siliziumdotierten GaN-Barrieren begrenzt ist, und mit einer siliziumdotierten GaN-Deckschicht abschließt<sup>4</sup>. Eine schematische Darstellung des Gesamtprobenaufbaus und eine Detailansicht des Kavitätsbereichs ist in Abb. 3.11 (a, b) zu sehen. Die im STEM-Modus akquirierte HAADF-Querschnittsaufnahme zeigt den Kavitätsbereich (siehe Abb. 3.11 (c)). Im unteren Bereich ist das oberste GaN/AlInN-DBR-Paar zu sehen. Die Schichtdicke der AlInN- und GaN-Schichten beträgt 50 nm bzw.

<sup>3</sup>Diese Struktur wurde an der École Polytechnique Fédérale de Lausanne in der Arbeitsgruppe um Prof. Nicolas Grandjean von Dipl.-Phys. Marlene Glauser hergestellt.

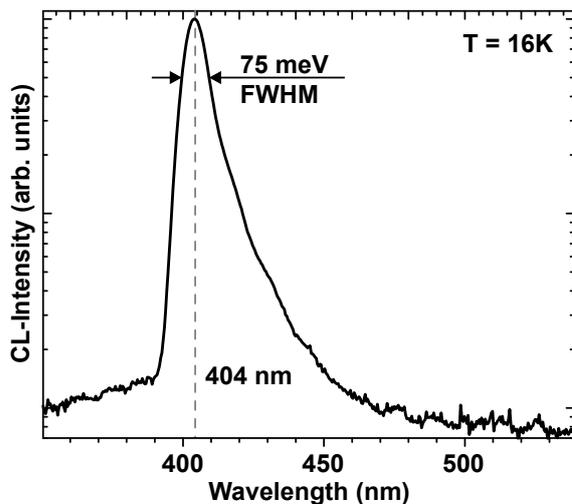
<sup>4</sup>Weiterführende Informationen zum MOVPE-Wachstum sind in den Veröffentlichungen von Glauser *et al.* [135] und Cosendey *et al.* [136] zu finden.



**Abbildung 3.11:** (a) Schematische Darstellung des Gesamtprobenaufbaus und (b) eine Detailansicht des Kavitätsbereichs der  $3\lambda$ -Kavität auf einem AlInN/GaN-DBR mit 62 InGaN/GaN-Quantenfilmen, (c) STEM-Bild in Z-Kontrastmodus (HAADF) des MQW-Stapels; gestrichelte Linie kennzeichnet die Kavität/DBR- bzw. Kavität/Vakuum-Grenzfläche [116].

37 nm. Obenauf ist die gesamte Kavität, deren Schichtdicke 402 nm beträgt, einschließlich der 62 InGaN-QWs zu sehen. Die Schichtdicke der einzelnen Quantenfilme erhöht sich kontinuierlich von unten ( $d_{1^{st} QW} = 2$  nm) um mehr als 1 nm in Wachstumsrichtung ( $d_{62^{nd} QW} = 3,3$  nm). Die GaN-Kavitätsunter- und -deckschicht besitzen eine Schichtdicke von 32 nm bzw. 48 nm.

Bei Tieftemperatur (16 K) wurde der Kavitätsbereich sequentiell abgerastert und an jedem Pixel ein Spektrum der InGaN-QW-Emission aufgezeichnet. Das aus dem Kavitätsbe-



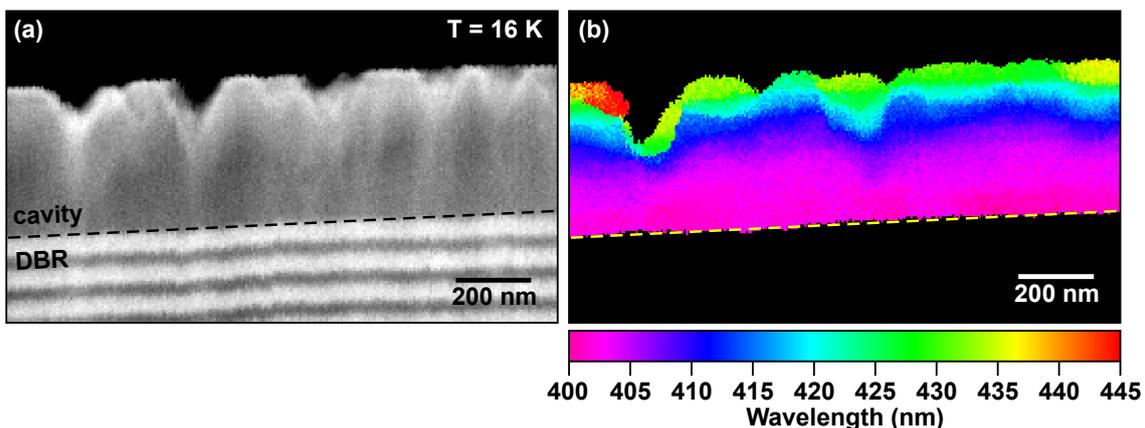
**Abbildung 3.12:** Ortsintegrales CL-Spektrum bei 16 K aus dem in Abb. 3.13 (a) dargestelltem Kavitätsbereich zeigt 75 meV breite InGaN-QW-Lumineszenz [116].

reich stammende ortsintegrale Spektrum (siehe Abb. 3.12) offenbart eine QW-Exzitonenemission bei 404 nm (3,068 eV) mit einer asymmetrischen Linienform und einer Halbwertsbreite von 75 meV. Nach Glauser *et al.* stellt diese ortsintegrale Halbwertsbreite einen Nachteil zum Erreichen der starken Kopplung dar [137, 138].

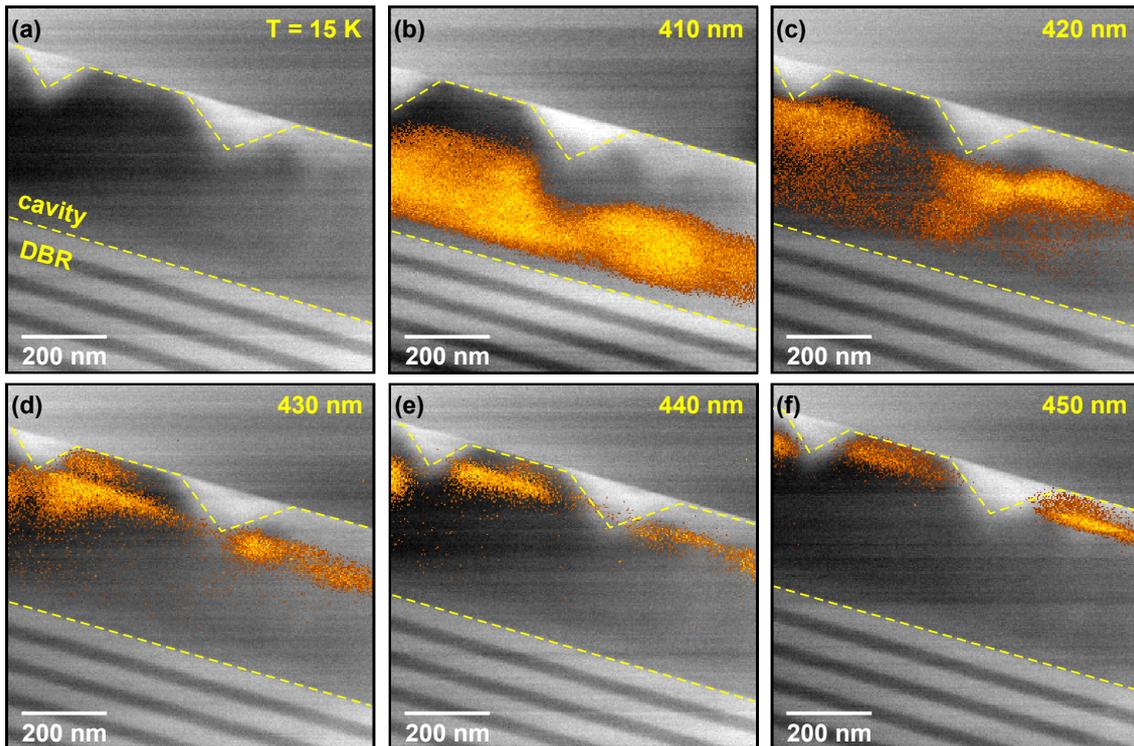
### 3.2.1 Rotverschiebung der InGaN-Emission in Wachstumsrichtung

In Abb. 3.13 (a) ist das STEM (HAADF)-Bild der Kavitätsregion und der oberen DBR-Struktur dargestellt. Im Vergleich zu den GaN-Schichten zeigen die AlInN-DBR-Schichten einen helleren HAADF-Kontrast. Obenauf ist die Kavität erkennbar, die an der Oberfläche sogenannte *V-pits* aufweist. Diese Defekte sind Vertiefungen, deren Geometrie in inversen Pyramiden gleichkommt. Die Ursache dieser Oberflächendefekte sind Versetzungen die aus dem DBR in die Kavität propagieren und dort durch *V-pits* terminiert werden. Das HAADF-Bild korrespondiert zum spektralen Mapping und ortsintegralen Spektrum in Abb. 3.12. Das CLWI-Bild in Abb. 3.13 (b) offenbart eine starke Rotverschiebung der SQW-Peakwellenlänge von 400 nm (3,099 eV) an der Kavität/DBR-Grenzfläche bis 430 nm (2,883 eV) nahe der Oberfläche der Kavität. Die entspricht einer energetischen Verschiebung von mehr als 200 meV. Von der Kavität/DBR-Grenzfläche bis zur Kavitätsmitte kann lediglich eine schmale Peakwellenlängenverschiebung beobachtet werden, wohingegen für den oberen Bereich eine Rotverschiebung von  $\Delta\lambda/\Delta x \approx 12 \text{ nm} / 100 \text{ nm}$  erkennbar ist. Diese vertikale inhomogene Emission führt zu der 75 meV breiten und asymmetrischen integralen Lumineszenz bei 404 nm (siehe Abb. 3.12).

Zur Visualisierung der Rotverschiebung der InGaN-SQW-Emission wurden monochro-



**Abbildung 3.13:** Spektrales CL-Mapping des Kavitätsbereichs bei 16 K: (a) STEM (HAADF)-Bild des AlInN/GaN-DBRs und der  $3\lambda$ -GaN-Kavität; (b) CL-Peakwellenlängenbild zeigt die spektrale Verschiebung der InGaN-SQW-Emission von der Kavität/DBR-Grenzfläche in Richtung Oberfläche [116].

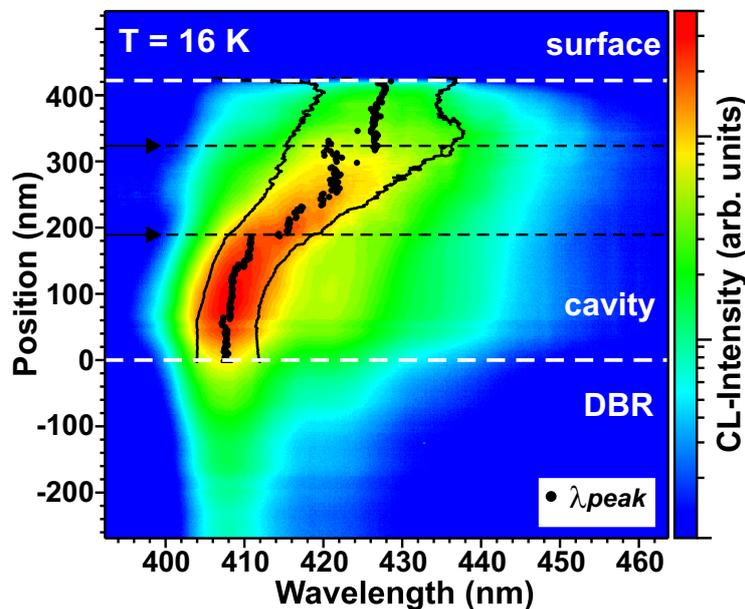


**Abbildung 3.14:** (a) HAADF-Bild des Kavitätsbereichs und (b–f) monochromatische CL-Intensitätsbilder bei Tieftemperatur von 410 bis 450 nm in orangefarbenem Kontrast überlagert mit simultan aufgezeichnetem HAADF-Bild [116].

matische CL-Intensitätsbilder bei verschiedenen Wellenlängen aufgezeichnet und den dazugehörigen HAADF-Bildern in Abb. 3.14 überlagert. Abb. 3.14 zeigt für alle Aufnahmen den gleichen Kavitätsbereich. Bei einer Detektionswellenlänge von 410 nm (Abb. 3.14 (b)) erscheint die höchste CL-Intensität im unteren Bereich der Kavität und erstreckt sich von der Kavitäts/DBR-Grenzfläche bis zur Kavitätsmitte. Dieses Gebiet zeigt die höchste Intensität und ist dem Bereich nahezu konstanter Peakwellenlänge in Abb. 3.13 (b) zuzuordnen. Bei 420 nm ist der CLI-Kontrast in Richtung der Oberfläche der Struktur verschoben (siehe Abb. 3.14 (c)). Diese Verschiebung setzt sich mit Erhöhung der Detektionswellenlänge tendentiell fort. Für die bei 430 nm (Abb. 3.14 (d)), 440 nm (Abb. 3.14 (e)) und 450 nm (Abb. 3.14 (f)) aufgezeichneten CLI-Bilder wird die höchste Intensität in Oberflächennähe emittiert.

### 3.2.2 Nachweis der plastischen Relaxation und Bestimmung der kritischen Schichtdicke

Für eine detaillierte Analyse der Entwicklung der exzitonischen QW-Lumineszenz entlang der Wachstumsrichtung wurde ein CL-Linienscan vom oberen Bereich des DBRs über die Kavität in Richtung Oberfläche durchgeführt. In Abb. 3.15 ist die farbkodierte CL-Intensität in halblogarithmischer Darstellung als Funktion der vertikalen Position und Wellenlänge aufgetragen. Die Position  $x = 0$  nm markiert die Grenzfläche zwischen DBR und Kavität. Allgemein, ist eine starke Rotverschiebung der InGaN-Emission von 407 nm (3,045 eV) am unteren Ende der Kavität bis 429 nm (2,889 eV) an der Oberfläche zu beobachten. Zusätzlich ist eine deutliche Intensitätsreduktion von mehr als einer Größenordnung in Wachstumsrichtung erkennbar. Diese Beobachtungen decken sich mit den bisherigen Ergebnissen an dieser Kavitätsstruktur. Bei sorgfältiger Verfolgung der CL-Peakwellenlängen, die in Abb. 3.15 als schwarze Punkte markiert wurden, lässt sich eine leichte kontinuierliche Rotverschiebung von der Kavität/DBR-Grenzfläche bis zu  $x = 191$  nm erkennen. Diese Position wurde mit einer schwarzen gestrichelten Linie in Abb. 3.15 markiert und entspricht der Position des 32. Quantenfilms. An dieser Stelle springt die CL-Peakwellenlänge abrupt um 3,6 nm ( $\Delta E = 26,5$  meV) zu höheren Wellenlängen. Bei der weiteren Verfolgung der QW-Emission entlang der Wachstumsrichtung schiebt die Peakwellenlänge kontinu-



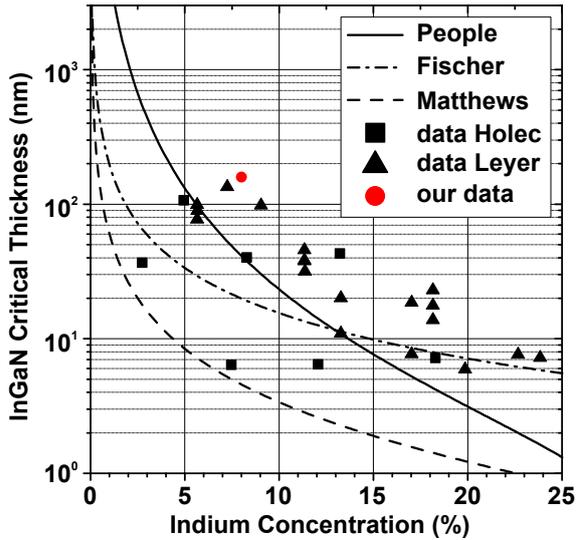
**Abbildung 3.15:** STEM-CL-Linienscan bei 16 K entlang des Kavitätsquerschnitts. Die schwarzen Punkte und Linien kennzeichnen die Peakwellenlänge bzw. die spektrale Position des halben Intensitätsmaximalwertes. Die schwarzen gestrichelten Linien markieren die Positionen der plastischen Relaxation [116].

ierlich zu größeren Wellenlängen bei gleichzeitiger Reduktion des Intensitätsmaximums und Erhöhung der Peakhalbwertsbreite. Letzteres ist in Abb. 3.15 durch den horizontalen Abstand der schwarzen Strichlinien gekennzeichnet. An der Position des 55. Quantenfilms ( $x = 322 \text{ nm}$ ) findet ein weiterer abrupter Peakwellenlängensprung um  $\Delta\lambda = 5,9 \text{ nm}$  ( $\Delta E = 40,7 \text{ meV}$ ) statt. Oberhalb des 55. QWs schiebt die Peakposition wiederum bis zur Oberfläche der Struktur stetig zu größeren Wellenlängen.

Als Ursprung der stetigen Rotverschiebung der InGaN-MQW-Lumineszenz kann die nachgewiesene kontinuierliche Vergrößerung der QW-Schichtdicke in Wachstumsrichtung ( $d_{1st\text{QW}} = 2 \text{ nm} \rightarrow d_{62nd\text{QW}} = 3,3 \text{ nm}$ ) und/oder ein höherer Indiumeinbau angenommen werden. Im Gegensatz dazu ist jedoch das stufenartige Verhalten des CL-Emissionspeaks an der Position des 32. QWs primär einer abrupten Veränderung des Verspannungszustandes des InGaN/GaN-MQWs zuzuordnen. Die strukturelle Kohärenz der epitaktisch gewachsenen Schichten geht verloren und führt zu einer drastischen Änderung der verspannungsabhängigen Bandlücke. Es kann angenommen werden, dass sich diese partielle Relaxation nach 159 nm Verspannungsakkumulation von der ersten bis zur 32. Quantenfilmschicht ereignet. Dieser Prozess wiederholt sich nach weiteren 191 nm vom 33. bis zum 55. InGaN-QW, der teilrelaxiert auf dem 32. QW aufwächst. Diese Teilrelaxation konnte anhand von Röntgenbeugungsexperimente bestätigt werden.

Mit der Verspannungsrelaxation einer Schicht ist die Überschreitung einer kritischen Schichtdicke verbunden, ab der keine Kohärenz zum darunterliegenden Material vorhanden ist. Bisher wurden zur Berechnung der kritischen Schichtdicke von pseudomorph gewachsenen Epitaxieschichten unterschiedliche Modelle aufgestellt. Allen gemein ist die Bildung von Anpassungsversetzungen an den Materialgrenzflächen. Das meistgenutzte Modell ist die Berechnung der kritischen Schichtdicke von Matthews und Blakeslee, welches einen Kraftansatz verwendet und ursprünglich für kubische III-V-Heterostrukturen entwickelt wurde [139]. Dieses Modell wurde von Fischer *et al.* um die Wechselwirkung der Versetzungen untereinander erweitert [140] und für die Relaxation bei Gruppe-III-Nitrid Materialien von Holec *et al.* weiterentwickelt [141]. Im Gegensatz dazu benutzten People und Bean einen empirischen Energieansatz [142], der zwar umstritten, aber erfahrungsgemäß gut mit experimentellen Werten übereinstimmt. In Abb. 3.16 sind die kritischen Schichtdicken für kompakte und auf GaN gitterangepasste dicke InGaN-Schichten nach den Methoden von Fischer, People und Matthews dargestellt. Nach Hums [143] wurde hier für die Berechnung das Gleitsystem  $\langle 11\bar{2}3 \rangle \{11\bar{2}2\}$  verwendet und eine lineare Interpolation der Materialkonstanten vorgenommen. Weiterhin wurden die experimentellen Daten von Holec *et al.* [141], Leyer *et al.* [144] und Parker *et al.* [145] ebenfalls aus deren Publikationen entnommen und in Abb. 3.16 dargestellt.

Es kann angenommen werden, dass die Verspannungsakkumulation im gesamten MQW-Schichtstapel stattfindet. Demzufolge ließe sich der MQW als einzelne InGaN-Schicht mit



**Abbildung 3.16:** InGaN-Schichtdicken für die Relaxation auf GaN in Abhängigkeit der Indiumkonzentration. Theoretische kritische Schichtdicken nach den Modellen von People und Bean [142], Fischer *et al.* [140] und Matthews und Blakeslee [139]. Adaptiert von Ref. [143].

einer mittleren Indiumkonzentration von ca. 8 % modellieren. Unter dieser Annahme übersteigt die hier ermittelte kritische Schichtdicke die theoretischen Berechnungen deutlich. Im Fall von Matthews beträgt der Unterschied mehr als anderthalb Größenordnungen. Die geringste Abweichung ist zum Modell von People und Bean zu erkennen. In diesem Konzentrationbereich wurden kritische Dicken für auf GaN/Saphir-Substraten gewachsene InGaN-Schichten von 100 nm bei  $[\text{In}] = 8\%$  von Parker *et al.* [145], 30 nm bei  $[\text{In}] = 10\%$  von Leyer *et al.* [144] und 35 nm bei  $[\text{In}] = 8,5\%$  von Holec *et al.* [141] angegeben. Im Vergleich zu diesen experimentellen Ergebnissen übersteigen die hier ermittelten Daten – 159 nm bzw. 191 nm mit 8 % mittlerer Indiumkonzentration – deutlich jene kritischen Schichtdicken. Die Abweichungen könnten auf verschiedene Gründe zurückgeführt werden:

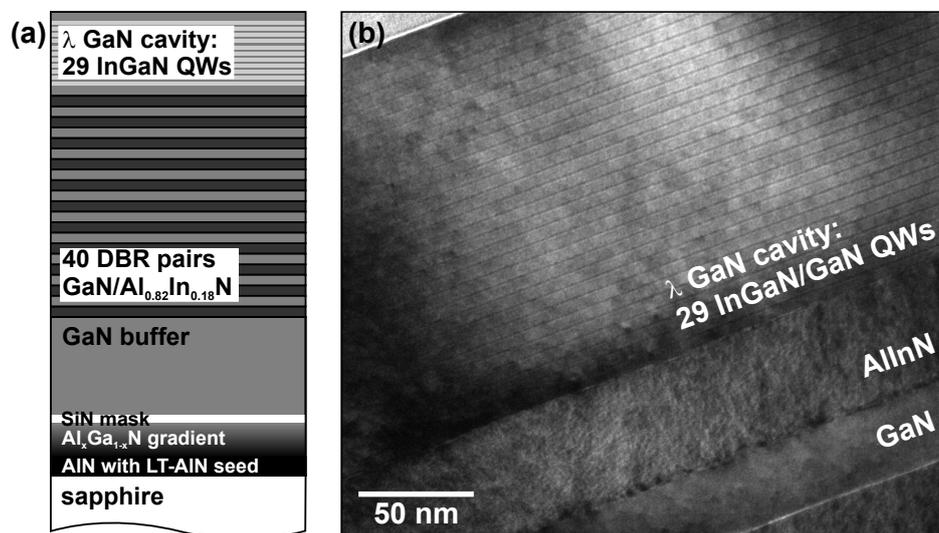
1. Bei den im Experiment verwendeten Unterbau der InGaN-MQW handelt es sich um einen AlInN/GaN-DBR, welcher pseudomorph auf einem GaN/Saphir-Template aufwächst, jedoch grundsätzlich verspannt ist. Damit wächst der InGaN-MQW nicht auf relaxiertem GaN auf. In den theoretischen Kurven in Abb. 3.16 ist die Gitterfehlanpassung der InGaN-Schicht zu relaxiertem GaN angenommen.
2. Bei der Heteroepitaxie von Gruppe III-Nitrid-Materialien auf Saphirsubstraten werden aufgrund der Gitterfehlanpassung Versetzungen generiert. Die vorhandenen Versetzungen können die Verspannung der gewachsenen Schichten stark beeinflussen. Somit muss die kritische Schichtdicke auch im Zusammenhang der Versetzungsdichte betrachtet werden.
3. Die berechneten kritischen Schichtdicken als auch experimentellen Daten von Parker *et al.*, Leyer *et al.* und Holec *et al.* beziehen sich auf einzelne dicke InGaN-Schichten und nicht auf Mehrfachquantenfilmstrukturen. In einer MQW-Struktur sind im Gegensatz zum einzelnen InGaN-Film GaN-Barrieren vorhanden, die eine stark kom-

### 3.2 Plastische Relaxation eines 62-fachen InGaN-MQWs

pressive Wirkung auf die InGaN-Quantenfilme haben. Einen Ansatz zur Bestimmung der kritischen Schichtdicke von Mehrfachquantenfilmstrukturen bietet das Modell von Bykhovski *et al.* [146], welches die elastische Relaxation von Übergitterstrukturen behandelt. Die obere Schranke der kritischen Schichtdicke von GaN/AlN-Übergittern kann nach Bykhovski *et al.* [146] und Glauser [135] abschätzungsweise zu 1,45 mal der kritischen Schichtdicke der Einzelschicht angegeben werden.

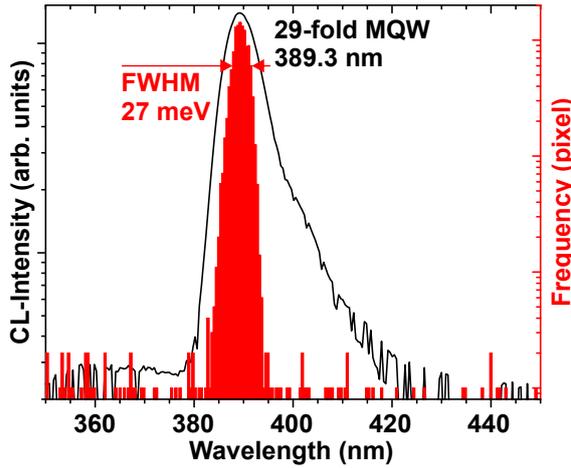
### 3.3 Ladungsträgerlokalisierung im pseudomorph gewachsenen InGaN-MQW

Die Studie des letzten Abschnitts 3.2 illustriert die kritische Behandlung der Verspannung von InGaN/GaN-Mehrfachquantenfilmheterostrukturen auf epitaktischen AlInN/GaN-Bragg-Spiegeln. Um eine plastische Relaxation von violett emittierenden InGaN/GaN-MQWs auf DBRs zu vermeiden, kann eine obere Schranke von 32 QWs für die Anzahl von pseudomorph gewachsenen in einer Kavität eingebetteten Quantenfilme angesehen werden. Es kann davon ausgegangen werden, dass die maximale QW-Anzahl neben der In-Konzentration, der QW-Schichtdicke und der GaN-Barrierendicke auch von der strukturellen Qualität des unteren DBRs abhängt. Nachfolgend wird ein auf einem Bragg-Spiegel gewachsener pseudomorpher 29-facher  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}/\text{GaN}$ -MQW gezeigt und deren optische und strukturelle Eigenschaften diskutiert.



**Abbildung 3.17:** (a) Schematischer Probenaufbau einer  $\lambda$ -GaN-Kavität auf AlInN/GaN-DBR mit 29 eingebetteten InGaN/GaN-Quantenfilmen, (b) TEM-Hellfeldbild zeigt eine konstante Schichtdicke der einzelnen QWs im Kavitätsbereich.

Die betrachtete Probe wurde mittels MOVPE auf einem 2" c-planarem Saphirsubstrat hergestellt. Der schematische Probenaufbau ist in Abb. 3.17(a) dargestellt. Die komplexe Pufferstruktur beginnt mit einer LT-AlN-Keimschicht mit nachfolgender 200 nm dicken AlN-Schicht und einer  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Gradientenschicht (100 nm). Zur Annihilation von Versetzungen dient eine SiN-Maske, auf der anschließend eine 3,5  $\mu\text{m}$  dicke GaN-Schicht epitaktisch abgeschieden wurde. Diese Pufferstruktur diente nachfolgend als Template für einen 40-paarigen  $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}/\text{GaN}$ -DBR mit einer  $\lambda$ -GaN-Kavität, worin ein 29-facher  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}/\text{GaN}$ -MQW-Stapel als aktives Medium eingebettet wurde. Eine Indiumkon-



**Abbildung 3.18:** Ortsintegriertes CL-Spektrum des pseudomorph gewachsenen  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}/\text{GaN}$ -MQWs.

zentration von 11 % konnte für den InGaN-MQW aus Röntgenbeugungsexperimenten bestimmt werden.

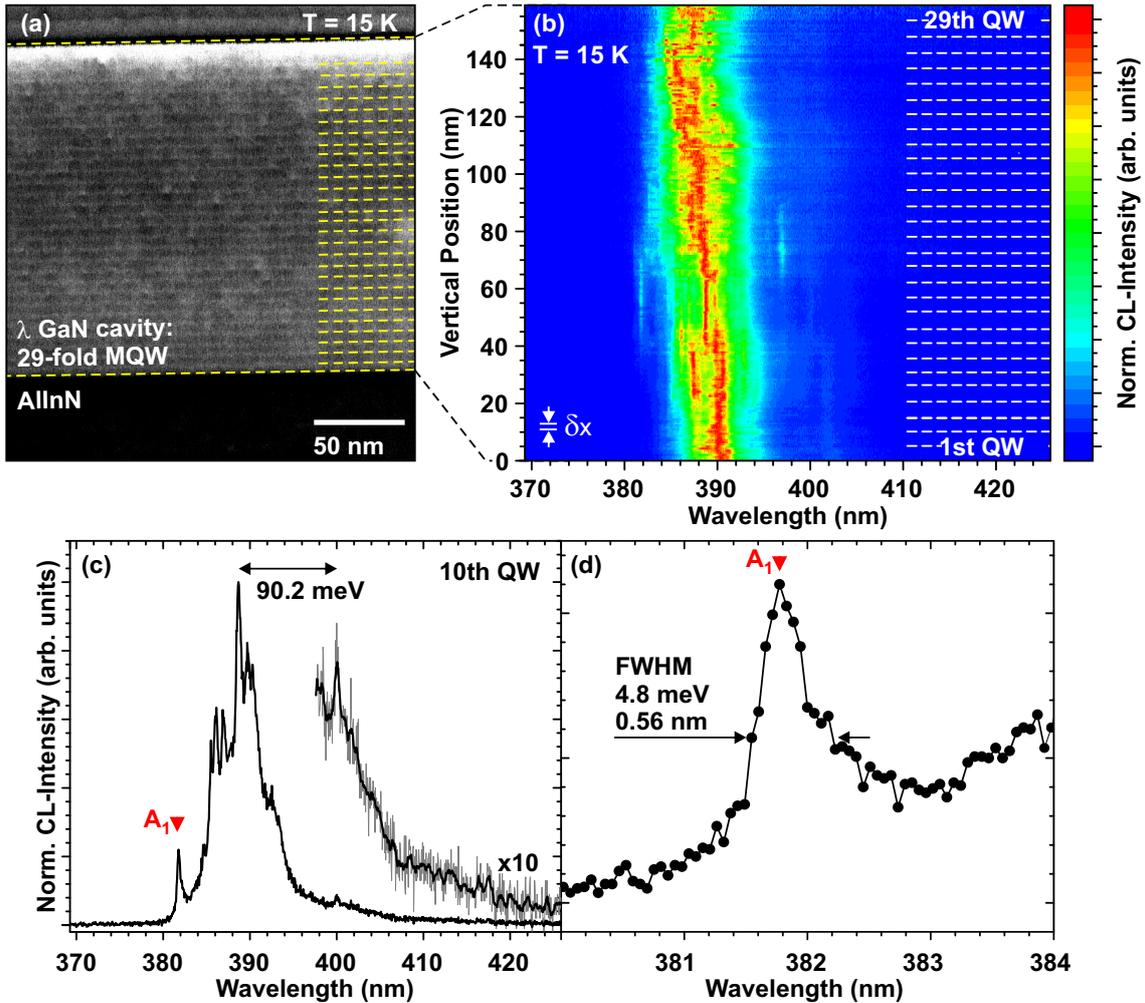
Sowohl die laterale als auch vertikale Homogenität der  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}/\text{GaN}$ -QWs auf dem  $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}/\text{GaN}$ -DBR ist im TEM-Hellfeldbild der Abb. 3.17 (b) zu erkennen. Der MQW-Stapel füllt die gesamte Kavität von der DBR/GaN-Grenzfläche bis zum Kavität/Vakuum-Übergang komplett aus, wobei die QWs in Wachstumsrichtung äquidistant angeordnet sind. Die Schichtdicken der QWs betragen nach TEM-Messungen  $(1,4 \pm 0,1)$  nm mit  $(4,6 \pm 0,1)$  nm dicken umgebenden GaN-Barrieren. Zur Bestimmung des Spannungszustandes der Schichten, wurden in Röntgenbeugungsexperimenten asymmetrische reziproke Gitterkarten um den  $(11\bar{2}4)$ -Reflex erstellt<sup>5</sup>. Sie zeigen, dass die Schichten gleiche a-Gitterkonstanten aufweisen und somit pseudomorph bezüglich GaN gewachsen sind. Im Speziellen ist eine plastische Relaxation des 29-fachen  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}/\text{GaN}$ -MQWs nicht zu sehen.

Das ortsinintegrierte Spektrum aus dem Kavitätsbereich (siehe Abb. 3.18) der querschnittspräparierten Probe zeigt eine dominante Emission des  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}$ -MQWs bei 389,3 nm (3,18 eV) mit einer zusätzlichen Emissionsschulter auf der niederenergetischen Flanke des Hauptpeaks bei 15 K. Letztere tritt in einem energetischen Abstand von 80 meV zum Intensitätsmaximum auf und kann einer phononenassistenten Replik der  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}$ -MQW-Lumineszenz zugeordnet werden. Der gesamte MQW-Stapel weist eine Halbwertsbreite von 65 meV auf.

Zur Analyse der spektralen Feinstruktur der InGaN-Lumineszenz individueller QWs innerhalb des MQW-Stapels wurde ein Linienscan über den Kavitätsbereich (siehe Abb. 3.19 (a)) in einem ca. 75 nm dünnen TEM-Folienbereich durchgeführt. Zur Abschätzung der Strahlverbreiterung und des damit verbundenen Generationsvolumens wurde Gleich-

<sup>5</sup>XRD-Experimente wurden an der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg am Institut für Experimentelle Physik in der Arbeitsgruppe um Prof. Dr. Armin Dadgar/Dr. André Strittmatter von Herrn Dipl.-Phys. Christoph Berger und Herrn Dr. Jürgen Bläsing durchgeführt.

chung 2.1 herangezogen (siehe Markierung  $\delta x$  in Abb. 3.19 (b)). Die einzelnen Quantenfilme sind im HAADF-Bild deutlich zu erkennen und können den Positionen im Linienscan anhand des simultan aufgezeichneten STEM-Signals direkt zugeordnet werden. Die spektrale Entwicklung der InGaN-Emission in Wachstumsrichtung ist im normierten Linienscan in Abb. 3.19 (b) zu sehen. Dieser zeigt eine breite Hauptemission um 390 nm auf. In Wachstumsrichtung ist keine Rotverschiebung der  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}$ -Lumineszenz zu beobachten, die



**Abbildung 3.19:** STEM-CL-Analyse der Feinstruktur der  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}$ -MQW-Emission bei Tieftemperatur: (a) HAADF-Bild der 29  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}/\text{GaN}$ -QWs; (b) in Wachstumsrichtung verlaufender CL-Linienscan zeigt die Superposition von scharfen Lumineszenzlinien an den jeweiligen QW-Positionen (weiße Strichlinien); (c) lokales Spektrum des zehnten QWs zeigt die Überlagerung einzelner scharfer CL-Linien, die in eine 40 meV breite Emission resultiert, und eine LO-Phononenreplik ( $\Delta E = 90$  meV); (d) vergrößerte Darstellung der Emission  $A_1$  mit einer Halbwertsbreite von 4,8 meV.

auf eine plastische Relaxation der  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}$ -Epitaxieschichten hindeuten würden. Dies stimmt mit der Beobachtung der Vollverspannung der MQW-Struktur zum GaN in Röntgenbeugungsexperimenten überein. Am deutlichsten erscheint jedoch die Superposition von mehreren einzelnen scharfen Lumineszenzlinien innerhalb der  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}$ -Emission. An jeder Position lassen sich diese scharfen Lumineszenzpeaks ausmachen, die sich durchaus über mehrere QWs erstrecken können. Letzteres kann auf die Diffusion der Überschussladungsträger in benachbarte QWs zurückgeführt werden. Ein exemplarisches Spektrum der QW-Emission ist in Abb. 3.19 (c) dargestellt. Es wurde exakt an der vertikalen Position des zehnten Quantenfilms extrahiert und zeigt die Überlagerung von mehreren scharfen Emissionslinien, die in einer Halbwertsbreite des gesamten Peaks von 40 meV resultiert. Zur Bestimmung der Breite einer einzelnen Emissionslinie wurde ein individueller Übergang  $A_1$  bei 381,8 nm (3,2467 eV) auf der hochenergetischen Flanke der  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}$ -Emission in Abb. 3.19 (c) ausgewählt. Hier lässt sich eine FWHM von 4,7 meV bestimmen (siehe Abb. 3.19 (d)). Neben der Hauptemission ist eine zusätzliche Replik mit einem energetischen Abstand von 90 meV auf der niederenergetischen Flanke zu sehen und korrespondiert zur LO-Phononenenergie im (In)GaN-System.

Das Auftreten der scharfen Emissionslinien in InGaN/GaN-QWs wird der Rekombination von Elektron-Loch-Paaren in einzelnen lokalisierten Zuständen zugeschrieben [147]. Erstmals konnten Schömig *et al.* Linienbreiten von bis zu 0,8 meV in  $\mu\text{PL}$ -Experimenten an 3 nm dicken mit Nanoaperturen strukturierten  $\text{In}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{N}/\text{GaN}$ -Einzelquantenfilmen nachweisen. Die hier bestimmte Linienbreite übersteigt deutlich den FWHM-Wert von Schömig *et al.* [147], befindet sich jedoch in der gleichen Größenordnung wie durch  $\mu\text{PL}$ -Experimente bestimmte Halbwertsbreite von Glauser [137] und könnte aufgrund der erhöhten Sensitivität zur lokalen Umgebung auf eine ausgeprägtere spektrale Diffusion zurückgeführt werden [137]. Im Gegensatz zu Glauser *et al.* [137] als auch Schömig *et al.* [147] werden in den hier durchgeführten CL-Experimenten Überschussladungsträger durch Elektronenanregung generiert, woraus erfahrungsgemäß eine große spektrale Diffusion resultiert [66]. Nichtsdestotrotz konnten derartig scharfe Lumineszenzlinien von InGaN-QWs bisher nicht in ortsaufgelösten Kathodolumineszenzexperimenten nachgewiesen werden, was auf die geringere räumliche Auflösung in SEM-CL-Analysen verglichen zur Dichte und Größe der Lokalisierungszentren zurückgeführt wurde (siehe bspw. Chichibu *et al.* [148]).

Der Mechanismus der Ladungsträgerlokalisierung und Ausbildung von quantenpunktartigen Zuständen kann auf drei Ursachen zurückgeführt werden:

- (i) zufallsbedingte Konzentrationsfluktuationen der InGaN-Mischverbindung auf atomarer Längenskala. Theoretische Berechnungen [149, 150, 151] zeigen, dass atomare statistische [In]-Fluktuationen ausreichen, um eine starke Lokalisierung von Löchern hervorzurufen. Als Ursache der Lochlokalisierung konnten durch atomistische, empirische Pseudopotentialrechnungen In-Atome in sehr niedrigkonzentrierten InGaN-

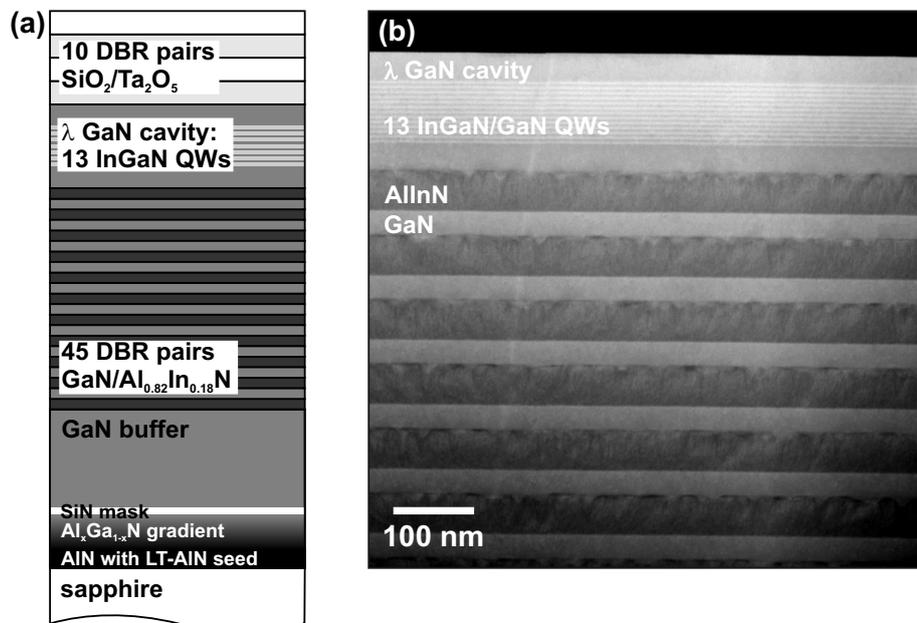
Verbindungen [149] bzw. In-N-In-N-In-Ketten [152, 153] vorhergesagt werden. Chichibu *et al.* [154] folgerten aus monoenergetischer Positronannihilationsspektroskopie eine Loch-(Positron-)Lokalisierung an atomaren In-N Kondensaten, die auf die theoretisch vorhergesagten In-N-Lokalisierungszentren hindeuten.

- (ii) Schichtdickenfluktuationen des Quantenfilms [155], die eine Veränderung der Quantisierungsenergie unter Berücksichtigung des QCSE nach sich ziehen. In diesem Fall werden nach theoretischen Analysen [150, 151] hauptsächlich die Elektronenwellenfunktionen lokalisiert. Graham *et al.* [156] beobachteten in STEM (HAADF)-Bildern Monolagenfluktuationen an InGaN-Quantenfilmschichten, die als Ursache der Exzitonenlokalisierung angenommen werden. Gleichermaßen konnten Galtrey und Kollegen mittels Atomsondentomographie keine Anzeichen von Indiumclustering verzeichnen, jedoch Monolagenstufen an der InGaN/GaN-QW-Grenzschicht, die zur Ladungsträgerlokalisierung beitragen könnten [157].
- (iii) Indium-Cluster-Bildung bzw. Fernordnung der In-Konzentrationsunterschiede führt zu In-reichen und -armen Gebieten auf supraatomarer Skala. Hierdurch wird die elektronische Struktur durch ein komplexes Wechselspiel von lokaler Zusammensetzung und Verspannung beeinflusst, wodurch neben der fundamentalen Bandlücke auch spontane und piezoelektrische Polarisationsfelder lokal verändert werden. Je ne In-reichen Gebiete können als „intrinsische Quantenpunkte“ verstanden werden, in denen selbst bei geringer Segregation von In-Atomen Ladungsträger eingeschränkt und somit lokalisiert sind [152, 153].

Eine Ladungsträgerlokalisierung aufgrund von Schichtdickenfluktuationen erscheint im Fall des hier betrachteten pseudomorphen InGaN-MQW unwahrscheinlich, da aus den TEM-Schichtdickenanalysen keine lateralen Unterschiede in der QW-Schichtdicke hervorgehen. Vielmehr könnten die auftretenden scharfen Emissionslinien und damit verbundenen Lokalisierungszentren durch lokale atomare als auch fernreichweitige Konzentrationsunterschiede hervorgerufen werden. Zum ersten Mal konnten hier derartig scharfe Lumineszenzlinien, die auf die Existenz von Ladungsträgerlokalisierung hindeuten, von InGaN-QWs in orts aufgelösten Kathodolumineszenzexperimenten nachgewiesen werden.

### 3.4 Örtliche Eigenschaften der exzitonischen und photonischen Mode eines violett emittierenden VCSELs

In diesem Abschnitt soll eine hybride III-Nitrid-Mikrokavität hinsichtlich ihrer exzitonischen als auch photonischen Eigenschaften diskutiert werden. Es handelt sich bei dieser Probe, um eine erfolgreich hergestellte VCSEL-Struktur, die unter Photonenanregung Lasingsverhalten zeigt. In Abb. 3.20 (a) ist die Probenstruktur schematisch dargestellt. Mittels MOVPE wurde auf einem Saphir-Substrat mit optimierter Pufferschicht ein 45-paariger vollverspannter  $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}/\text{GaN}$ -DBR epitaktisch abgeschieden und obenauf in einer  $\lambda$ -GaN-Kavität 13  $\text{InGaN}/\text{GaN}$ -QWs eingefügt. Die Quantenfilme wurden gleichmäßig um die zentrale Antinode des optischen Stehwellenfeldes verteilt. Die Indiumkonzentration der QWs konnte aus Röntgenbeugungsexperimenten zu 13,6% bestimmt werden. Um die Mikrokavität zu komplettieren wurde als oberer Spiegel ein 10-paariger dielektrischer  $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$  gewählt.



**Abbildung 3.20:** (a) schematischer Probenaufbau der vollständigen hybriden VCSEL-Struktur mit (b) HAADF-Bild der  $\lambda$ -GaN-Kavität und des oberen Bereichs des  $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}/\text{GaN}$ -DBRs (hier ohne dielektrischen  $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ -Spiegel).

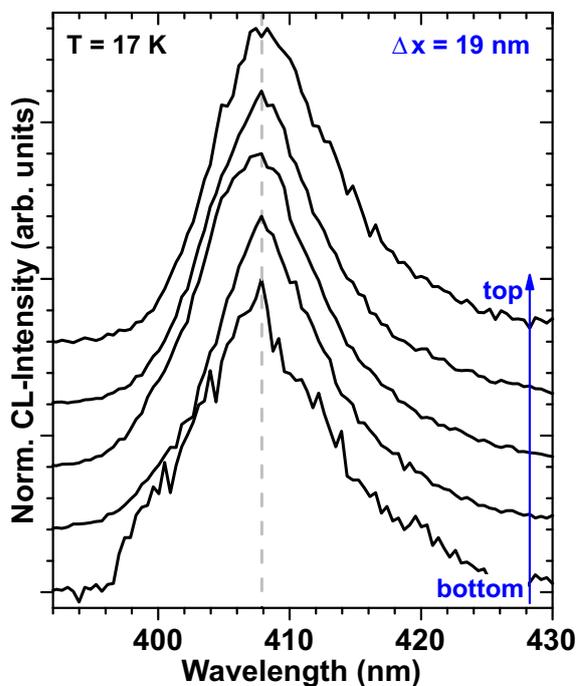
Das HAADF-Bild in Abb. 3.20 (b) zeigt die Semikavität ohne dielektrischen  $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ -Spiegel. Die AlInN-Schichten besitzen im Gegensatz zu den GaN-Schichten des DBRs eine leichte Aufrauung der oberen AlInN/GaN-Grenzfläche und resultieren aus dem dreidimensionalen Wachstum der  $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}$ -Schichten. Die aus den STEM-Daten ermittelten Schichtdicken ( $d_{\text{GaN}} = (31 \pm 2)$  nm,  $d_{\text{AlInN}} = (49 \pm 2)$  nm), die sowohl in lateraler als auch

vertikaler Richtung homogen sind, weichen von der  $\lambda/4$ -Bedingung für konstruktive Interferenz zu 20 % bzw. 17 % ab. Mit Hilfe der gemessenen DBR-Periodendicke und dem gemittelten Brechungsindex beider Schichten ergibt sich eine Bragg-Wellenlänge von 388 nm. Die  $\lambda$ -GaN-Kavität weist mit einer Schichtdicke von 150 nm Resonanz zur 388 nm Bragg-Wellenlänge auf. Eingebettet in 4 nm dicken GaN-Barrieren zeigen die  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -QWs eine homogene Schichtdicke von 2 nm.

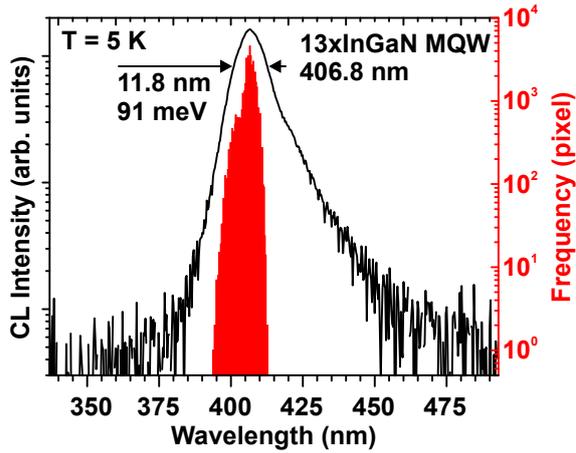
### 3.4.1 Exzitonische Unordnung des 13-fachen InGaN-MQWs

Zur Untersuchung vertikaler Inhomogenitäten der  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW-Emission wurden hochauflösende STEM-CL-Analysen an der halben Mikrostruktur vorgenommen. In Abb. 3.21 sind lokale STEM-CL-Spektren aus dem Kavitätsbereich zu sehen. In äquidistanten Schritten von  $\Delta x = 19$  nm vom unteren Bereich der Kavität bis zur Oberfläche wurde der  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW mittels konvergenter Elektronenstrahl angeregt. Trotz leichter Unterschiede in der Linienform der Einzelspektren sind innerhalb der spektralen Auflösungsgrenze keine Unterschiede der Peakwellenlänge von 407,9 nm erkennbar. Diese Untersuchungen sind repräsentativ für die Lumineszenzeigenschaften des MQWs im Querschnitt und zeigen, dass sich einzelne QWs nicht unterscheiden. Vertikale Inhomogenitäten der exzitonischen Emission des aktiven Mediums können somit ausgeschlossen werden.

Die lateralen Inhomogenitäten der exzitonischen  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -Lumineszenz auf Submikrometerskala wurden an der halben Mikrostruktur (ohne oberen dielektrischen Spiegel) mittels CL-Spektroskopie im SEM analysiert. Hierzu wurde ein spektrales Mapping ei-



**Abbildung 3.21:** lokale STEM-CL-Spektren in äquidistantem Abstand von 19 nm vom unteren Bereich bis zur Oberfläche der  $\lambda$ -GaN-Kavität bei  $T = 17$  K aufgezeichnet.



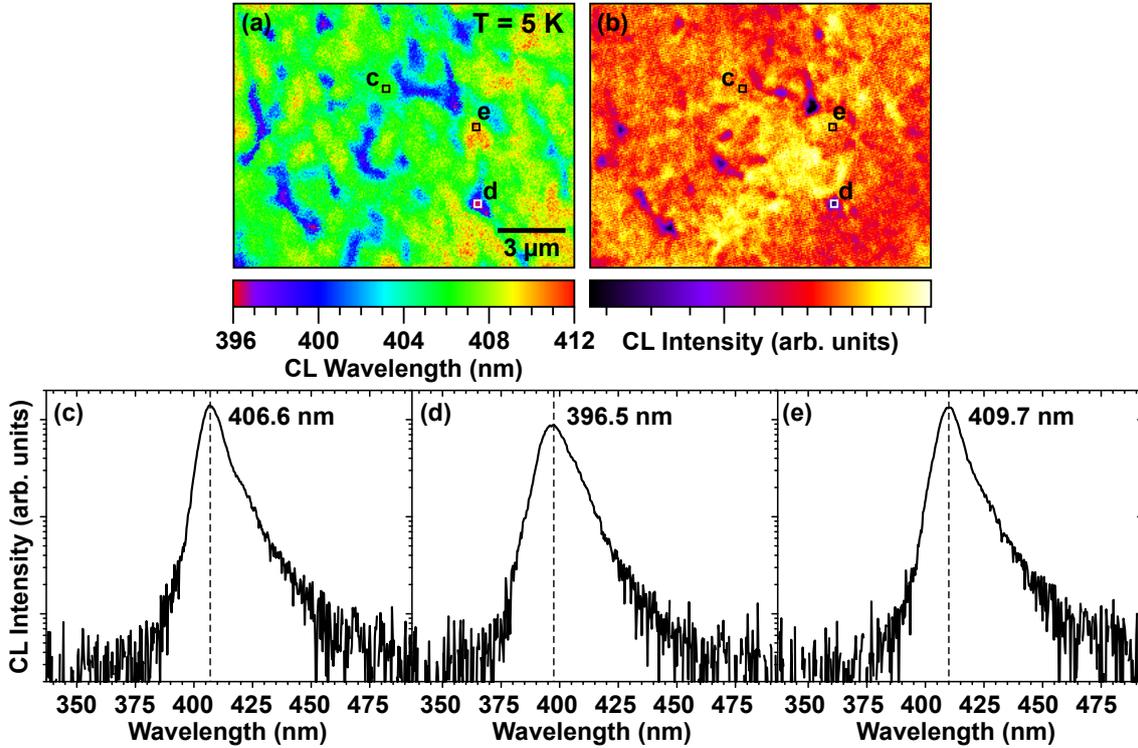
**Abbildung 3.22:** Ortsintegriertes CL-Spektrum von der Oberfläche der halben Mikrostruktur (ohne oberen dielektrischen Spiegel) zeigt die Emission des 13-fachen  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}/\text{GaN}$ -MQW bei  $T = 5\text{ K}$ .

nes  $15 \cdot 10 \mu\text{m}^2$  großen Bereiches der Probenoberfläche bei 5 K durchgeführt. Die gewählte Beschleunigungsspannung von 5 kV erlaubt eine Elektronenstrahlanregung des gesamten  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW-Stapel. In Abb. 3.22 ist das daraus resultierende ortsintegrierte CL-Spektrum mit einem Intensitätsmaximum der MQW-Emission bei 406,8 nm (3,047 eV) zu sehen. Die ortsintegrierte Halbwertsbreite beträgt hierbei 91 meV, wobei eine asymmetrische Linienform zu beobachten ist. Nachfolgend soll der Beitrag der lateralen Inhomogenität der  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW-Emission zur ortsintegralen Halbwertsbreite diskutiert werden.

Das Histogramm in Abb. 3.22 und das CL-Wellenlängenbild in Abb. 3.23 (a) ermöglichen eine Quantifizierung der lateralen exzitonen Unordnung. Sie zeigen die spektrale Häufigkeit bzw. laterale Verteilung der MQW-Peakwellenlänge. Im Wellenlängenbild sind unterschiedliche Bereiche der  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW-Peakwellenlänge auszumachen. Gebiete deutlich blauverschobener Emission mit  $\lambda_{Peak} \approx 400\text{ nm}$ , die eine laterale Ausdehnung von bis zu  $3 \mu\text{m}$  aufweisen, sind umgeben von Regionen mit einem Intensitätsmaximum von 406 nm bis 411 nm. Diese Ortsverteilung der Peakwellenlänge spiegelt sich im Histogramm der Abb. 3.22 in Form einer bimodalen Verteilung wider. Es ist deutlich ein Häufigkeitsmaximum bei 406,6 nm (3,048 eV) mit einer weiteren Schulter bei 401,7 nm (3,085 eV), zu sehen. Die Halbwertsbreite der Häufigkeitsverteilung kann als Maß der lateralen exzitonen Unordnung des  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQWs angesehen werden und beträgt 28 meV.

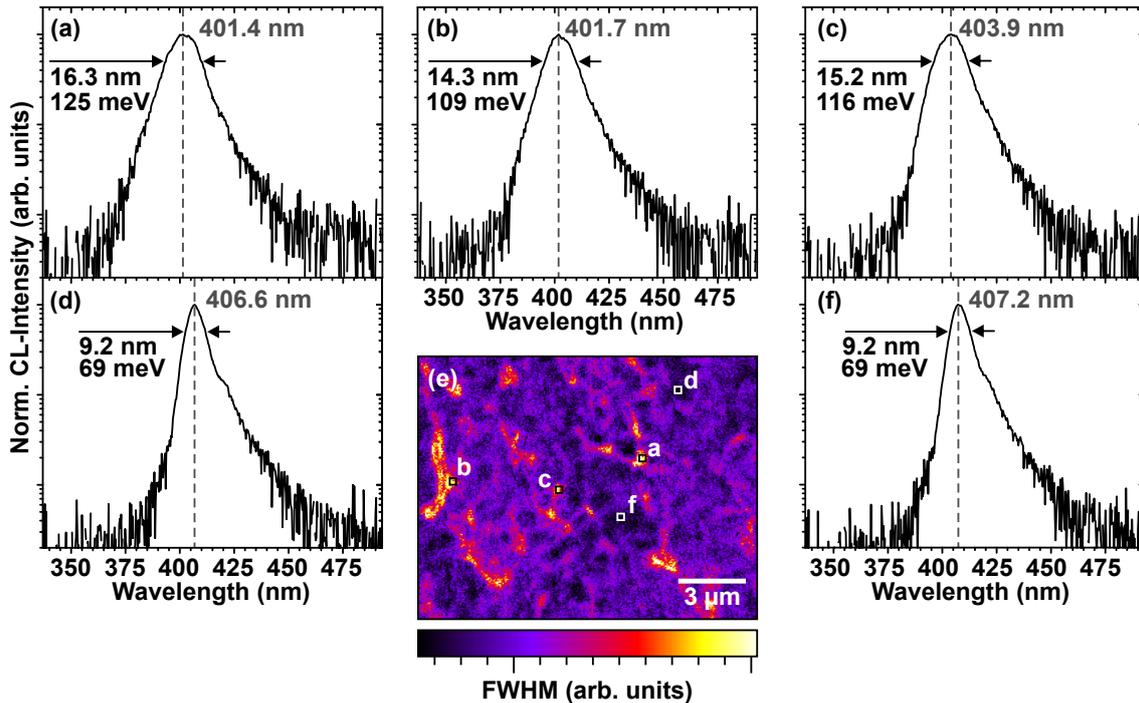
Lokale Spektren verdeutlichen die spektrale Verschiebung des  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW-Peaks in den jeweiligen Regionen (siehe Abb. 3.23 (c-e)). In Abb. 3.23 (c,e) ist lediglich eine Verschiebung des Intensitätsmaximums jedoch keine signifikante Änderung der absoluten Intensität auszumachen. Im Gegensatz dazu kann aus Abb. 3.23 (d) neben einer Blauverschiebung auf eine leichte Intensitätsreduktion mit gleichzeitiger Zunahme der Halbwertsbreite geschlossen werden. Da aus den STEM-CL-Messungen keine Unterschiede der einzelnen QWs im Stapel und keine Separation mehrerer Peaks in den lokalen Spektren der Abb. 3.23 (c-e) auszumachen sind, kann angenommen werden, dass sich die optischen Eigenschaften des gesamten MQW-Stapels lateral ändern.

Zur Darstellung der Intensitätsverteilung wurde in Abb. 3.23 (b) das integrale CLI abgebildet. Es zeigt über einen großen Bereich nur geringe Intensitätsunterschiede von weniger als einer Größenordnung. Die  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW-Lumineszenz zeigt somit über einen großen Bereich eine homogene integrale Intensität. Augenfällig ist die direkte Korrelation der intensitätsschwachen Gebiete mit den Bereichen blauverschobener MQW-Lumineszenz.



**Abbildung 3.23:** Untersuchung der lateralen exzitonischen Unordnung des InGaN-MQW bei 5 K: (a)  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -Peakwellenlängenbild, (b) integrale Intensitätsverteilung der MQW-Emission, sowie (c-e) lokale Spektren.

Die integrale Halbwertsbreite des in Abb. 3.22 dargestellten Spektrums setzt sich neben der eben diskutierten lateralen exzitonischen Unordnung aus den lokalen Halbwertsbreiten zusammen. Zur Visualisierung der örtlichen Abhängigkeit der Halbwertsbreite wurde ein FWHM-Mapping generiert. Dies wurde aus dem Verhältnis der integralen Intensität zur Peakintensität der  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW-Emission bestimmt und ist ein qualitativer Indikator für die FWHM. Abb. 3.24(e) zeigt das Halbwertsbreitenmapping, wobei weiße/schwarze Farbwerte einer großen/kleinen FWHM entspricht. In diesem Map ist deutlich zu sehen, dass im überwiegenden Teil des abgerasterten Feldes eine vergleichsweise geringe Halbwertsbreite (violetter bis schwarzer Farbwert) vorzufinden ist. Lokale Spektren aus diesem Gebiet (siehe Abb. 3.24(d, f)) zeigen eine Halbwertsbreite von 9,2 nm (69 meV). Nur in lokal begrenzten Bereichen ist eine erhöhte FWHM zu erkennen. Anhand der lokalen Spektren aus diesen Regionen in Abb. 3.24(a-c) zeigt sich eine Halbwertsbreite von mehr



**Abbildung 3.24:** Örtliche Variation der Halbwertsbreite ( $T = 5$  K): (e) Verhältnis der integralen Intensität zur Peakintensität der  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -Emission als qualitativer Indikator der FWHM, (a-c, d, f) lokale Spektren zeigen erhöhte Halbwertsbreiten im Fall blauverschobener  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW-Emission.

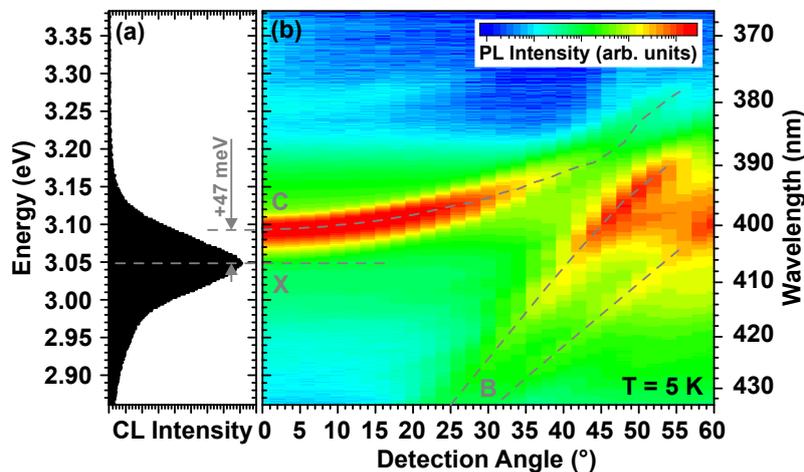
als 14 nm. Verglichen zu den lokalen Spektren in Abb. 3.24 (d, e) ist in diesen Gebieten eine mehr als anderhalb mal so große FWHM und eine örtliche Korrelation zu den Gebieten blauverschobener, intensitätsschwacher Emission zu sehen.

Die aus lateralen Inhomogenitäten (auf Submikrometerskala) resultierende Halbwertsbreite von 28 meV überwiegt die lokale Linienbreite der  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW-Emission von mehr als 69 meV somit nicht. Der dominante Beitrag großer Halbwertsbreiten von in Mikrokavitäten eingebetteten  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQWs ist damit auf die im Anregungsvolumen vorherrschenden Inhomogenitäten auf (Sub-)Nanometerskala zurückzuführen. Ein entscheidender Faktor könnte hierbei der starken Ladungsträgerlokalisierung und Ausbildung quantenpunktartiger Zustände, wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, zugeschrieben werden. Die Ursachen der blauverschobenen Emission in intensitätsschwachen Bereichen mit hoher Halbwertsbreite könnte auf verschiedenste Effekte zurückgeführt werden. Eine direkte Korrelation zu strukturellen Eigenschaften konnte bei dieser Probe nicht gefunden werden und war nicht im Fokus der Betrachtungen. Vielmehr sollen die in diesem Abschnitt präsentierten Ergebnisse als phänomenologische Beschreibung der exzitonischen Unordnung von in Mikrokavitäten eingebetteten InGaN-MQWs betrachtet werden, deren Quantifizierung im Mittelpunkt steht.

### 3.4.2 Identifizierung der photonischen Mode

Zur Identifizierung der photonischen Mode der kompletten Mikrokapazität mit oberem dielektrischen  $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ -DBR wurde die Winkeldispersion in winkelabhängigen PL-Experimenten untersucht. Mit der Variation des Detektionswinkels ändert sich direkt die planare Wellenzahlkomponente des Kavitätsphotons und entsprechend Gleichung 1.7 auch deren Energie. Nach Gleichung 1.7 kann für die Mode des Kavitätsphotons eine parabolische Abhängigkeit von deren planaren Wellenzahlkomponente angenommen werden. Aufgrund der im Vergleich zum Kavitätsphoton um etwa  $10^3$  größeren Masse des Exzitons ist dagegen im reziproken Raum eine nahezu winkelunabhängige Emission des  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQWs zu erwarten [158]. Durch die direkte Beeinflussung der planaren Komponente des Wellenvektors erlaubt diese Messmethode eine Identifikation und ein Ausmessen der Dispersionsabhängigkeit der Kavitätsmode.

In Abb. 3.25 (b) ist die farbkodierte PL-Intensität als Funktion der spektralen Position und des Detektionswinkels dargestellt. Bei diesem Experiment wurde die komplette Mikrokapazität mit einem unfokussierten HeCd-Laser senkrecht zur Probenoberfläche angeregt und mit Hilfe der am Goniometerarm arretierten Glasfaser ein PL-Spektrum bei eingestelltem Detektionswinkel aufgezeichnet. Die Experimente wurden an der von Franke aufgebauten Messanordnung durchgeführt [158]. Winkelabhängige PL-Spektren wurden sequenziell im Abstand von  $2^\circ$  akquiriert. Senkrecht zur Probenoberfläche wird die intensivste Emission bei  $400,7\text{ nm}$  ( $3,093\text{ eV}$ ) emittiert und schiebt für höhere Detektionswinkel zu geringeren Wellenlängen bis zu  $378,0\text{ nm}$  ( $3,279\text{ eV}$ ) bei  $56^\circ$ . Dabei schiebt diese Mode im Winkel-



**Abbildung 3.25:** Winkelabhängige Abstrahlcharakteristik der um  $47\text{ meV}$  positiv verstimten Mikrokapazität: (a) exzitronische Emission X des  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW aus ortsintegralelem CL-Spektrum, (b) winkelabh. PL-Experiment zeigt Winkeldispersion der Kavitätsmode C und Bragg-Moden B ( $T = 5\text{ K}$ ).

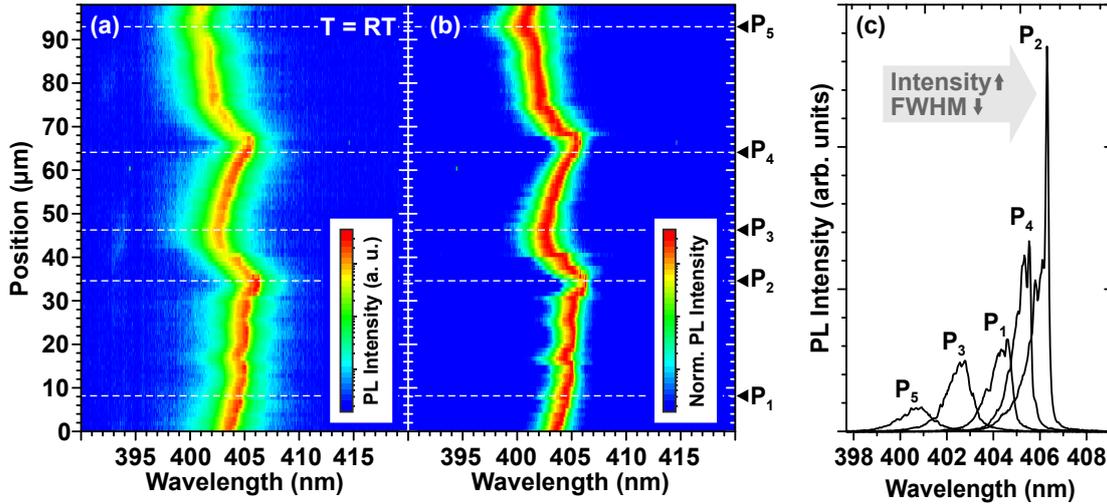
bereich von  $0^\circ$ - $46^\circ$  näherungsweise parabolisch. Dieses Verhalten kann der photonischen Kavitätsmode, die in Abb. 3.25 (b) mit C gekennzeichnet ist, zugeschrieben werden. Als Vergleich zur  $\text{In}_{0,136}\text{Ga}_{0,864}\text{N}$ -MQW-Emission wurde in Abb. 3.25 (a) das ortsintegrale CL-Spektrum der halben Kavität dargestellt, welches ebenfalls wie die winkelabhängige PL-Messungen aus der Wafermitte gewonnen wurde. Es kann angenommen werden, dass keine signifikanten Unterschiede in den ortsintegralen Eigenschaften der exzitonischen Mode im Bereich der Wafermitte bestehen. Damit beträgt die energetische Verstimmung zwischen Kavitäts- und exzitonischer Mode  $+47\text{ meV}$ . Die Mikrokavität ist somit positiv verstimmt. Ab einem Detektionswinkel von  $26^\circ$  können weitere Lumineszenzkanäle am unteren Rand des spektralen Fensters beobachtet werden, die ebenfalls mit steigendem Winkel zu geringeren Wellenlängen schieben. Diese Moden sind in Abb. 3.25 (b) mit dem Buchstaben B gekennzeichnet. Aus winkelabhängigen PL-Messungen in einem größeren spektralen Fenster zeigen diese Moden ebenfalls näherungsweise parabolisches Verhalten und besitzen bei einem Detektionswinkel von  $0^\circ$  eine Peakwellenlänge von  $447,8\text{ nm}$  ( $2,768\text{ eV}$ ), die mit der Bragg-Mode des oberen dielektrischen Spiegels übereinstimmt. Aufgrund der größeren DBR-Gesamtschichtdicke und der geringeren DBR-Brechungsindizes des oberen Spiegels zeigen diese Moden eine stärkere Krümmung und damit stärkere Peakverschiebung mit steigendem Detektionswinkel als die Kavitätsmode. Die Ursache in der Ausbildung mehrerer Bragg-Moden des oberen Spiegels ist auf die Aufspaltung in transversalmagnetische und transversalelektrische Komponenten zurückzuführen.

Aus den winkelabhängigen Messungen kann makroskopisch auf eine um  $47\text{ meV}$  positiv verstimmte Mikrokavität und einer schwachen Kopplung zwischen der Kavitäts- und exzitonischen Mode geschlossen werden. Die Kavitätsmode folgt näherungsweise einer parabolischen Dispersion, was auf eine schwache Kopplung zwischen Exziton und Photon schließen lässt. Dies ist in Übereinstimmung mit Glauser *et al.*, wonach für exzitonischen Linienbreiten von  $\text{InGaN}$ -QWs oberhalb von  $36\text{ meV}$  keine starke Kopplung beobachtet werden kann [138]. Dieser kritische Wert für die Halbwertsbreite der  $\text{InGaN}$ -MQW-Emission wird im Fall dieser Probe deutlich überschritten. Damit eignet sich diese Mikrokavitätsstruktur für Anwendungen im Regime der schwachen Kopplung, wie bspw. als Kavität-LED oder als VCSEL.

#### 3.4.3 Örtliche Kavitätsunordnung

Zur Untersuchung der örtlichen Verteilung der Kavitätsmode wurde ein  $\mu\text{PL}$ -Mapping der zur Probenoberfläche senkrecht emittierenden Emission bei Raumtemperatur durchgeführt. Hierbei ist zu beachten, dass wie in Abb. 3.25 (b) eine starke Winkeldispersion der Kavitätsmode vorliegt und somit bei winkelintegrierenden Lumineszenzmessungen die numerische Apertur des optischen Systems zu berücksichtigen ist. Je höher die numerische Apertur ist, desto größer ist der integrierende Winkelbereich. Als Konsequenz ergibt sich

ein Spektrum, welches sich aus der Emission der Kavitätsmode bei unterschiedlichen Winkeln zusammensetzt. Damit ist die eigentliche Kavitätsmode im Rahmen der numerischen Apertur verbreitert. Um eine Aussage über die lokale Halbwertsbreite der Kavitätsmode zu treffen, ist somit ein Objektiv kleiner numerischer Apertur zu wählen. Dies steht im Widerspruch zur Ortsauflösung bei  $\mu$ PL-Messungen. Als Kompromiss wurde ein Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,5 verwendet und vor dem Objektiv eine Apertur mit einem Durchmesser von 1 mm justiert. Die numerische Apertur des Sammelsystems wurde somit heruntergesetzt.



**Abbildung 3.26:** Analyse der lateralen Variation der Kavitätsmode bei RT: (a) halblogarithmische bzw. normierte Darstellung des  $\mu$ PL-Linienscans, (c) lokale Spektren P<sub>1-5</sub> zeigen Peakintensitätszunahme bzw. Verringerung der Halbwertsbreite bei gleichzeitiger Erhöhung der Peakwellenlänge.

Abbildung 3.26 (a, b) zeigt einen lateralen Linienscan über die komplette Mikrokapazität. Man kann in der halblogarithmischen Darstellung (siehe Abb. 3.26 (a)) eine örtliche Verschiebung der Kavitätsmode erkennen, die im Spektralbereich von 400 nm bis 406 nm variiert. Dies wird anhand der lokalen Spektren in Abb. 3.26 (c) deutlich, die an unterschiedlichen Stellen P<sub>1-5</sub> des Linienscans entnommen wurden. So ergibt sich für die Kavitätsmode an der Position P<sub>2</sub> eine Peakwellenlänge von 406,3 nm (3,051 eV) und an der Stelle P<sub>5</sub>  $\lambda_{\text{Peak}} = 400,7$  nm (3,093 eV). Derartige örtliche Variationen der spektralen Kavitätsmodenposition können durch Änderungen der optischen Dicke der  $\lambda$ -GaIn-Mikrokapazität begründet werden. Eine relative Änderung der optischen Schichtdicke von ca. 1 % würde der spektralen Verschiebung zwischen P<sub>2</sub> und P<sub>5</sub> entsprechen. Die örtliche Variation der Kavitätsmode äußert sich als kontinuierliche örtliche Verschiebung. Dabei kann ein Gradient  $\Delta\lambda_{\text{Peak}}/\Delta r$  von bis zu 0,4 nm/ $\mu\text{m}$  auftreten. Neben der spektralen Verschiebung ist auch eine Intensitätserhöhung der ausgekoppelten Lumineszenz zu höheren Peakwellenlängen

gen zu beobachten. Hier erkennt man deutlich die Zunahme der Peakintensität um mehr als eine halbe Größenordnung von Position P<sub>5</sub> mit einer Peakwellenlänge von 400,7 nm (3,093 eV) zur Position P<sub>4</sub> mit  $\lambda_{\text{Peak}} = 405,5 \text{ nm}$  (3,056 eV). Mit der beschriebenen Intensitätszunahme koinzidiert darüber hinaus eine Verringerung der Halbwertsbreite bei Erhöhung der Peakwellenlänge. Dies ist in der normierten Darstellung des Linienscans als auch in den lokalen Spektren deutlich erkennbar (siehe Abb. 3.26 (b, c)). Für P<sub>2</sub> ergibt sich eine Halbwertsbreite von 0,17 nm (1,2 meV), welche nahe der spektralen Auflösungsgrenze der verwendeten Messanordnung liegt. Hieraus lässt sich ein örtlicher Qualitätsfaktor der Kavität von  $Q_c = 2480$  abschätzen. Demgegenüber steht eine FWHM von 1,4 nm (10,8 meV) an der Position P<sub>5</sub>.

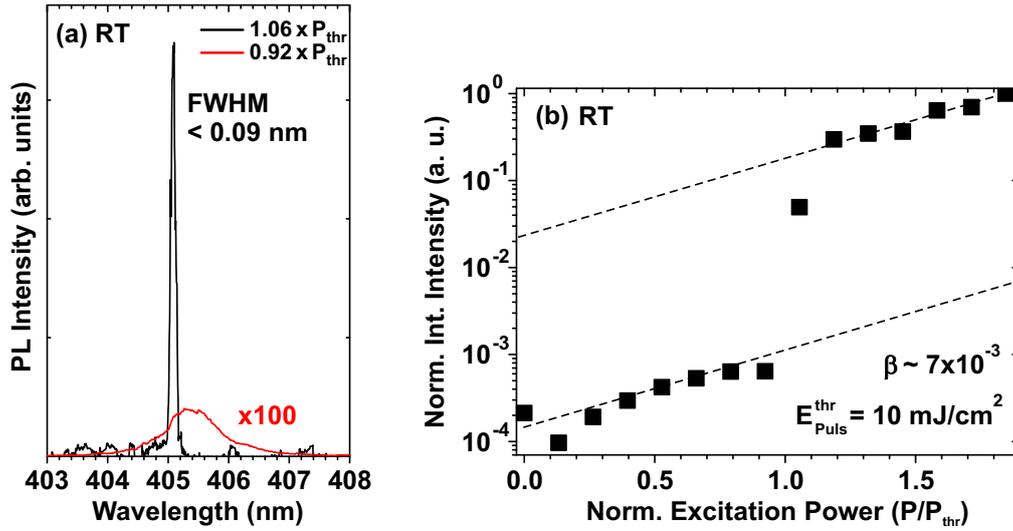
Örtlich gemittelt ergibt sich für diese Struktur eine positive Verstimmung zwischen der exzitonischen Lumineszenz des InGa<sub>0,136</sub>N-MQW und der Kavitätsmode (siehe Abb. 3.25). Das heißt, dass verglichen zur spektralen Position der Kavitätsmode das Intensitätsmaximum der In<sub>0,136</sub>Ga<sub>0,864</sub>N-MQW-Emission bei höheren Wellenlängen liegt. Als Ursache für den Intensitätsanstieg und der FWHM-Abnahme für größere  $\lambda_{\text{cavity}}$  könnte somit die örtliche Verringerung der spektralen Verstimmung, d.h. ein Hineinschieben der photonischen Mode in das Intensitätsmaximum der In<sub>0,136</sub>Ga<sub>0,864</sub>N-MQW-Lumineszenz, sein.

#### 3.4.4 Lasungsverhalten unter optischem Pumpen

In einem VCSEL erfolgt die Emission im Energieminimum der ungekoppelten Photonmode [159]. Damit ist ersichtlich, dass Lasingaktivität und ein geringer Schwellwert bei einer nahezu verschwindenden Verstimmung zwischen Exziton und Photon auftritt [160]. Gerade dann, wenn der spektrale Überlapp zwischen der Kavitätsmode und dem aktiven Medium maximal wird. Durch die örtliche Verschiebung der Kavitäts- und Exzitonmode lassen sich im Experiment die Verstimmung der Mikrokavität durch lokale Anregung variieren. Damit kann ein deutlich größerer spektraler Überlapp der In<sub>0,136</sub>Ga<sub>0,864</sub>N-MQW-Emission und der Photonmode realisiert werden.

Das Lasungsverhalten wurde durch optisches Pumpen mit Hilfe eines frequenzverdoppelten Ti:Sa-Lasers bei 360 nm Anregungswellenlänge, einer Wiederholrate von 82 MHz und einer Pulsweite von 1,6 ns verifiziert. Das optische Pumpen der hybriden Mikrokavität erfolgte bei Raumtemperatur<sup>6</sup>. Ein deutlicher Schwellwert wird bei einer Pulsenergie von 80 pJ beobachtet, was einer Pulsenergiedichte von 10 mJ/cm<sup>2</sup> oder einer Leistungsdichte von 6,3 MW/cm<sup>2</sup> entspricht. In Abb. 3.27 (a) sind Spektren knapp unterhalb und oberhalb des Schwellwertes dargestellt. Oberhalb des Schwellwertes ist die Lumineszenzintensität stark erhöht und die spektrale Linienbreite wird von 0,92 nm auf 0,09 nm reduziert. In Abb. 3.27 (b) ist die normierte integrale PL-Intensität als Funktion der Anregungsleis-

<sup>6</sup>Die PL-Experimente wurden in der Arbeitsgruppe um Herrn Prof. Axel Hoffmann an der TU Berlin von Herrn Dr. Alexander Franke durchgeführt und die Ergebnisse zur Verfügung gestellt.



**Abbildung 3.27:** Lasingverhalten der hybriden Mikrokapazität unter optischer Anregung bei Raumtemperatur: (a) Spektren knapp unter- und oberhalb der Laserschwelle, (b) normierte integrale PL-Intensität der Kapazitätsemission als Funktion der normierten Anregungsleistung.

tung dargestellt. Aus dem funktionellen Verlauf lässt sich der spontane Emissionsfaktor  $\beta_{sp}$  bestimmen.  $\beta_{sp}$  ist das Verhältnis aus der in die Lasermode gekoppelten Emission zur gesamten spontanen Emission. Dieser Parameter beschreibt die Güte der Effizienz eines Laserbauelements mit geringem aktiven Volumen. Damit sind spontane Emissionsfaktoren nahe dem Wert eins für Laser wünschenswert. Der Anteil des Lichtes, das in die Kavitätsmode gekoppelt wird, wird durch Anpassung der emittierten Gesamtintensität als Funktion der Anregungsleistung mit Hilfe der Relation [161]

$$I \propto P/P_{thr} - 1 + \sqrt{(P/P_{thr} - 1)^2 + 4\beta_{sp}P/P_{thr}} \quad (3.17)$$

$P/P_{thr}$  – normierte Anregungsleistung  
 $\beta_{sp}$  – spontaner Emissionsfaktor

erhalten. Aus den experimentellen Daten lässt sich mittels Gl. 3.17 ein Kopplungsfaktor von  $7 \cdot 10^{-3}$  extrahieren.

### 3.5 Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurden die strukturellen und optischen Eigenschaften von InGaN/GaN-QWs für die Verwendung als aktives Medium in nitridbasierten Mikrokavitäten beleuchtet. Dabei wurden ausschließlich InGaN-Quantenfilme mit einer nominellen bzw. mittleren Indiumkonzentration von 11 % bis 14 % analysiert.

Als Ausgangspunkt wurde ein einzelner InGaN-QW auf einem GaN/Saphir-Template vorgestellt. Der Einfluss von Versetzungen auf die Emissionseigenschaften stand im Mittelpunkt der Betrachtungen. Mit Hilfe der hochauflösenden STEM-CL-Spektroskopie konnte eine asymmetrische Veränderung der Emissionseigenschaften des SQWs in Versetzungsnähe beobachtet werden. Konkret wurde eine spektrale Verschiebung von mehr als 60 meV zu höheren Emissionsenergien der SQW-Lumineszenz in Richtung der Versetzung beobachtet. Durch die theoretischen Betrachtungen des Verzerrungsfeldes und deren Auswirkungen auf die elektronischen Eigenschaften des SQWs konnte die verspannungsinduzierte Peakverschiebung als alleinige Ursache der spektralen Veränderung ausgeschlossen werden. Scharfe Emissionslinien in Versetzungsnähe deuten auf starke Ladungsträgerlokalisierung im SQW hin, die zusätzlich zum Verzerrungsfeld der Versetzung für die spektrale Verschiebung an Versetzung ursächlich sein kann.

Für die Abbildung der realen Eigenschaften des aktiven Mediums ist die Charakterisierung von in Mikrokavitäten eingebetteten und auf epitaktischen DBRs gewachsenen InGaN-QWs von Nöten. Integriert in einer  $3\lambda$ -GaN-Mikrokavität wurden die optischen und strukturellen Eigenschaften eines 62-fachen  $\text{In}_{0,14}\text{Ga}_{0,86}\text{N}/\text{GaN}$ -MQWs auf  $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}/\text{GaN}$ -DBR mit Hilfe der nanometerauflösenden CL-Spektroskopie im STEM analysiert. Es konnte gezeigt werden, dass das Phänomen der plastischen Verspannungsrelaxation für InGaN/GaN-MQW-Strukturen bei der Einbettung einer großen Anzahl an Quantenfilmen ein neuralgischer Aspekt ist. Im Speziellen konnte ein abrupter Wechsel der  $\text{In}_{0,14}\text{Ga}_{0,86}\text{N}$ -MQW-Peakwellenlänge an der Position des 32. und des 55.  $\text{In}_{0,14}\text{Ga}_{0,86}\text{N}$ -QWs beobachtet werden, aus dem sich eine partielle plastische Relaxation an diesen Positionen schlussfolgern lässt.

Zur Vermeidung der plastischen Relaxation von violett emittierenden InGaN/GaN-MQWs auf  $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}/\text{GaN}$ -DBRs kann eine Verminderung der Anzahl an Quantenfilmen dienen. Dies wurde anhand eines 29-fachen  $\text{In}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{N}/\text{GaN}$ -MQWs überprüft. Das pseudomorphe Wachstum dieses MQWs äußerte sich in einer konstanten Entwicklung des Peak Schwerpunkts in Wachstumsrichtung. Durch die lokale Anregung einzelner Quantenfilme mit Hilfe des stark fokussierten Elektronstrahls konnte die Emission einzelner scharfer und sich überlagernder Lumineszenzlinien beobachtet werden. Diese Emissionslinien offenbaren Halbwertsbreiten von bis zu 4,8 meV und deuten auf die im InGaN-Materialsystem starken Ladungsträgerlokalisierungen hin. Derartig scharfe Emissionslinien konnten in CL-Experimenten erstmalig berichtet werden.

### 3 Nitridische MCs mit InGaN-QWs als aktives Medium

Die erfolgreiche Realisierung eines optisch gepumpten VCSELs auf Basis eines AlInN/GaN-DBRs mit 13 In<sub>0,136</sub>Ga<sub>0,864</sub>N/GaN-QWs als aktives Medium in einer  $\lambda$ -GaN-Kavität wurde vorgestellt. An dieser Struktur wurden sowohl die exzitonische als auch photonische Unordnung quantifiziert. Die lateralen Inhomogenitäten der In<sub>0,136</sub>Ga<sub>0,864</sub>N-MQW-Emission sind auf Schwankungen von 28 meV beschränkt, wohingegen die lokale Halbwertsbreite diesen Wert um mehr als das doppelte übersteigt. Damit dominiert die lokale auf (Sub-)Nanometerskala vorherrschende inhomogene Verbreiterung die Halbwertsbreite der In<sub>0,136</sub>Ga<sub>0,864</sub>N-MQW-Emission. Die örtliche Variation der Kavitätsmode äußert sich als kontinuierliche spektrale Verschiebung von bis zu 0,4 nm/ $\mu$ m. Aus winkelabhängigen PL-Experimenten konnte eine ortsgemittelte positive Verstimmung der exzitonschen zur photonischen Mode von 47 meV bestimmt werden. Durch die lateralen Unordnungen der Kavitäts- und Exzitonenmode lässt sich durch lokale Anregung die Verstimmung verringern. Dies äußert sich in einem Anstieg der emittierten Intensität und Abnahme der Halbwertsbreite. Der Nachweis des Lasingverhaltens der positiv verstimmten hybriden Mikrokavität ab einem Schwellwert von 10 mJ/cm<sup>2</sup> erfolgte durch lokales optisches Pumpen bei Raumtemperatur. Der spontane Emissionsfaktor konnte zu  $7 \cdot 10^{-3}$  bestimmt werden.

# GaN-Einzelphotonenemitter



## 4 Quantenpunktemission von GaN-Inseln an Versetzungen

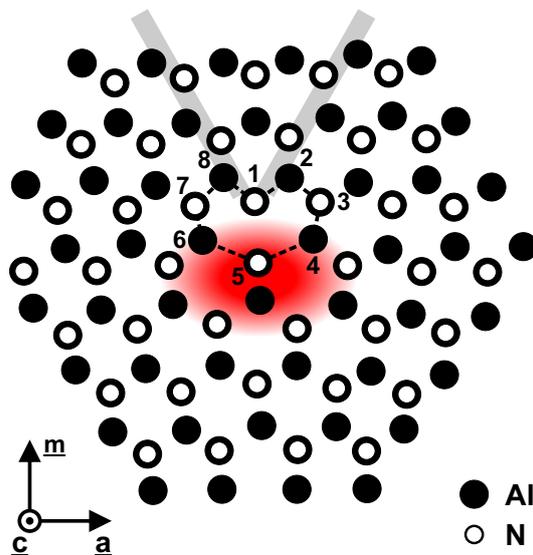
Die kontrollierte Generation von nichtklassischen Zuständen des Lichts ist von fundamentalem Interesse in der Quantenoptik und eine technologische Herausforderung in der Quanteninformationsverarbeitung [162, 163, 164]. Halbleiterquantenpunkte (QDs) sind bedeutende Kandidaten zur Realisierung von miniaturisierten Einzelphotonen-emittierenden Bauelementen [165, 166] aufgrund ihrer atomartigen Energiestruktur [167, 168] und Möglichkeit zum gezielt elektrisch angesteuerten Betrieb [169, 170, 171, 172]. Im Speziellen sind GaN/AlN QDs vielversprechende Raumtemperatur-Einzelphotonenemitter [69, 67, 173, 174] aufgrund hoher Exzitonenbindungsenergien und genügend starkem Ladungsträgeranschluss durch den enormen Leitungs- und Valenzbandversatz zwischen GaN und AlN [175, 127]. Zur Verwirklichung von kontrollierten Einzelphotonenemittern auf Basis von Halbleiterquantenpunkten sind zwei Hauptaspekte zu berücksichtigen. Zum einen ist die örtlich separierte Ansteuerung von einzelnen QDs nötig, weshalb QDs in geringer Dichte von Vorteil sind. Zum anderen muss die spektrale Separation der Exzitonen- und Biexzitonenlinien größer sein als deren spektrale Verbreiterung, so dass einzelne Rekombinationskanäle spektral isoliert werden können.

In diesem Kapitel werden die Lumineszenzeigenschaften von einzelnen selbstorganisierten GaN/AlN-Quantenpunktheterostrukturen vorgestellt und mit ihrer Realstruktur korreliert. Mittels STEM-CL-Mikroskopie wird intensive, schmalbandige Quantenpunktemission von in AlN eingebetteten GaN-Inseln direkt nachgewiesen. Linienbreiten von bis zu 440  $\mu\text{eV}$  konnten in einem Wellenlängenbereich zwischen 220 nm und 310 nm gemessen werden und bestätigen die quantenpunktartige elektronische Struktur innerhalb der GaN-Inseln. Einige der in diesem Kapitel dargestellten Ergebnisse sind bereits in folgenden Veröffentlichungen erschienen [176, 177].

## 4.1 Einfluss von Versetzungen auf die Quantenpunktbildung

Gruppe III-Nitrid-basierte heteroepitaktisch gewachsene Schichten beinhalten eine hohe Anzahl an Versetzungen. In Gruppe III-Nitrid-Volumenmaterial agieren TDs als nicht-strahlende Rekombinationszentren für die generierten Überschussladungsträger [178, 179, 180, 181] und reduzieren somit die Quanteneffizienz von lichtemittierenden Bauelementen. In Abbildung 4.1 ist die schematische Darstellung einer AlN-Stufenversetzung mit einem Burgersvektor von  $1/3 \langle 1\bar{2}10 \rangle$  in c-Projektion dargestellt, die durch das Einschleiben zweier  $\{1\bar{1}00\}$ -Ebenen entsteht und einen achtatomigen Versetzungskern bildet. TDs liefern durch die lokale Verzerrung des Kristallgitters Bereiche tensiler Verspannung (siehe roter Bereich in Abb. 4.1).

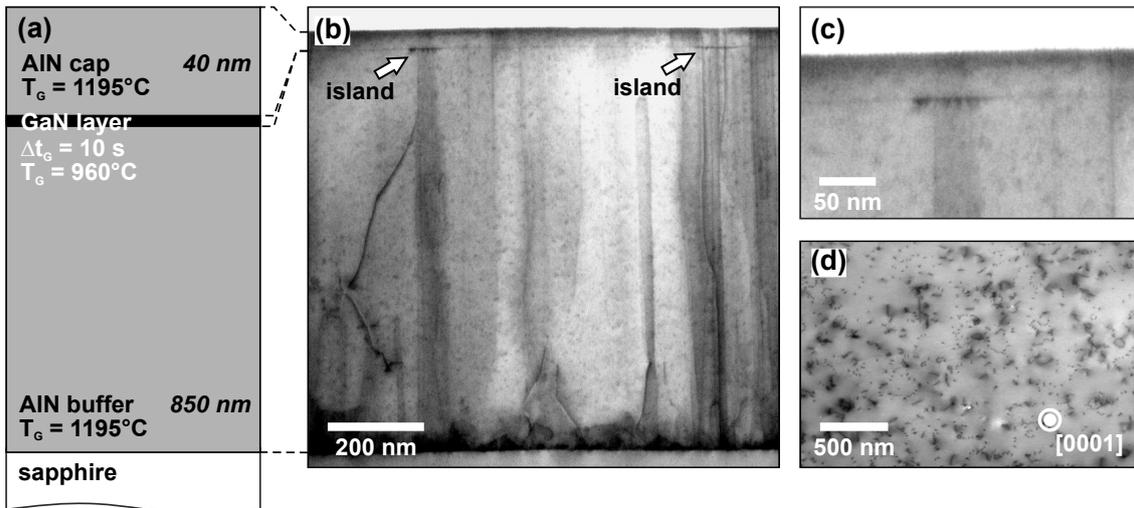
Wie von Rouvière *et al.* [182] an AlN-Stufenversetzungen beobachtet, neigen GaN QDs zur Nukleation an TDs. Die mit dem tensilen AlN-Verspannungsbereich verbundene lokal reduzierte Gitterfehlpassung kann dabei eine GaN-QD-Nukleation begünstigen. Trotz der Existenz angrenzender Versetzungen beobachteten Rouvière *et al.* [182] Emission des QD-Ensembles bei 2,95 eV in ortsintegralen Photolumineszenzexperimenten.



**Abbildung 4.1:** Schematische Darstellung der atomaren Struktur einer Stufenversetzung in AlN in c-Projektion, die durch eingeschobene  $\{1\bar{1}00\}$ -Ebenen (grau markiert) gebildet wird und einen Versetzungskern mit acht Atomen aufzeigt (gestrichelte Linie und Nummerierung), offenbart ein Gebiet größerer Gitterkonstante (roter Bereich). Nach [183].

## 4.2 Nanoskopische Analyse der Lumineszenzverteilung

Die GaN-Inseln resultieren aus dem MOVPE-Wachstum einer GaN-Schicht mit einem V/III-Verhältnis von 30 auf einem 2" c-planarem AlN/Saphir Template. Nach der Deposition von ein bis zwei Monolagen (ML) GaN bei 960°C wurde das Wachstum für 30 s ohne Ammoniakzufuhr unterbrochen, um die Bildung von GaN-QDs zu begünstigen. Nachfolgend wurde die gesamte Struktur mit einer AlN-Schicht bei 1195°C überwachsen. Eine schematische Darstellung des Probenaufbaus ist in Abbildung 4.2 (a) zu sehen. Die dort

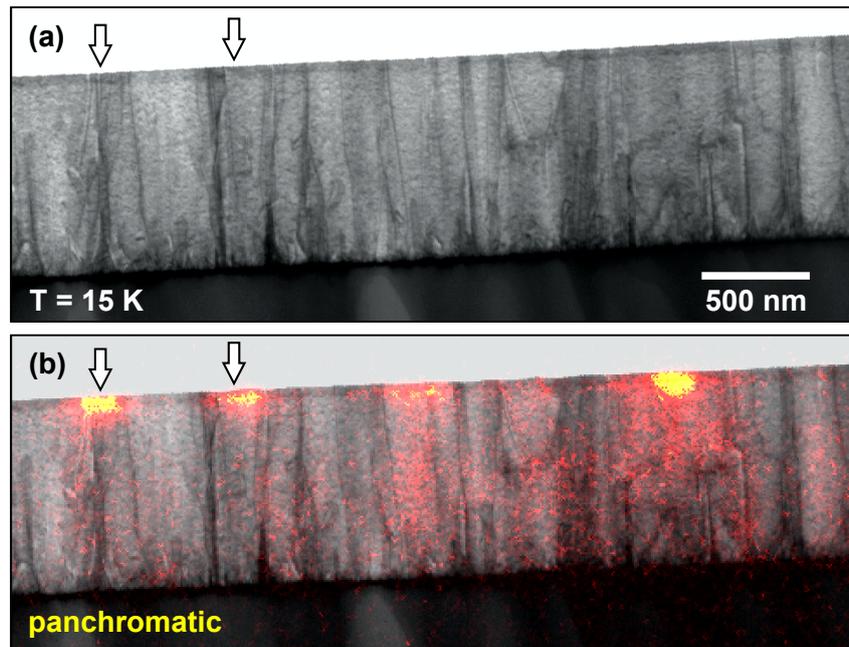


**Abbildung 4.2:** (a) schematische Zeichnung des Gesamtprobenaufbaus der GaN/AlN-Heterostruktur, STEM-Hellfeldabbildungen im Querschnitt von der (b) Gesamtstruktur und (c) an AlN-Versetzungen gebildeten GaN-Inseln, (d) BF-Bild der Probenoberfläche zeigt Versetzungen bzw. deren Durchstoßpunkte [176].

eingetragenen Schichtdicken wurden aus TEM-Messungen bestimmt.

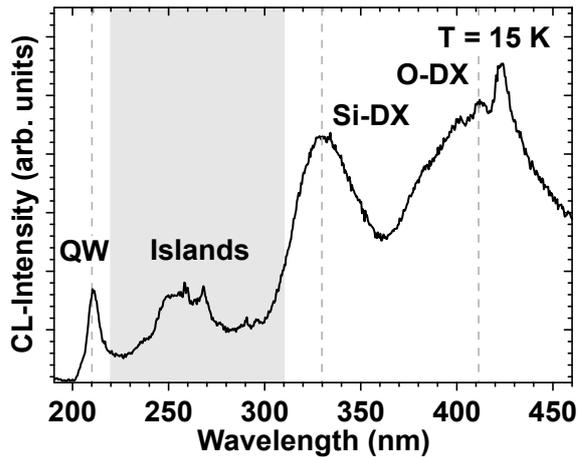
Das BF-Querschnittsbild der gesamten Struktur ist in Abbildung 4.2 (b) dargestellt und zeigt im unteren Bereich das Saphirsubstrat mit der sich anschließenden 850 nm dicken AlN-Pufferschicht. Versetzungen, die im STEM-Bild als dunkle Linien auftreten, werden an der Saphir/AlN-Grenzfläche generiert und verlaufen durch die gesamte Schicht bis hin zur Oberfläche. Aus STEM-Untersuchungen in Aufsicht auf die Probenoberfläche wurde anhand des Auszählens der TD-Kontraste eine Versetzungsdichte von  $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  bestimmt (siehe auch Abb. 4.2 (d)). Auf der AlN-Pufferschicht hat sich eine ununterbrochene GaN-QW-Schicht gebildet, die aufgrund des Materialkontrastes ein geringeres BF-Signal zeigt. Ferner tritt eine lokal erhöhte GaN-Schichtdicke vorrangig in unmittelbarer Nähe zu Versetzungen auf. Die lokale Schichtdickenerhöhung geht mit der Bildung von GaN-Inseln (siehe Pfeilmarkierung in Abb. 4.2 (b)) einher. Die GaN-Inseln weisen laterale Ausdehnungen von bis zu 100 nm auf. In Abbildung 4.2 (c) ist hierzu eine vergrößerte Darstellung einer GaN-Insel zu sehen. Dennoch existieren Versetzungen, in deren unmittelbarer Nähe keine Schichtdickenerhöhung zu erkennen ist.

In Abbildung 4.3 (a) ist das bei Tieftemperatur (15 K) aufgezeichnete STEM (BF)-Bild der Gesamtstruktur zu erkennen. Neben den AlN-Versetzungen sind auch die ununterbrochene GaN-Schicht und GaN-Inseln zu erkennen. Zwei der in diesem Bild auftretenden Inseln wurden mit Pfeilen markiert. Die panchromatische CL-Intensität wurde simultan zur Detektion des STEM-Signals bei 15 K aufgezeichnet. Das panchromatische CLI (orange-farbig) wurde mit dem BF-Bild (Grauwertskala) in Abbildung 4.3 (b) überlagert, wobei die



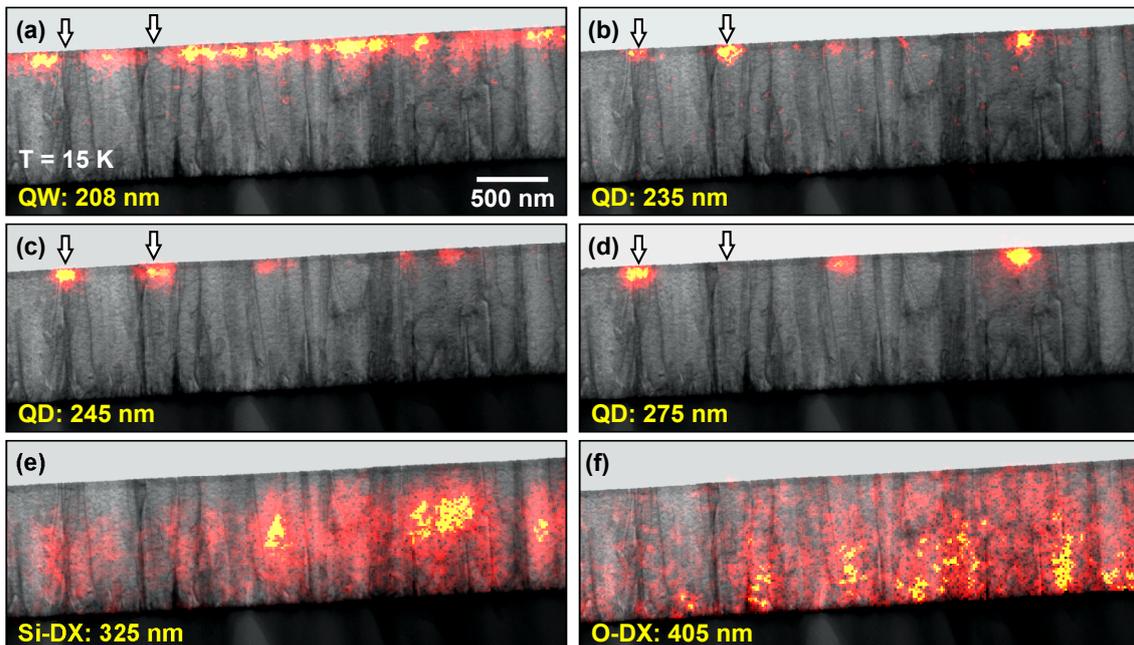
**Abbildung 4.3:** (a) STEM (BF)-Bild der GaN/AlN-Heterostruktur und (b) panchromatisches CL-Intensitätsbild ( $T=15$  K) in orangefarbigem Kontrast überlagert mit dem BF-Bild weist intensive Emission in Bereichen hoher Versetzungsdichte auf [176].

Intensität linear abgetragen wurde. Die höchste Intensität tritt in der GaN-Schicht in den Regionen hoher Versetzungsdichte auf, exakt dort, wo sich die GaN-Inseln gebildet haben. Sowohl vom restlichen GaN-QW als auch von der AlN-Pufferschicht wird nur sehr geringe Intensität detektiert. Das in Abbildung 4.4 gezeigte ortsintegrale Spektrum vom dargestellten Bereich (siehe Abb. 4.3 (a,b)) zeigt vier unterschiedliche Emissionsbeiträge. Der Lumineszenzpeak bei 210 nm mit einer Halbwertsbreite von 7,8 nm ( $\Delta E = 220$  meV) wird der Emission der GaN-QW-Schicht zugeordnet. Die Peakenergie der QW-Schicht übersteigt die berechnete Übergangsenergie eines 1 ML dicken GaN/AlN-Quantenfilms. Der unwillkürliche Einbau von Aluminium in die nominell gewachsene GaN-Schicht würde die fundamentale Bandlücke wie auch die QW-Übergangsenergie zu höheren Energien verschieben. Die Emissionsbanden des Si- [184, 185, 186, 187] als auch O-DX-Zentrums [188, 184, 189] in AlN werden bei 330 nm bzw. 412 nm beobachtet. Am auffallendsten ist die Emission in einem Spektralbereich von 220 nm bis 310 nm, die aus mehreren individuellen Peaks besteht. Diese Emission wird der intensiven Lumineszenz der GaN-Inseln (siehe Abb. 4.3 (b)) zugeordnet, welche nun im Detail diskutiert wird.



**Abbildung 4.4:** Ortsintegriertes CL-Spektrum bei 15 K aus den in 4.3 (a,b) dargestellten Bereich zeigt Lumineszenzbeiträge bei 210 nm (QW), 330 nm (Si-DX), 412 nm (O-DX) und die Emission der GaN-Inseln zwischen 220 nm und 310 nm [176].

Zur Identifikation und Visualisierung der lokalen mikroskopischen Ursache dieser Rekombinationskanäle wurden Serien von spektral selektierten CL-Intensitätsbildern aufgezeichnet. In Abbildung 4.5 sind diese monochromatischen CLIs (orangefarbig) mit einem spektralen Fenster von 10 nm aus dem in Abb. 4.3 (a, b) gezeigten Bereich dargestellt und den BF-Bildern (Grauwertskala) überlagert. Die Lumineszenz bei 325 nm und 405 nm (Abb. 4.5 (e) und 4.5 (f)) weist im AlN-Puffer eine flächige Intensitätsverteilung auf und wird der



**Abbildung 4.5:** Monochromatische STEM-CL-Intensitätsbilder bei 15 K an den spektralen Positionen der Emission (a) des GaN-QW, (b – d) der GaN-Inseln und (e – f) der AlN-DX-Zentren in orangefarbigem Kontrast überlagert mit den simultan aufgezeichneten BF-Bildern [176].

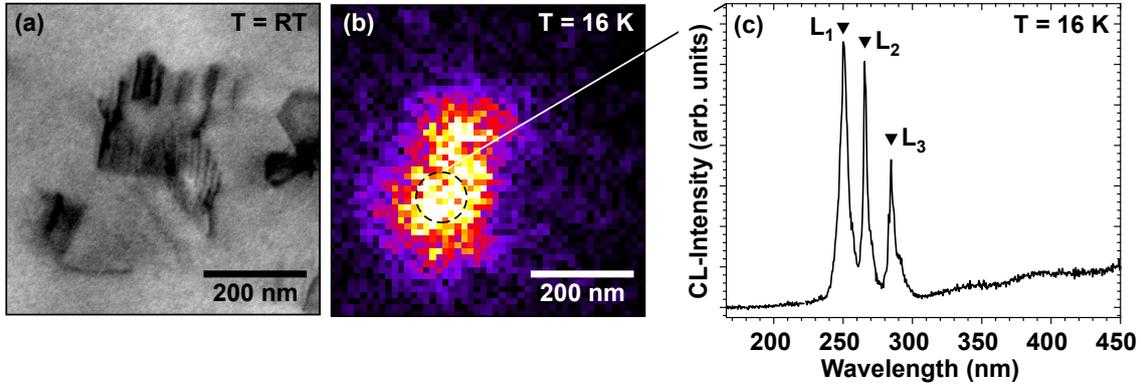
Emission des Si- [190, 191] bzw. O-DX-Zentrums [190] zugeordnet. In völligem Gegensatz dazu erscheint sowohl die Emission bei 208 nm als auch das Emissionsband von 235 nm bis 275 nm (siehe Abb. 4.5 (a-d)) ausschließlich an der Position der GaN-Schicht und wird dem GaN-QW bzw. den GaN-Inseln zugeordnet. Komplementär zum CL-Intensitätsbild des QWs in Abb. 4.3 (a) zeigt die Lumineszenz der GaN-Inseln in Abb. 4.5 (b-d) die intensivste Emission in den Regionen hoher Versetzungsdichte, wobei die QW-Intensität an den Positionen der GaN-Inseln abnimmt. Die Positionen zweier GaN-Inseln in der Nähe von Versetzungen wurden mit Pfeilen markiert und stimmen mit den Positionen in Abb. 4.3 (a, b) überein. Die monochromatischen CLIs sowohl bei 235 nm und 245 nm als auch bei 275 nm visualisieren direkt die lokale, fleckige Intensitätsverteilung von den an TDs befindlichen Inseln.

### 4.3 STEM-CL-Spektroskopie an einzelnen GaN-Inseln

Für die Analyse der spektralen Charakteristik individueller Quantenpunkte ist die Einzel-QD-Spektroskopie in  $\mu$ PL-Experimenten weitverbreitet. Bei hohen Quantenpunktdichten muss hierzu die Probe maskiert und/oder Mesen freigeätzt werden, damit eine geringe Anzahl an Quantenpunkten örtlich angeregt wird. Dabei ist der Zugang zu Intensitätsverteilungen nur innerhalb der Auflösungsgrenze im sub- $\mu$ m-Bereich möglich. Durch die Auflösungsgrenze in der STEM-CL-Mikroskopie lassen sich selbst bei hohen QD-Dichten einzelne Quantenpunkte adressieren und deren Intensitätsverteilung analysieren. Nichtsdestotrotz ist auch hier eine Präparation der Probe nötig. Wie in diesem Abschnitt gezeigt wird, lassen sich selbst stark benachbarte Quantenemitter örtlich separieren und deren strukturelle Eigenschaften simultan erfassen. Damit können neue Informationen über die Realstruktur von Quantenpunkten und deren Emission in der STEM-CL-Mikroskopie erschlossen werden, die durch  $\mu$ PL-Experimente nicht zugänglich sind. Jedoch sei darauf hingewiesen, dass Kathodolumineszenzexperimente  $\mu$ PL-Techniken nicht ersetzen können.

Für die Untersuchung der Emission individueller GaN-Inseln wurden Experimente in Draufsicht auf die Probenoberfläche durchgeführt. In Abb. 4.6 (a) ist das STEM-Hellfeldbild in Aufsicht aus einem Gebiet hoher Versetzungsdichte zu erkennen. Die Versetzungen erscheinen als schwarze Linien. Bereiche unterschiedlicher GaN-Schichtdicke sind aufgrund des geringen Massendickekontrastes nicht zu erkennen. Eine direkte strukturelle Identifikation der GaN-Inseln bleibt somit bei dieser Experimentieranordnung aus. An exakt derselben Position zeigt die panchromatische Intensitätsverteilung bei 16 K (siehe Abb. 4.6 (b)) die höchste Lumineszenzausbeute im Bereich der Versetzungen. Die lokale Elektronenstrahlanregung liefert in der spektralen Charakteristik (siehe Abb. 4.6 (c)) drei scharfe Hauptlinien  $L_{1,2,3}$  im Emissionsbereich der GaN-Inseln. Die Peakmaxima befinden sich bei  $L_1 = 250,3$  nm (4,951 eV),  $L_2 = 265,5$  nm (4,668 eV) und  $L_3 = 284,6$  nm (4,355 eV). Der

Ursprung dieser scharfen Lumineszenzbeiträge kann somit den GaN-Inseln zugeordnet werden. Jede Hauptemission zeigt eine Feinstruktur, die insbesondere auf den niederenergetischen Peakflanken einer jeden Linie eine Überlagerung mit weiteren Lumineszenzbeiträgen offenbart.

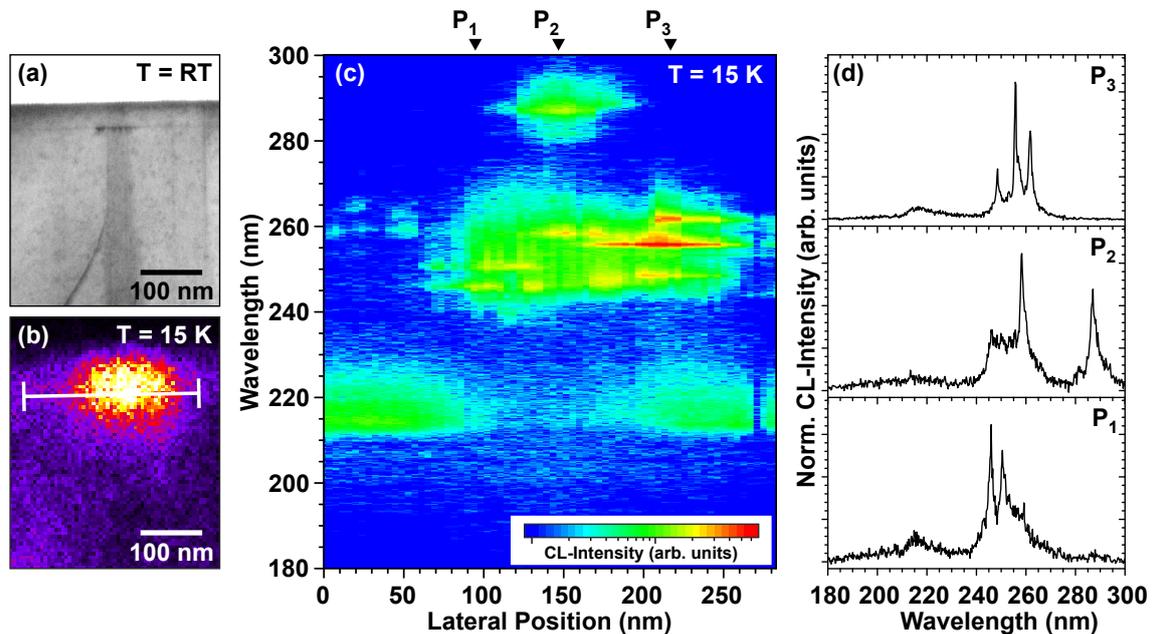


**Abbildung 4.6:** (a) STEM (BF)-Abbildung in Region hoher Versetzungsdichte mit hoher Intensität im (b) panchromatischen CLI nahe der TDs. (c) lokales Spektrum aus markiertem Bereich zeigt drei scharfe Hauptemissionen  $L_1 = 250,3$  nm,  $L_2 = 265,5$  nm und  $L_3 = 284,6$  nm [177].

Aufgrund der geringen Halbwertsbreite dieser Rekombinationsbeiträge liegt der Verdacht von Quantenpunktemission nahe und wird später in diesem Kapitel bestätigt. Im Allgemeinen kann ein einzelner Quantenpunkt verschiedenste Rekombinationskanäle aufzeigen. Einerseits wird in der Literatur über eine starke Wechselwirkung von QD-Exzitonen mit Phononen berichtet. Diese führt zu longitudinal optischen Phononenrepliken mit einem spektralen Abstand zwischen 90 meV und 110 meV [192, 193] sowie zur Ausbildung von Seitenbanden nahe der niederenergetischen Flanke der exzitonischen Rekombination aufgrund der Kopplung mit akustischen Phononen [65]. Weiterhin werden für GaN-QDs multiexzitonische Rekombinationsprozesse beobachtet [192]. Im Speziellen ist die biexzitonische Emission um die Biexzitonienbindungsenergie von der Lumineszenz der Exzitonen separiert [194, 62, 195, 196, 197, 64, 198, 174]. Die von Choi *et al.* bisher höchste gemessene Biexzitonienbindungsenergie in GaN-QDs beträgt 52 meV [64]. Die hier gewonnenen Daten zeigen einen bedeutend größeren energetischen Abstand der Hauptpeaks  $L_1$ ,  $L_2$  und  $L_3$  ( $\Delta L_{1-2} = 238$  meV bzw.  $\Delta L_{2-3} = 313$  meV) als die LO-Phononenenergie und Biexzitonienbindungsenergie. Daher ist eine Biexziton-Exziton- oder phononenassistierte Beziehung zwischen  $L_1$ ,  $L_2$  und  $L_3$  unwahrscheinlich.

Die Ursache für die Existenz mehrerer Rekombinationskanäle bei Anregung einzelner GaN-Inseln soll anhand der Abb. 4.7 diskutiert werden. Entlang der GaN-Schicht wurde eine einzelne, in Versetzungsnähe gebildete GaN-Insel (siehe Abb. 4.7 (a)) unter Elektronenanregung abgerastert. Die höchste panchromatische Intensität ist wiederum im Bereich

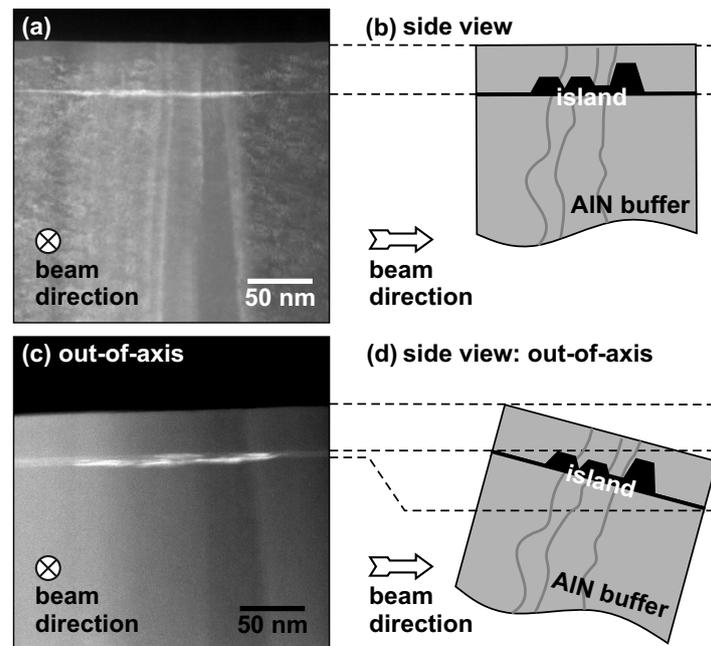
der GaN-Insel vorzufinden (siehe Abb. 4.7 (b)). Bei der lateralen Position  $x = 0$  nm beginnend, beobachtet man eine intensive Emission vom GaN-QW bis zur Position  $x = 70$  nm im Linienscan (siehe Abb. 4.7 (c)). Exakt an der Position, wo die QW-Intensität abfällt, erscheinen mehrere sich überlagernde scharfe Linien im spektralen Bereich des Emissionsbandes 240-300 nm. Es ist äußerst auffällig, dass die Emissionslinien lediglich in Teilbereichen der GaN-Insel auftreten. Dies ist mit der Existenz von räumlich getrennten unterschiedlichen Zuständen in der GaN-Insel gleichzusetzen. Abb. 4.7 (c) zeigt aus dem Linienscan extrahierte lokale Spektren, welche verschiedenartige Emissionslinien an den Linienscanpositionen  $P_{1,2,3}$  aufweisen. Demzufolge existieren örtlich und energetisch unterschiedliche QD-Zustände innerhalb der GaN-Inseln.



**Abbildung 4.7:** STEM-CL-Untersuchung an einer einzelnen GaN-Insel im Querschnitt: (a) BF-Aufnahme der an Versetzungen gebildeten Insel mit zugehörigem (b) panchromatischem CLI, (c) parallel zur GaN-Schicht verlaufender Linienscan (Position des Linienscans als weiße Linie in (b) markiert), (d) lokale Spektren an Linienscan-Positionen  $P_{1,2,3}$  [177].

Zur Untersuchung der Ursache räumlich separierter Emissionslinien wurde eine STEM-Kippserie durchgeführt. In Abb. 4.8 (a) ist das STEM (HAADF)-Bild einer einzelnen am Versetzungsbündel gebildeten GaN-Insel zu sehen. Die abgebildete Fläche ist senkrecht zur Basalebene, sodass der Primärelektronenstrahl parallel zur GaN-Schicht verläuft (siehe Abb. 4.8 (b)). Durch die Projektion entlang der Elektroneneinstrahlrichtung kann eine Interpretation von (S)TEM-Bildern uneindeutig sein. Objekte in unterschiedlicher TEM-Folientiefe aber gleicher Bildposition überlappen sich und sind daher oftmals schwierig zu differenzieren. Die Abb. 4.8 (c) zeigt die gleiche GaN-Insel wie in Abb. 4.8 (a), wobei

nun die Probe leicht aus der Zonenachse gekippt wurde. Damit wird der GaN-QW als breiter Streifen sichtbar. Im Bereich der GaN-Insel hingegen erkennt man helle Flecken im HAADF-Kontrast. Aufgrund des Massendickekontrastes können die hellen Flecken als lokal variierende Schichtdicke der GaN-Inseln identifiziert werden. Dies wird durch die schematische Darstellung in Abb. 4.8 (d) illustriert. Damit führen die direkt verifizierten Schichtdickenfluktuationen innerhalb der GaN-Insel zu dreidimensionaler Ladungsträgerlokalisierung.



**Abbildung 4.8:** HAADF-Bilder einer einzelnen GaN-Insel bei unterschiedlichen Kippwinkeln: (a) Einstrahlrichtung des Primärstrahls parallel zur GaN-Schicht und (c) bei leicht gekippter Probe. Die STEM-Kippserie zeigt unterschiedlichen Massendickekontrast innerhalb der GaN-Insel. (b, d) Schematische Darstellung der Experimentieranordnung in (a, c) mit angedeuteten Schichtdickenfluktuationen innerhalb der GaN-Insel [177].

Mit sich ändernder Schichtdicke von Quantenheterostrukturen verändert sich die Lage der Energieniveaus und damit die spektrale Lage der Emissionslinien. Die in Abb. 4.8 (a, b) gezeigten Schichtdickenveränderungen innerhalb der GaN-Inseln sind eine wahrscheinliche Ursache der im Linienscan (siehe Abb. 4.7 (c)) beobachteten örtlich variierenden Peakpositionen. Darüber hinaus kann davon ausgegangen werden, dass im Bereich hoher Versetzungsdichte, wie es für die GaN-Inseln der Fall ist, ein komplexes ortsabhängiges Spannungsfeld existiert. Damit werden neben der spannungsabhängigen Bandlücken der Halbleitermaterialien auch die piezoelektrischen Felder stark beeinflusst. Beide Effekte haben starke Auswirkungen auf die Lage der Subniveaus der GaN/AlN-Quantenstruktur.

Es stellt sich die Frage über die Natur der unterschiedlichen Emissionslinien an ein- und

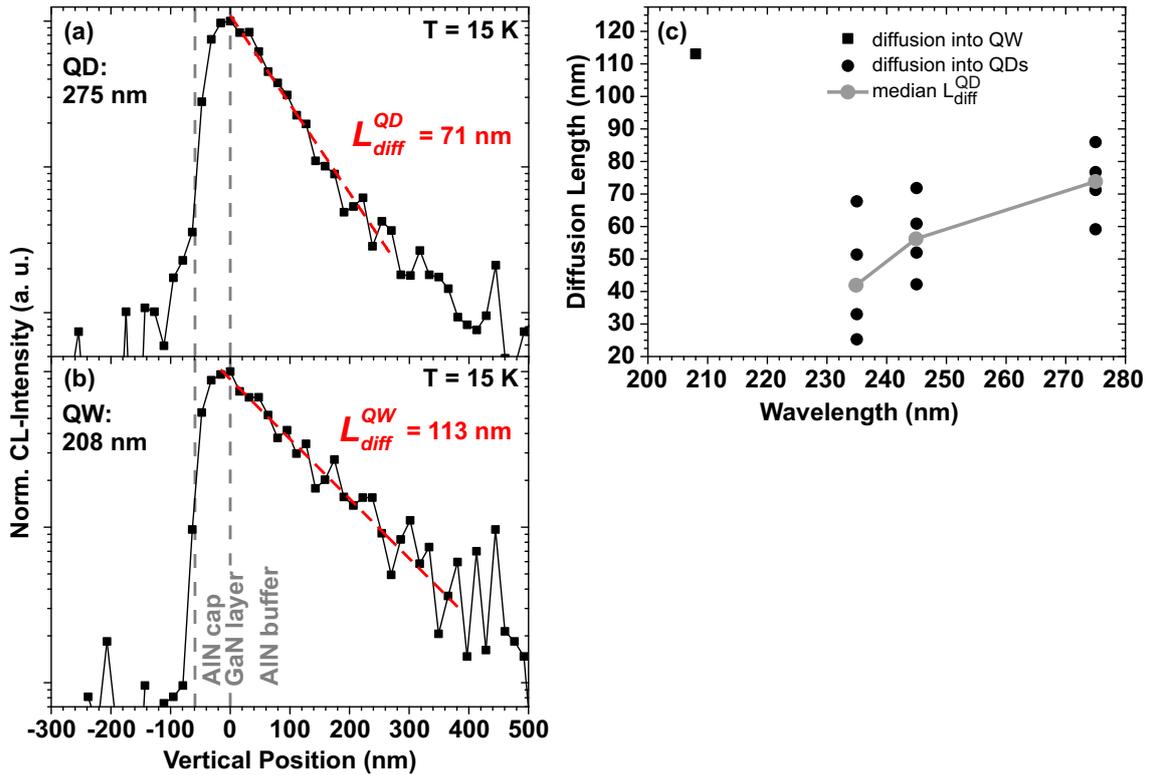
demselben Ort, wie es anhand der lokalen Spektren in Abb. 4.7 (d) zu sehen ist. Hier ist die Anregung von unterschiedlich dicken Inselbereichen in der TEM-Folientiefe eine mögliche Erklärung. Dennoch kann die Rekombination biexzitonischer oder multiexzitonischer Komplexe nicht ausgeschlossen werden. Die Identifizierung derartiger Rekombinationsprozesse lässt sich über anregungsdichteabhängige Lumineszenzexperimente bestimmen. Im STEM-CL-Experiment kann die Anregungsdichte über die Veränderung der Aperturblenden des Kondensorsystems und der *spot size* realisiert werden. Dennoch ist hierfür eine äußerst intensive und zeitlich stabile QD-Emission vorauszusetzen. Da diese zeitliche Stabilität nicht gegeben war und eine deutliche Elektronenstrahldegradation beobachtet werden konnte, waren anregungsdichteabhängige STEM-CL-Experimente nicht erfolgreich.

### 4.4 Vertikaler Ladungsträgertransport

Für die Entwicklung von Einzelphotonenquellen ist der Ladungsträgertransport von großer Bedeutung. In vertikaler Richtung sollen die Ladungsträger möglichst effizient vom Kontakt in die aktive Region gelangen. Mit der STEM-CL-Methode steht uns ein höchstauflösendes Lumineszenzmikroskopieverfahren zur Verfügung, um lokale Transporteigenschaften von freien Exzitonen auf nm-Skala zu untersuchen. Die Transporteigenschaften von freien Exzitonen sind aufgrund ihrer globalen Ladungsneutralität dabei nicht von elektrischen Feldern dominiert. Driftkomponenten können somit vernachlässigt werden.

Zur Untersuchung des vertikalen Ladungsträgertransports vom AlN-Puffer in die GaN-Schicht eignen sich monochromatische Intensitätsprofile. Dabei kann davon ausgegangen werden, dass Ladungsträger im AlN generiert werden und im Zuge des Konzentrationsgefälles diffundieren. Je nach Abstand des Generationsortes von der GaN-Schicht erreicht ein Bruchteil der Ladungsträger im Rahmen ihrer Diffusionslänge die GaN/AlN-Heterostruktur, wo die strahlende Rekombination an der spektralen Position des GaN-QW bzw. der GaN-Insel detektiert wird. Aus dem Anstieg der CL-Intensität in Richtung der GaN-Schicht kann so die Diffusionslänge ermittelt werden.

In Abb. 4.9 (a) ist der CL-Intensitätsverlauf der QD-Emission bei 275 nm parallel zur Wachstumsrichtung dargestellt. Die laterale Position  $x = 0$  nm markiert die Lage der GaN-Insel. Erwartungsgemäß ist bei  $x = 0$  nm die höchste CL-Intensität vorzufinden. In Richtung des AlN-Puffers nimmt die Intensität zwischen  $0 \text{ nm} < x < 500 \text{ nm}$  monoexponentiell über zwei Größenordnungen ab. Unter Annahme der örtlich konstanten Generation von Ladungsträgern und einem deltaförmigen Anregungsprofil kann nach Gl. 2.3 eine vertikale Diffusionslänge von 71 nm bestimmt werden. Diese charakteristische Transportlänge korrespondiert zur vertikalen Diffusion von im AlN generierten Ladungsträgern hin zur GaN-Insel. Im Fall der Quantenfilmemission bei 208 nm erhält man bei Anpassung des monoexponentiellen Intensitätsprofils eine Diffusionslänge von 113 nm (siehe Abb. 4.9 (b)).



**Abbildung 4.9:** Monochromatische STEM-CL-Intensitätsprofile bei (a) 275 nm (GaN-QD-Emission) und (b) 208 nm (GaN-QW-Emission) zeigen im AlN-Puffer monoexponentiellen Intensitätsabfall zwischen 0 nm und 500 nm. (c) Die ermittelten Ladungsträgerdiffusionslängen vom AlN-Puffer in die GaN-Inseln sind geringer als  $L_{diff}^{QW}$  in den GaN-QW.

Die Abbildung 4.9(c) zeigt die aus vertikalen Intensitätsprofilen bestimmten Diffusionslängen des GaN-QWs und mehrerer GaN-Inseln als Funktion der Emissionswellenlänge. Sämtliche aus QD-Intensitätsverläufen bestimmte Diffusionslängen sind geringer als  $L_{diff}^{QW}$ . Es zeigt sich ein tendentieller Anstieg von  $L_{diff}^{QD}$  mit zunehmender Emissionswellenlänge.

Verglichen zum vertikalen Ladungsträgertransport in den GaN-QW erfolgt die Diffusion zu den GaN-Inseln in einem Gebiet erhöhter Anzahl von Versetzungen. Mit dieser lokal erhöhten Versetzungsdichte besteht eine größere Wahrscheinlichkeit des Ladungsträgereinfangs an TDs, an denen eine nichtstrahlende Rekombination stattfindet. Die geringere vertikale Diffusionslänge vom AlN in die GaN-Inseln könnte also auf die lokal erhöhte Versetzungsdichte zurückgeführt werden. Es sei erwähnt, dass zwischen ambipolarer Diffusion und Minoritätsladungsträgerdiffusion durch diese Experimente nicht unterschieden werden kann, da hierfür die Detektion der exzitonen bzw. Band-Band-Rekombination des AlN-Puffers und die Kenntnis der Dotierung bzw. Anregungsdichte nötig wäre. Es sei erwähnt, dass diese Ergebnisse die ersten experimentellen Befunde zur Bestimmung der Diffusionslänge in AlN darstellen.

## 4.5 Linienbreiten der Quantenpunktemission

Die gesamte Linienbreite eines QD-Exzitons setzt sich aus der Verbreiterung  $\Gamma_{app}$  durch die Auflösungsgrenze des experimentellen Aufbaus, der homogenen  $\Gamma_{hom}$  und der inhomogenen Verbreiterung  $\Gamma_{inhom}$  wie folgt zusammen:

$$\Gamma_{exc}^2 = \Gamma_{app}^2 + \Gamma_{inhom}^2(T) + \Gamma_{hom}^2(T). \quad (4.1)$$

$\Gamma_{hom}$  beinhaltet Prozesse, bei denen Streuungen an freien Ladungsträgern [199], akustischen wie auch optischen Phononen [200, 201, 202] und Anregungen in höhere energetische Zustände stattfinden. Durch die genaue Linienformanalyse von GaN-QD-Emissionslinien wurde durch Demangeot *et al.* [203] die temperaturabhängige homogene Verbreiterung zu  $\Gamma_{hom}(T=4\text{ K}) < 150\text{ }\mu\text{eV}$  bestimmt. Dieses Ergebnis konnte für in Nanosäulen eingebettete GaN-QDs von Holmes *et al.* durch Fourier-Transform-Spektroskopie bestätigt werden [204]. Die inhomogene Verbreiterung schließt unter anderem die spektrale Diffusion ein, die bei tiefen Temperaturen die Linienbreite von nitridischen QDs dominiert [205].

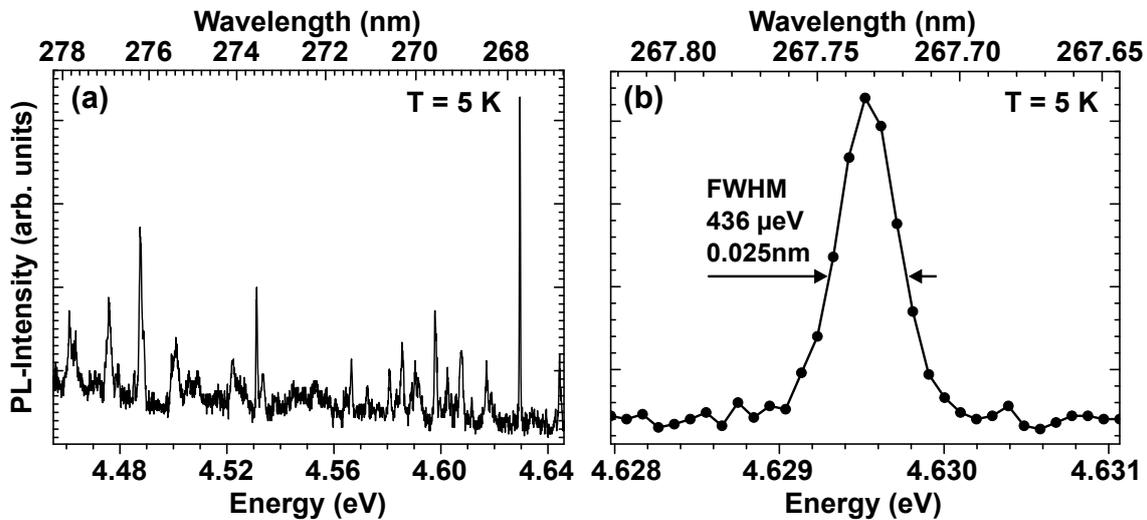
### 4.5.1 Inhomogene Linienverbreiterung durch spektrale Diffusion

Die spektrale Diffusion definiert die zeitlich zufälligen spektralen Sprünge oder Verschiebungen und Intensitätsvariationen einer einzelnen Emissionslinie, welche aus Fluktuationen der Emitterumgebung resultiert [206]. Im Fall von epitaktisch gewachsenen Halbleiterquantenpunkten befindet sich der Emitter innerhalb eines kristallinen Halbleitermaterials, das Punkt-, Linien-, und Flächendefekte aufweisen kann. Derartige Defekte können in der Nähe des Quantenpunkts liegen und durch deren mögliche Auf- und Entladung ein zeitlich veränderliches Coulombfeld erzeugen, das eine Veränderung der QD-Emissionsenergie hervorruft. Der Auf- und Entladungseffekt ist stochastisch und kann auf verschiedenen Zeitskalen auftreten. Wenn die Veränderung des lokalen Coulombfeldes auf einer Zeitskala auftritt, die geringer als die minimale Akquirierungszeit des Detektionssystems ist, wird somit eine inhomogene Linienverbreiterung im Experiment beobachtet [66].

Für exzitonische QD-Lumineszenz ist die Energieverschiebung bei kleinen lokalen Feldvariationen proportional zum effektiven internen Exzitonendipolmoment [198]. Das starke intrinsische elektrische Feld in hexagonalen GaN-QDs verursacht eine örtliche Separation der Elektron- und Lochwellenfunktion und damit ein großes Exzitonendipolmoment. Kindel *et al.* [205] konnten in Halbwertsbreitenstatistiken die Proportionalität der Gaußschen FWHM zum berechneten internen Dipolmoment zeigen.

### 4.5.2 Halbwertsbreite von Emissionslinien unter quasisresonanter Anregung

Um näher auf die QD-Emission der GaN-Inseln einzugehen, wurden spektral hochaufgelöste UV- $\mu$ PL-Experimente unter resonanter Anregung der Inseln bei 5 K durchgeführt<sup>1</sup>. Dazu wurde ein bei 256 nm emittierender, frequenzverdoppelter Argonionenlaser mit einer Anregungsdichte von 2,56 kW/mm<sup>2</sup> benutzt. Das spektrale Auflösungsvermögen dieses Aufbaus beträgt 0,016 nm (300  $\mu$ eV) bei 253,65 nm (4,8865 eV). Das  $\mu$ PL-Spektrum in Abb. 4.10 (a) setzt sich aus vielen scharfen Emissionslinien zusammen. Die Untersuchung einer einzelnen Linie bei 4,6295 eV (267,734 nm) offenbart eine (siehe Abb. 4.10 (b)) extrem schmale Halbwertsbreite von 440  $\mu$ eV ( $\Delta\lambda = 25$  pm). Dieser Wert ist nah an der spektralen Auflösung des  $\mu$ PL-Aufbaus.



**Abbildung 4.10:**  $\mu$ -Photolumineszenzuntersuchung im Spektralbereich der Emission der GaN-Insel bei 5 K: (a) Übersichtspektrum und (b) einzelne Emissionslinie bei 4,6295 eV mit sehr geringer Halbwertsbreite [176].

Verglichen zu der umfangreichen Studie von Emissionslinien durch Kindel *et al.* [205] an Wurtzit-GaN/AlN-QDs ist dieser FWHM-Wert als äußerst gering einzuordnen. Die derzeitige geringste Linienbreite von Stranski-Krastanov gewachsenen, polaren Wurtzit-GaN/AlN-QDs werden von Demangeot *et al.* [203] mit 590  $\mu$ eV bei 4,202 eV (4 K) angegeben. Sowohl bei nichtpolaren Wurtzit- als auch Zinkblende-GaN-QDs kann vermutet werden, dass eine geringere Halbwertsbreite aufgrund eines reduzierten QCSE vorhanden ist. Dies verringert das eingepreßte Exzitonendipolmoment und damit sowohl die spektrale Diffusion als auch die Exziton-Phonon-Kopplung. Für derartige nichtpolare GaN-QDs wurde von Rol *et al.* [207] die geringste FWHM von 500  $\mu$ eV für m-planare Wurtzit-GaN-QDs

<sup>1</sup>UV- $\mu$ PL-Experimente wurden an der TU Berlin am Institut für Festkörperphysik in der Arbeitsgruppe um Prof. Dr. Axel Hoffmann von Herrn Dr. Gordon Callsen und Herrn Dipl.-Phys. Stefan Kalinowski durchgeführt.

und von Sergent *et al.* [208] eine 500  $\mu\text{eV}$  Linienbreite für Zinkblende-GaN-QDs berichtet.

Damit stellt diese scharfe Emissionslinie einen derzeitigen Rekord von GaN-QD-Linienbreiten dar. Ursache dieser außergewöhnlich schmalen Emissionslinie könnte ein im Vergleich zu bisherigen Arbeiten geringeres internes Exzitonendipolmoment sein. Aber auch eine äußerst geringe homogene Verbreiterung der Emissionslinie ist nicht auszuschließen.

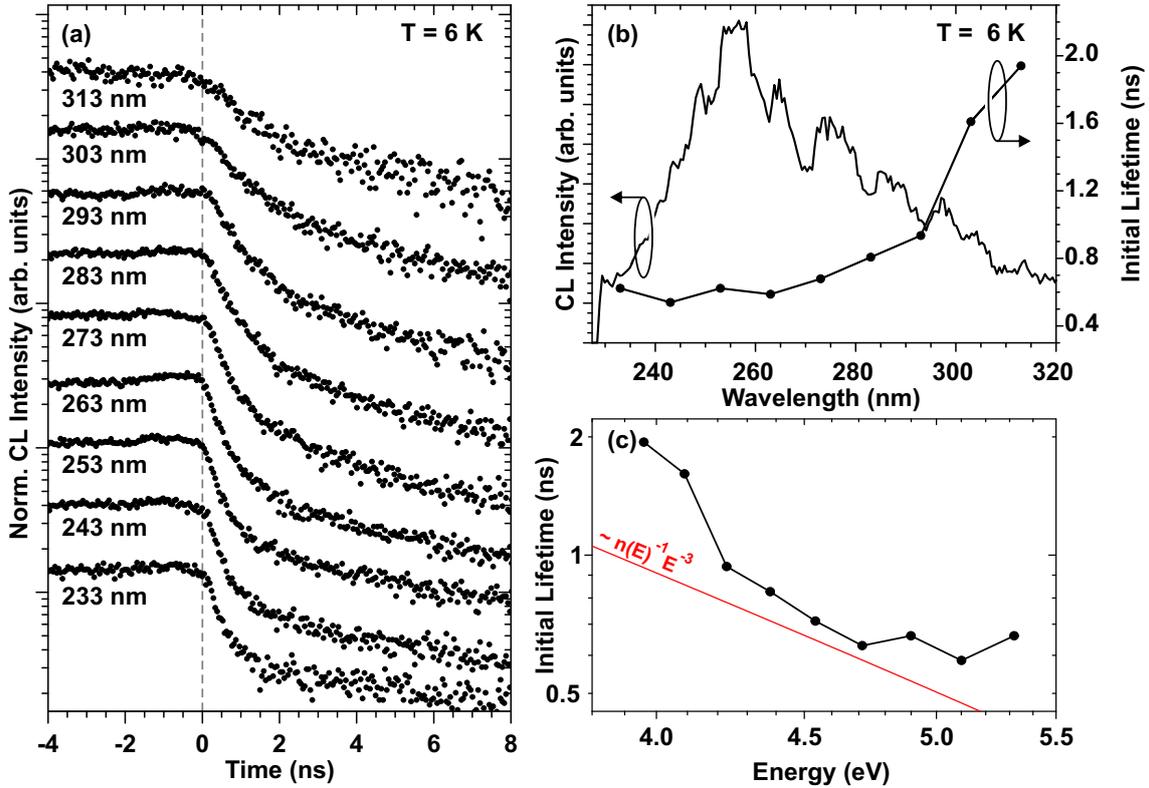
## 4.6 Lebensdauerbestimmung des Insel-Ensembles

Um die Rekombinationskinetik der generierten Überschussladungsträger zu untersuchen, wurden zeitaufgelöste SEM-CL-Experimente (TRCL) bei  $T = 6\text{ K}$  durchgeführt. Die kinetische Energie der einfallenden Primärelektronen wurde bei einem Strahlstrom von 1,1 nA zu 5 keV festgesetzt. Hierbei wurde eine Pulsweite von ungefähr 20 ns und eine Wiederholrate von 1 MHz gewählt. Dies gewährleistet das Erreichen des Quasigleichgewichts zwischen Generation und Rekombination der Überschussladungsträger bzw. die vollständige Relaxation des Ladungsträgerreservoirs in das thermische Gleichgewicht bei den hier durchgeführten TRCL-Experimenten an GaN/AlN-QDs.

Aufgrund der starken internen Felder, welche den QCSE verursachen, sind Untersuchungen der Rekombinationsdynamik äußerst empfindlich in Bezug auf die Anregungsdichte. Je nach Anzahl generierter Ladungsträger im QD können interne Felder abgeschirmt werden und eine komplexe Zerfalldynamik aufweisen. Für geringe Anregungsdichten erfolgt eine strahlende Rekombination des gebildeten QD-Exzitons. Durch hohe Anregungsdichten werden mehr Ladungsträger eingefangen als relaxieren können. Bei steigender Anregungsdichte kommt es dann zur Bildung von Biexzitonen, gefolgt von Rekombinationsprozessen aus angeregten Zuständen. Damit ist die Zerfalldynamik bei hoher Anregung nicht mehr einem einzelnen Rekombinationskanal zuzuordnen, sondern einer kaskadenartigen Rekombination von Mehrteilchenzuständen, die die internen elektrischen Felder in Abhängigkeit der Ladungsträgeranzahl unterschiedlich stark abschirmen. Deshalb ist für diese Analysen die Kenntniss der Anzahl generierter Elektron-Loch-Paare pro Quantenpunkt von Interesse. Nach Tang *et al.* [209] lässt sich die Anzahl generierter Elektron-Loch-Paare pro GaN-QD in diesen TRCL-Experimenten zu eins abschätzen<sup>2</sup>. Mit im Mittel einem Elektron-Loch-Paar pro Quantenpunkt lassen sich jegliche Abschirmeffekte durch Vielteilchenbesetzung der GaN-QDs und die kaskadenartige Rekombination von Mehrteilchenzuständen ausschließen. In den TRCL-Experimenten kann demzufolge von der Rekombination einzel-

<sup>2</sup>Die Beziehung zwischen Besetzung der Ladungsträger im QD  $N_{QD}$  und Primärelektronenstrahlstrom  $I_e$  ist durch Gleichung  $N_{QD} = I_e E_e \tau L_D / (3e E_g V_e A_D)$  gegeben. Hierbei ist die Primärelektronenenergie  $E_e$  5 keV, der Primärelektronenstrahlstrom 1,1 nA, die Bandlücke von AlN 6,09 eV, das Anregungsvolumen  $V_e$  bei 5 keV  $\sim 0,146\ \mu\text{m}^3$ , die Ladungsträgerdiffusionslänge  $L_D \sim 100\text{ nm}$ , die Lebensdauer  $\tau \sim 1\text{ ns}$  und die QD-Dichte  $A_D \sim 1 \cdot 10^{11}\text{ cm}^{-2}$ .

ner QD-Exzitonen ausgegangen werden. Letzteres ist insbesondere von Wichtigkeit für die Bestimmung der Rate an emittierten Photonen bei nitridischen Einzelphotonenemittern.



**Abbildung 4.11:** Zeitaufgelöste CL-Messung im SEM am GaN-Insel-Ensemble bei Tieftemperatur: (a) Transienten bei unterschiedlichen spektralen Positionen im Bereich der GaN-Quantenpunktmission, wobei  $t = 0$  ns den Zeitpunkt des Ausschaltens des Elektronenstrahls markiert, (b) ortsintegriertes CL-Spektrum und anfängliche Lebensdauern als Funktion der Emissionswellenlänge, (c) doppellogarithmische Darstellung der anfänglichen Lebensdauer als Funktion der Übergangsenergie.

Individuelle CL-Transienten wurden innerhalb der Bande des QD-Ensembles von 233 nm bis 313 nm aufgezeichnet. Das zugehörige ortsintegrierte Spektrum ist in Abb. 4.11 (b) dargestellt. Abb. 4.11 (a) zeigt für unterschiedliche spektrale Positionen das Intensitätsplateau im Quasigleichgewicht ( $t < 0$  ns) und den sich anschließenden Intensitätsabfall nach Ausschalten des Elektronenstrahls. Für positive Zeiten ist ein initialer schneller exponentieller Abfall bei sämtlichen Transienten zu beobachten. Dieser wird gefolgt von einem langsamen, nicht-exponentiellen Abfall, dessen charakteristische Lebensdauer wesentlich größer ist. Die anfängliche Lebensdauer  $\tau_{ini}$  der strahlenden Rekombination wird mit einem Relaxationsansatz für die zeitabhängige Intensität  $I(t) \propto \exp(-t/\tau_{ini})$  bestimmt. Von 233 nm bis 273 nm wird für den Zerfall unmittelbar nach Ausschalten des Elektronenstrahls eine konstante anfängliche Lebensdauer von  $\sim 610$  ps beobachtet. Zu höheren Wellenlängen steigt

diese sukzessiv bis 1,9 ns bei 313 nm an. Die anfängliche Lebensdauer ist in Abb. 4.11 (b) als Funktion der Emissionwellenlänge abgetragen. Die Form der langsamen Komponente bleibt gleich, wobei deren charakteristische Lebensdauer mindestens fünf mal größer als  $\tau_{ini}$  ist und mehr als 10 ns beträgt.

Zum Ende des Anregungspulses befinden sich die Quantenpunkte in einem quasistationären Gleichgewicht. Der schnelle Abfall der Lumineszenz am Beginn der Transiente wird damit durch die Lebensdauer des zerfallenden Zustandes bestimmt und nicht durch die Dynamik von eventuellen Einfangprozessen. Deshalb soll zunächst der anfängliche Zerfall genauer untersucht werden, da dieser hauptsächlich Informationen über die Quantenpunktzustände liefern kann. Die strahlende Lebensdauer  $\tau_{rad}$  eines QD-Exzitonenzustands besitzt die Abhängigkeit [210, 211]

$$\tau_{rad} = \frac{3\pi\epsilon_0\hbar^4c^3}{nE^3d_{cv}^2|I|^2}. \quad (4.2)$$

- $\tau_{rad}$  – strahlende Lebensdauer
- $\epsilon_0$  – Permittivität des Vakuums
- $n$  – Brechungsindex des Barrierematerials
- $E$  – Übergangsenergie
- $d_{cv}$  – optisches Dipol-Matrix-Element des Intrabandübergangs
- $|I|$  – Überlappintegral der Elektron- und Lochwellenfunktion

Hier ist zu berücksichtigen, dass die strahlende Lebensdauer nicht nur vom Überlappintegral der Elektron- und Lochwellenfunktion, sondern auch von der Exziton-Übergangsenergie und dem Brechungsindex des Barrierematerials abhängig ist. In Abb. 4.11 (d) ist dazu in doppellogarithmischer Darstellung die anfängliche Lebensdauer und der funktionelle Verlauf  $1/nE^3$  als Funktion der Energie abgetragen<sup>3</sup>. Für Abweichungen der Steigung von  $1/nE^3$  geht nach Gl. 4.2 eine Änderung des Überlappintegrals einher. Bei geringen Energien zeigt die anfängliche Lebensdauer gerade einen stärkeren Abfall verglichen zur roten Gerade in Abb. 4.11 (c). Damit muss  $|I|$  mit Erhöhung der Übergangsenergie steigen. Beim QCSE kann der Elektron-Loch-Überlapp durch Verringerung der QD-Schichtdicke und/oder des internen elektrischen Feldes vergrößert werden [213]. Letzteres ist durch unterschiedliche Beträge des piezoelektrischen Feldes, die von unterschiedlichen Verspannungszuständen der QDs herrühren, denkbar<sup>4</sup>. In beiden Fällen nimmt konsistenterweise die Übergangsenergie zu. Aufgrund der starken Anhäufung mehrerer QDs innerhalb der GaN-Inseln ist ein experimenteller Zugang zu den Abmessungen bzw. Verspannungen einzelner Quantenpunkte extrem schwierig. Damit kann aus experimenteller Sicht nicht zwischen diesen beiden Ef-

<sup>3</sup>Für den energieabhängigen Brechungsindex für AlN wurde die Anpassungsfunktion und die Parameter aus Ref. [212] herangezogen.

<sup>4</sup>Gerade für diese GaN-QDs, die sich im komplexen Verspannungsfeld von Versetzungsbündeln bilden, ist dieser Aspekt nicht auszuschließen.

fekten unterschieden werden. Bretagnon *et al.* [211] konnte die Abnahme der strahlenden Lebensdauer mit steigender Übergangsenergie im Bereich von 1,8 eV bis 3,7 eV zeigen <sup>5</sup>. Die hier gezeigten anfänglichen Lebensdauern schließen sich diesem Trend an.

Für die zweite Komponente des Intensitätsabfalls bei großen Verzögerungszeiten ( $t > 2$  ns) kann eine Lebensdauer im Bereich von 10 ns bis 20 ns <sup>6</sup> für sämtliche Wellenlängen extrahiert werden. Hierbei könnte es sich um einen Transferprozess von generierten Ladungsträgern in die GaN-QDs handeln.

## 4.7 Photonenstatistik der Quantenpunktemission von GaN-Inseln

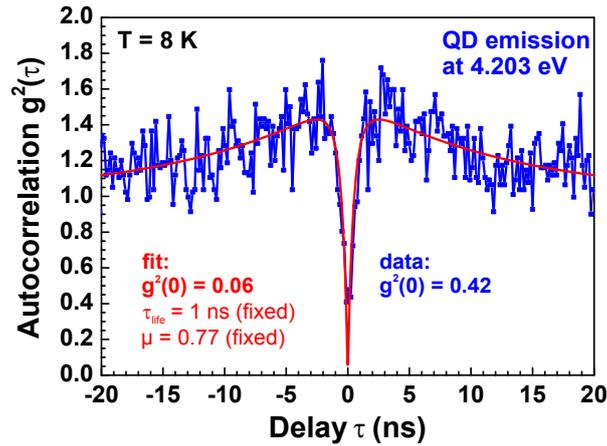
Für den Nachweis von nichtklassischem Licht mit Sub-Poisson-Statistik dient in der Quantenoptik das Hanbury-Brown & Twiss-Interferometer [51]. Hierbei werden die Photonkoinzidenzen von einem lichtemittierenden System zeitlich korreliert. Die Messung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung  $g^2(\tau)$  zeigt bei Einzelphotonenstatistik eine Verringerung der Koinzidenzen bei  $\tau = 0$ . Dies wird als sogenanntes *antibunching* bezeichnet. Santori und Koautoren konnten erstmals *antibunching* und getriggerte Einzelphotonengeneration an GaN/AlN-QDs demonstrieren [68]. In einer Reihe von Veröffentlichungen konnten die Autoren um Arakawa von der Tokyo Universität die Einzelphotonenemission von GaN-QDs bei erhöhten Temperaturen [69] über Raumtemperatur [67] bis hin zu "heißen" Temperaturen [70] aufzeigen. Dies zeigt das Potential von GaN-QDs für die Realisierung von bei Raumtemperatur operierenden Einzelphotonenbauelementen.

Die Einzelphotonenemissionscharakteristik der GaN-Inseln wird direkt durch HBT-Experimente mittels einer 256 nm Dauerstrichlaseranregung bei 8 K nachgewiesen<sup>7</sup>. Die Autokorrelation wurde an einer einzelnen Emissionslinie bei 4,203 eV untersucht (siehe Abb. 4.12). Das exzitonische Verhalten dieser Emissionslinie wurde mittels anregungsdichteabhängigen PL-Messungen bestätigt. Man beobachtet in der Korrelationsmessung zweiter Ordnung eine Abnahme des  $g^2(\tau=0)$ -Wertes auf unter 0,5 bei verschwindender Zeitverzögerung, womit sich die nichtklassische Generation von Licht und der Einzelphotonencharakteristik manifestiert. In Wurtzit-GaN/AlN-QDs wird die Linienverbreiterung durch die spektrale Diffusion dominiert [205, 198], welche den Verlauf der Autokorrelationsfunktion beeinflusst [214]. Neben der Berücksichtigung der Zweiphotonen-Zeitauflösung des HBT-Aufbaus (225 ps)

<sup>5</sup>Die Autoren schlussfolgern aus der Annahme einer konstanten Verspannung der QDs auf eine Verringerung der QD-Schichtdicke bei konstantem internen effektiven elektrischen Feld von 9,0 MV/cm.

<sup>6</sup>Eine tendenzielle Entwicklung der Lebensdauern lässt sich nicht erkennen.

<sup>7</sup>HBT-Experimente wurden an der TU Berlin am Institut für Festkörperphysik in der Arbeitsgruppe um Prof. Dr. Axel Hoffmann von Herrn Dr. Gordon Callsen und Herrn Dipl.-Phys. Stefan Kalinowski durchgeführt.



**Abbildung 4.12:** Autokorrelation zweiter Ordnung der Emission einer GaN-Insel bei 4,203 eV unter Dauerstrich-Laseranregung zeigt einen  $g^2(\tau=0)$ -Wert unterhalb von 0,5. Die Autokorrelationsfunktion wurde mit der experimentell bestimmten anfänglichen Lebensdauer angepasst [176].

wurde für die Anpassung der Daten eine Korrelationsfunktion benutzt, die die spektrale Diffusion der exzitonen Emission einbezieht [214]. Dies resultiert in einer entfalteten Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung mit  $g^2_{\text{fit}}(\tau=0) = 0,06$  bei verschwindender Zeitverzögerung. Hierbei wurde die anfängliche Lebensdauer von 1 ns (siehe Abschnitt 4.6) und Exzitonenbesetzungszahl  $\mu = 0,77$ , die mittels zeitaufgelöster PL-Experimente bzw. anregungsdichteabhängigen Autokorrelationsmessungen bestimmt wurden, in die Anpassungsfunktion einbezogen.

## 4.8 Spektrale Diffusion: *jitter*- und *blinking*-Effekte

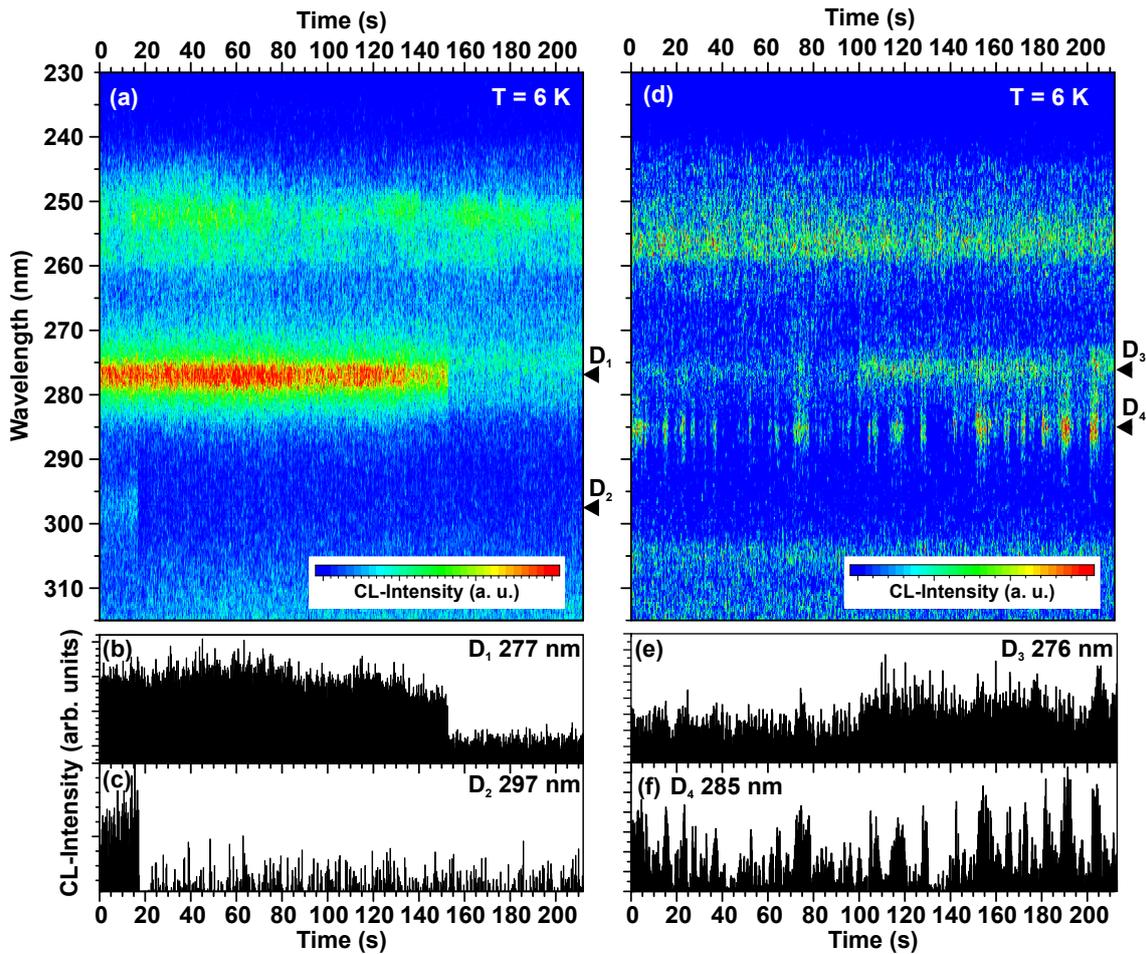
Um spektrale Diffusion direkt zu visualisieren, ist die naheliegendste Methode zur Erfassung der zeitlich spektralen Verschiebungen/Sprünge, die als *spectral jitter* bezeichnet werden, und der Intensitätsveränderungen einer Quantenpunktemissionslinie die Aufnahme von Zeitserien der Emissionsspektren. Wie in der Literatur berichtet [66], kann jedoch die spektrale Diffusion auf unterschiedlichen Zeitskalen stattfinden. Die Möglichkeit der Zeitserienerfassung zur Untersuchung der spektralen Diffusion ist somit stark an die zeitliche Auflösung des Detektionssystems gebunden. Die spektrale Diffusion kann somit nach Ostapenko [66] in zwei Kategorien eingeteilt werden: kurzzeit- und langzeitliche spektrale Diffusion. Veränderungen der Quantenpunktemissionslinie auf einer Zeitskala kleiner der kürzest möglichen Integrationszeit des Detektionssystems ist der kurzzeitlichen spektralen Diffusion zuzuordnen. Hier ist die oben erwähnte Akquirierung von Zeitserien nicht möglich. Ein Zugang zur Analyse des *spectral jitter* auf dieser Zeitskala ist dennoch nach Salten *et al.* [214] über Auto- und Kreuzkorrelationsexperimente möglich. HBT-Experimente

mit adäquat gewähltem spektralen Fenster kleiner der Halbwertsbreite der Emissionslinie führen bei *spectral jitter* zu einer Erhöhung des  $g^2$ -Wertes in der Nähe des Verzögerungsnulldpunkts.

Im HBT-Experiment der Abb. 4.12 wurde das Detektionsfenster der Emissionslinie bei 4,203 eV kleiner der Linienbreite gewählt und leicht asymmetrisch zum Hauptpeak positioniert. Damit ist neben der Analyse der Einzelphotonenstatistik auch die Untersuchung des *spectral jitter* möglich. Neben der deutlichen Senkung der Autokorrelationsfunktion bei  $\tau = 0$  ns in Abb. 4.12 ist offensichtlich eine Erhöhung des  $g^2$ -Wertes im Bereich  $1 \text{ ns} < |\tau| < 13 \text{ ns}$  zu erkennen. Dies bedeutet, dass die bedingte Wahrscheinlichkeit für die Detektion von zwei Photonen mit einer Zeitdifferenz von  $1 \text{ ns} < |\tau| < 13 \text{ ns}$  erhöht ist. Innerhalb des spektralen Fensters werden demnach einzelne Photonen in Paketen detektiert. Die Ursache dieses *bunching*-Phänomens ist die zeitliche spektrale Verschiebung der Emissionslinie aus dem Bereich des Detektionsfensters heraus und wieder herein aufgrund des *spectral jitter* der exzitonischen Lumineszenz. Aus der Anpassung der Autokorrelationsdaten ergibt sich eine *jitter*-Zeitkonstante von 13 ns.

Für die Untersuchung der spektralen Diffusion bei zeitlichen Veränderungen oberhalb der Detektorintegrationszeit wurden Serien von Lumineszenzspektren unter Elektronenanregung der GaN-Inseln im Rasterelektronenmikroskop bei 5 kV (1,3 nA Primärelektronenstrahlstrom) erfasst. Bei diesen Bedingungen wurde als Kompromiss zwischen Signal-Rausch-Verhältnis und Zeitaufösung eine Integrationszeit von 1 s benutzt. Um den Einfluss der Elektronenstrahlschädigung gering zu halten wurde die Gesamtanregungsdauer zu 210 s limitiert, was einer Elektronendosis von  $53,3 \text{ C/cm}^2$  entspricht. Für größere Gesamtanregungsdauern ist eine Abnahme der Intensität der GaN-QD-Emission zu beobachten. In Abb. 4.13 (a, d) sind zwei Beispiele der zeitlichen Entwicklung der Intensitäten von Emissionslinien in einem Spektralbereich von 230 nm bis 320 nm dargestellt. Bei der Analyse mehrerer Zeitserien konnten unterschiedliche zeitliche Entwicklungen der Emissionslinien beobachtet werden. In 82 % der Fälle ist bei der Elektronenstrahlanregung eine über den betrachteten Zeitbereich konstante Emission mit nur leichten Intensitätsvariationen vorhanden. Beispielhaft für diese zeitliche Entwicklung sind die Emissionslinien im Spektralbereich von 250 nm bis 260 nm in Abb. 4.13 (a, d).

Im Gegensatz dazu werden zu 18 % deutliche Intensitätsveränderungen der Emissionslinien beobachtet. Am häufigsten ist hier ein „Ausgehen“ bzw. eine abrupte starke Intensitätsreduktion zu beobachten (78 % der zeitlich veränderlichen Linien). Dies wird anhand des Linienscans in Abb. 4.13 (a) deutlich. Nach 153 s anhaltend konstantem Intensitätsverlauf zeigt die Emissionslinie  $D_1$  bei 277 nm (siehe Abb. 4.13 (b)) eine abrupte Intensitätsreduktion auf die Hälfte des Intensitätswertes. Für die Emissionslinie  $D_2$  in Abb. 4.13 (c) wird ein „Ausgehen“ nach 17 s beobachtet. Der dazu invertierte Verlauf eines abrupten starken Intensitätsanstiegs bzw. „Angehen“ einer Emissionslinie tritt mit einer relativen



**Abbildung 4.13:** Serien der zeitlichen Abhängigkeit der Emission der GaN-Inseln: (a, d) zeitliche Entwicklung der Emission unterschiedlicher GaN-Inseln, (b, c, e, f) monochromatische Intensitätsentwicklung der Linien  $D_{1,2,3,4}$ .

Häufigkeit von 11 % der zeitlich veränderten Emissionen auf und kann exemplarisch bei der Lumineszenz  $D_3$  beobachtet werden (siehe Abb. 4.13 (d, e)).

Das in der Literatur bezeichnete *blinking* von Emissionslinien ist als alternierender Zustand zwischen ein- und ausgeschalteter Emission der Lumineszenzlinie zu verstehen. Diese zeitlichen Intensitätsvariationen oder -unterbrechungen von Rekombinationskanälen wurden bei der Elektronenanregung der GaN-Inseln mit einer relativen Häufigkeit von 11 % der zeitlich veränderten Lumineszenz beobachtet. Derartiges *blinking* zeigt die Emission  $D_4$  bei 285 nm in Abb. 4.13 (d, e). Dabei erstrecken sich die Zustände optischer Aktivität über einen Zeitbereich von  $1\text{ s} < t < 10\text{ s}$ .

## 4.9 Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurden die optischen und strukturellen Eigenschaften von GaN-Inseln in AlN untersucht, welche durch das Wachstum eines ein bis zwei Monolagen dicken GaN-Quantenfilms mit nachfolgender Wachstumsunterbrechung gebildet wurden. Die Inseln bilden sich preferentiell an Versetzungsbündeln, wobei sie effizient Lumineszenz zwischen 220 nm und 310 nm emittieren. Äußerst schmale Emissionslinienbreiten von bis zu 440  $\mu\text{eV}$  zeigen das quantenpunktartige Verhalten der GaN-Inseln auf und stellt die geringste bisher berichtete Halbwertbreite für GaN-Quantenpunktemission dar. Die Einzelphotonemission dieser Inseln wurde durch das *antibunching* mit einem experimentellen Wert von  $g^2(\tau=0) = 0,42$  in Hanbury Brown-Twiss-Experimenten bei 8 K verifiziert.

Trotz der enormen lateralen Ausdehnungen der GaN-Inseln von bis zu 100 nm im Durchmesser, womit der kritische Durchmesser für die Ausbildung von Quantenpunkt-Exzitonen überschritten ist [63], zeigen diese Inseln extrem scharfe Quantenpunktlumineszenz. Diese vermeintliche Diskrepanz zwischen der Emissionscharakteristik bzw. Photonenzustatistik der GaN-Inseln und deren lateralen Ausdehnungen konnte durch höchstauflösende STEM-CL-Analysen der *inneren* optischen und strukturellen Eigenschaften der Inseln geklärt werden. Spektral verschiedene QD-Emissionslinien, aus unterschiedlichen Bereichen der Insel emittierend, offenbaren die Ausbildung von mehreren räumlich getrennten Quantenpunkten innerhalb der Inseln. Die mittels STEM-Kippserien direkt nachgewiesenen Schichtdickenfluktuationen im Bereich der Versetzungsbündel führt zu der Quantenpunktanhäufung innerhalb der GaN-Inseln.

Diffusionslängen der im AlN generierten Ladungsträger unterschieden sich örtlich. In vertikaler Richtung können Ladungsträger unterhalb des GaN-QWs doppelt so weit diffundieren als in der Nähe von Versetzungsbündeln generierte Ladungsträger in GaN-QDs. Der Verlustmechanismus an Versetzungen durch die nichtstrahlende Rekombination der Ladungsträger ist nachteilig für den vertikalen Transport und damit hinderlich für eine effiziente Ladungsträgerinjektion in QDs für zukünftige Einzelphotonenemitter auf Basis jener GaN-Inseln.

Mittels zeitaufgelösten CL-Experimenten, bei denen im Mittel *ein* Elektron-Loch-Paar im QD generiert wurde, konnte die Zerfalldynamik der QD-Rekombination analysiert werden. Mit 0,6 ns bis 4,0 ns anfänglicher Lebensdauer ist eine Limitierung der cutoff-Frequenz auf Basis dieser Einzelphotonenemitter zu 1,7 GHz gegeben. Die deutliche Abnahme der anfänglichen Lebensdauer der QD-Rekombination mit steigender Übergangsenergie legt die Erhöhung des Elektron-Loch-Überlapps im QD nahe.



# Zusammenfassung und Ausblick



# Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das Verfahren der Kathodolumineszenzspektroskopie im Transmissionselektronenmikroskop bei flüssig Helium-Temperatur zur nanoskopischen Untersuchung von Gruppe III-Nitrid basierten Quantenheterostrukturen als aktives Medium in Mikrokavitäten genutzt. Durch die deutliche Verbesserung der räumlichen Auflösung von bis zu einer Größenordnung gegenüber herkömmlichen Kathodolumineszenzverfahren im Rasterelektronenmikroskop erweist sich die STEM-CL-Spektroskopie als äußerst wirksame Methode zur Charakterisierung einzelner Quantenstrukturen. Wie in dieser Arbeit gezeigt, können gezielt einzelne Quantenfilme und Quantenpunkte präzise höchstortsselektiv angeregt werden und deren lokale optische Eigenschaften analysiert werden.

Das spezifische und komplexe Messverfahren der STEM-CL-Mikroskopie wird eingangs dieser Arbeit vorgestellt und darin auftretende physikalische Effekte diskutiert. Neben der theoretischen Betrachtung der Ortsauflösung und den vorherrschenden Anregungsbedingungen wird vor allem die Schichtdickenabhängigkeit der Kathodolumineszenz in elektronentransparenten STEM-Lamellen auf experimenteller Basis analysiert. In Kombination mit Elektronen-Energieverlust-Spektroskopie konnte eine kritische Schichtdicke für das Einsetzen der Kathodolumineszenz in GaN-Epitaxieschichten herausgearbeitet werden. Dieser kritische Wert stimmt mit der mittleren freien Weglänge der Primärelektronen überein. Oberhalb dieser Schichtdicke können durch die Superposition der emittierten Strahlung Interferenzphänomene auftreten. Derartige Dünnschichtinterferenzen wurden an in Draufsicht präparierten Lamellen beobachtet.

Das Verfahren der STEM-CL-Mikroskopie wurde genutzt, um die optischen und strukturellen Eigenschaften von in Mikrokavitäten eingebetteten InGaN/GaN-Quantenfilmen zu untersuchen. Diese Quantenstrukturen bilden das aktive Medium in Gruppe III-Nitrid basierten violett emittierenden Mikrokavitäten, deren unterer Bragg-Spiegel aus AlInN/GaN-Schichtpaaren besteht.

Ausgangspunkt bildete die STEM-CL-Analyse eines einzelnen InGaN-Quantenfilms, der auf einem GaN/Saphir-Substrat epitaktisch abgeschieden wurde. Die nanoskopische Analyse der optischen Quantenfilmeigenschaften in der Nähe von Durchstoßversetzungen zeigte eine signifikante Verschiebung der Emissionslinie des InGaN-Quantenfilms von mehr als +60 meV. Nach theoretischen Berechnungen sind neben dem Verzerrungsfeld der Versetzung zusätzliche Effekte, wie eine Verringerung der Quantenfilmschichtdicke und/oder

Abnahme der Indiumkonzentration, verantwortlich, um die experimentellen Befunde quantitativ erklären zu können.

Die neuralgische Behandlung der Verspannung von InGaN-Mehrfachquantenfilmen auf AlInN/GaN-Bragg-Spiegeln wurde anhand eines 62-fachen InGaN-Quantenfilmstapels analysiert. Durch hochauflösende STEM-CL-Messungen konnte direkt die partielle plastische Relaxation des Mehrfachquantenfilms nachgewiesen werden. Diese Relaxation äußert sich als abrupter Wellenlängensprung an der Position der 32. InGaN-Schicht. Zur Vermeidung der plastischen Relaxation kann die Anzahl der auf den AlInN/GaN-Bragg-Spiegel aufgewachsenen InGaN-Quantenfilme auf maximal 32 reduziert werden. Dies wurde anhand eines 29-fachen InGaN/GaN-Quantenfilmstapels überprüft. Das pseudomorphe Wachstum dieses Quantenfilmstapels äußerte sich in einer konstanten Entwicklung des Lumineszenzschwerpunkts in Wachstumsrichtung. Darüberhinaus konnten lokal scharfe Emissionslinien der Quantenfilmlumineszenz nachgewiesen werden, die Ausdruck der starken Ladungsträgerlokalisierung im InGaN-Materialsystem sind.

Schließlich wurden die optischen Eigenschaften eines erfolgreich realisierten vertikal emittierenden Oberflächenlasers auf Basis eines AlInN/GaN-Bragg-Spiegels mit 13 InGaN-Quantenfilmen als aktives Medium in einer GaN-Kavität vorgestellt. Dieser zeigt Laserverhalten oberhalb des Schwellwertes von  $10 \text{ mJ/cm}^2$  unter optischer Anregung. Der Fokus der Kathodolumineszenzuntersuchungen im STEM als auch im Rasterelektronenmikroskop galt den örtlichen Schwankungen der InGaN-Quantenfilmemission. Die Dominanz der lokalen auf (Sub-)Nanometerskala vorherrschenden inhomogenen Verbreiterung konnte hierbei herausgearbeitet werden. Die ortsintegrale spektrale Verstimmung der exzitonischen InGaN-Quantenfilmemission zur Kavitätsmode wurde aus winkelabhängigen Photolumineszenzmessungen zu  $+47 \text{ meV}$  bestimmt, wobei dieser Wert durch die örtlichen Schwankungen der Photonenmode ortsabhängig ist.

Darüber hinaus konnten in der vorliegenden Arbeit wichtige neue Erkenntnisse über den Einfluss von strukturellen Defekten auf die Bildung von GaN/AlN-Quantenpunkten herausgearbeitet werden. Es zeigt sich eine präferentielle Bildung von aus einzelnen Quantenpunkten zusammengesetzte GaN-Insel an Versetzungsbündeln. Das quantenpunktartige Verhalten dieser Nanostrukturen wird durch die Emission äußerst schmaler Lumineszenzlinien im Wellenlängenbereich von 220 nm bis 310 nm verifiziert. Diese Nanostrukturen sind nach Intensitätskorrelationen in Photolumineszenzmessungen Quellen einzeln emittierender Photonen im UV-Bereich. Neben den durch die STEM-CL-Mikroskopie gewonnenen strukturellen und optischen Eigenschaften wurde die Rekombinationskinetik der Überschussladungsträger und die zeitliche Stabilität der Emissionslinien in zeitaufgelösten Kathodolumineszenzexperimenten im Rasterelektronenmikroskop analysiert.

## Ausblick

Nach der erfolgreichen Realisierung eines violett-emittierenden VCSELs auf Basis von GaN/AlInN-Bragg-Spiegeln mit InGaN/GaN-Quantenfilmen als aktives Medium steht für GaN-Quantenpunkte die Einbettung in nitridbasierte Mikrokavitäten im Mittelpunkt. Dies ist für die erhöhte Auskopplung der von Quantenpunkten einzeln emittierenden Photonen von besonderer Bedeutung. Dabei müssen Wachstumskonzepte von GaN-Quantenpunkten auf UV-Bragg-Spiegeln erarbeitet und optimiert werden. Welche geeigneten Kompositionen für die Al-haltigen Schichten im UV-DBR hierbei zu rissfreien, im tiefen UV hochreflektierenden Spiegeln führen, ist genauso zu überprüfen wie die Bildung von GaN-Quantenpunkten in auf UV-DBRs gewachsenen Al(Ga)N-Kavitäten. Die dafür benötigten Untersuchungen zur Herausarbeitung der Wachstumskonzepte wurden zum Ende dieser Arbeit begonnen. Mit Hilfe von hochspektral und -ortsaufgelösten STEM-CL-Analysen sind detaillierte Erkenntnisse sowohl in den Bildungsmechanismus als auch den strukturellen, optischen, chemischen und elektronischen Eigenschaften der in Mikrokavitäten eingebetteten GaN-Quantenpunkte zu erwarten.



# Anhang



# Literaturverzeichnis

- [1] Dingle, R., Wiegmann, W., and Henry, C. H. *Physical Review Letters* **33**(14), 827–830 (1974).
- [2] van der Ziel, J. P., Dingle, R., Miller, R. C., Wiegmann, W., and Nordland, W. A. *Applied Physics Letters* **26**(8), 463 (1975).
- [3] Dupuis, R. D., Dapkus, P. D., Chin, R., Holonyak, N., and Kirchoefer, S. W. *Applied Physics Letters* **34**(4), 265 (1979).
- [4] Arakawa, Y. and Sakaki, H. *Applied Physics Letters* **40**(11), 939 (1982).
- [5] Asada, M., Miyamoto, Y., and Suematsu, Y. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **22**(9), 1915–1921 (1986).
- [6] Weiner, J. S., Chemla, D. S., Miller, D. A. B., Wood, T. H., Sivco, D., and Cho, A. Y. *Applied Physics Letters* **46**(7), 619 (1985).
- [7] Purcell, E. M. *Physical Review* **69**(11-12), 681 (1946).
- [8] Goy, P., Raimond, J. M., Gross, M., and Haroche, S. *Physical Review Letters* **50**(24), 1903–1906 (1983).
- [9] Hulet, R. G., Hilfer, E. S., and Kleppner, D. *Physical Review Letters* **55**(20), 2137–2140 (1985).
- [10] Gerard, J.-M. and Gayral, B. *Journal of Lightwave Technology* **17**(11), 2089–2095 (1999).
- [11] Weisbuch, C., Nishioka, M., Ishikawa, A., and Arakawa, Y. *Physical Review Letters* **69**(23), 3314–3317 (1992).
- [12] Benisty, H., Neve, H. d., and Weisbuch, C. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **34**(9), 1612–1631 (1998).
- [13] Amano, H., Kito, M., Hiramatsu, K., and Akasaki, I. *Japanese Journal of Applied Physics* **28**(12), L2112–L2114 (1989).

- [14] Nakamura, S., Senoh, M., and Mukai, T. *Japanese Journal of Applied Physics* **30**(10A), L1708–L1711 (1991).
- [15] Chung, T.-Y. and Chang, K. J. *Semiconductor Science and Technology* **13**(8), 876–881 (1998).
- [16] Grandjean, N., Damilano, B., Dalmaso, S., Leroux, M., Lüigt, M., and Massies, J. *Journal of Applied Physics* **86**(7), 3714 (1999).
- [17] Wei, S., Jia, Y., and Xia, C. *Superlattices and Microstructures* **51**(1), 9–15 (2012).
- [18] Kavokin, A. and Gil, B. *Applied Physics Letters* **72**(22), 2880 (1998).
- [19] Nakamura, S., Mukai, T., and Senoh, M. *Applied Physics Letters* **64**(13), 1687 (1994).
- [20] Nakamura, S., Senoh, M., Nagahama, S.-i., Iwasa, N., Yamada, T., Matsushita, T., Kiyoku, H., and Sugimoto, Y. *Japanese Journal of Applied Physics* **35**(1B), L74–L76 (1996).
- [21] Christen, J. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures* **9**(4), 2358 (1991).
- [22] Bertram, F., Riemann, T., Christen, J., Kaschner, A., Hoffmann, A., Thomsen, C., Hiramatsu, K., Shibata, T., and Sawaki, N. *Applied Physics Letters* **74**(3), 359 (1999).
- [23] Bertram, F. *Kathodolumineszenz-Mikroskopie an komplexen, lokal-selektiven Epitaxie- und lateral überwachsenen GaN-Strukturen*. Dissertation, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Magdeburg, (1999).
- [24] Bastek, B. *Untersuchung der mikroskopisch optischen Eigenschaften von strukturellen Defekten in GaN-Epitaxie-Schichten mittels Tieftemperatur Kathodolumineszenzmikroskopie im Rasterelektronen- und Transmissionselektronenmikroskop*. Dissertation, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Magdeburg, (2012).
- [25] Strite, S. and Morkoç, H. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures* **10**(4), 1237 (1992).
- [26] Feneberg, M., Neuschl, B., Thonke, K., Collazo, R., Rice, A., Sitar, Z., Dalmau, R., Xie, J., Mita, S., and Goldhahn, R. *physica status solidi (a)* **208**(7), 1520–1522 (2011).
- [27] Monemar, B., Paskov, P., and Kasic, A. *Superlattices and Microstructures* **38**(1), 38–56 (2005).
- [28] Bernardini, F., Fiorentini, V., and Vanderbilt, D. *Physical Review B* **56**(16), R10024–R10027 (1997).

- [29] O’Clock, G. D. *Applied Physics Letters* **23**(2), 55 (1973).
- [30] Tsubouchi, K., Sugai, K., and Mikoshiba, N. In *1981 Ultrasonics Symposium*, 375–380.
- [31] Shur, M. S., Bykhovski, A. D., and Gaska, R. *MRS Proceedings* **537** (1998).
- [32] Yamamoto, Y., Tassone, F., and Cao, H. *Semiconductor cavity quantum electrodynamics*, volume 169 of *Springer tracts in modern physics*. Springer, Berlin and New York, (2000).
- [33] Kavokin, A. and Malpuech, G. *Cavity polaritons*, volume 32 of *Thin films and nanostructures*. Elsevier, Academic Press, Amsterdam [u.a.], 1st edition, (2003).
- [34] Dutra, S. M. *Cavity quantum electrodynamics: The strange theory of light in a box*. Wiley series in lasers and applications. J. Wiley, New York, (2005).
- [35] Deveaud, B. *The physics of semiconductor microcavities: From fundamentals to nanoscale devices*. Wiley-VCH, Weinheim, (2007).
- [36] Kavokin, A. *Microcavities*, volume no. 16 of *Series on semiconductor science and technology*. Oxford University Press, Oxford, (2007).
- [37] Born, M. and Wolf, E. *Principles of optics: Electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*. Cambridge University Press, Cambridge and New York, 7th expanded edition, (1999).
- [38] Yariv, A. and Yeh, P. *Photonics: Optical electronics in modern communications*. The Oxford series in electrical and computer engineering. Oxford University Press, New York, 6th edition, (2007).
- [39] Macleod, H. A. *Thin-film optical filters*. Series in optics and optoelectronics. CRC Press/Taylor & Francis, Boca Raton and FL, 4th edition, (2010).
- [40] Saleh, Bahaa E. A and Teich, M. C. *Grundlagen der Photonik*. Lehrbuch Physik. Wiley-VCH, Weinheim, 2nd edition, (2008).
- [41] Buchheim, C., Goldhahn, R., Rakel, M., Cobet, C., Esser, N., Rossow, U., Fuhrmann, D., and Hangleiter, A. *physica status solidi (b)* **242**(13), 2610–2616 (2005).
- [42] Sakalauskas, E., Behmenburg, H., Hums, C., Schley, P., Rossbach, G., Giesen, C., Heuken, M., Kalisch, H., Jansen, R. H., Bläsing, J., Dadgar, A., Krost, A., and Goldhahn, R. *Journal of Physics D: Applied Physics* **43**(36), 365102 (2010).
- [43] Ive, T., Brandt, O., Kostial, H., Hesjedal, T., Ramsteiner, M., and Ploog, K. H. *Applied Physics Letters* **85**(11), 1970 (2004).

- [44] Huang, G. S., Lu, T. C., Yao, H. H., Kuo, H. C., Wang, S. C., Lin, C.-W., and Chang, L. *Applied Physics Letters* **88**(6), 061904 (2006).
- [45] Carlin, J.-F. and Ilegems, M. *Applied Physics Letters* **83**(4), 668 (2003).
- [46] Lorenz, K., Franco, N., Alves, E., Watson, I. M., Martin, R. W., and O'Donnell, K. P. *Physical Review Letters* **97**(8), 085501 (2006).
- [47] Kornitzer, K., Ebner, T., Thonke, K., Sauer, R., Kirchner, C., Schwegler, V., Kamp, M., Leszczynski, M., Grzegory, I., and Porowski, S. *Physical Review B* **60**(3), 1471–1473 (1999).
- [48] Hönig, G. *Mehrteilchenzustände in Halbleiter-Quantenpunkten*. Dissertation, TU Berlin, Berlin, (2015).
- [49] Stark, J. *Annalen der Physik* **348**(7), 965–982 (1914).
- [50] Miller, D. A. B., Chemla, D. S., Damen, T. C., Gossard, A. C., Wiegmann, W., Wood, T. H., and Burrus, C. A. *Physical Review Letters* **53**(22), 2173–2176 (1984).
- [51] Brown, R. H. and Twiss, R. Q. *Nature* **177**(4497), 27–29 (1956).
- [52] Bernard, M. G. A. and Durauffourg, G. *physica status solidi (b)* **1**(7), 699–703 (1961).
- [53] Michalzik, R. *VCSELs: Fundamentals, technology and applications of vertical-cavity surface-emitting lasers*, volume 166 of *Springer series in optical sciences*. Springer, Heidelberg and New York, (2013).
- [54] Gisin, N., Ribordy, G., Tittel, W., and Zbinden, H. *Reviews of Modern Physics* **74**(1), 145–195 (2002).
- [55] Michler, P. *Single semiconductor quantum dots*. Nanoscience and technology. Springer, Berlin, (2008).
- [56] Benson, O., Santori, C., Pelton, M., and Yamamoto, Y. *Physical Review Letters* **84**(11), 2513–2516 (2000).
- [57] Baur, J., Maier, K., Kunzer, M., Kaufmann, U., and Schneider, J. *Applied Physics Letters* **65**(17), 2211 (1994).
- [58] Martin, G., Strite, S., Botchkarev, A., Agarwal, A., Rockett, A., Morkoç, H., Lambrecht, W. R. L., and Segall, B. *Applied Physics Letters* **65**(5), 610 (1994).
- [59] Salvador, A., Liu, G., Kim, W., Aktas, O., Botchkarev, A., and Morkoç, H. *Applied Physics Letters* **67**(22), 3322 (1995).

- [60] Nam, K. B., Li, J., Kim, K. H., Lin, J. Y., and Jiang, H. X. *Applied Physics Letters* **78**(23), 3690 (2001).
- [61] Hang, D. R., Chen, C. H., Chen, Y. F., Jiang, H. X., and Lin, J. Y. *Journal of Applied Physics* **90**(4), 1887 (2001).
- [62] Simeonov, D., Dussaigne, A., Butté, R., and Grandjean, N. *Physical Review B* **77**(7), 075306 (2008).
- [63] Hönig, G., Callsen, G., Schliwa, A., Kalinowski, S., Kindel, C., Kako, S., Arakawa, Y., Bimberg, D., and Hoffmann, A. *Nature Communications* **5**, 5721 (2014).
- [64] Choi, K., Kako, S., Holmes, M. J., Arita, M., and Arakawa, Y. *Applied Physics Letters* **103**(17), 171907 (2013).
- [65] Ostapenko, I. A. *Influence of defects, phonons and strain on the luminescence properties of nitride- and arsenide-based quantum dots*. Dissertation, TU Berlin, Berlin, (2012).
- [66] Ostapenko, I. A., Hönig, G., Rodt, S., Schliwa, A., Hoffmann, A., Bimberg, D., Dachner, M.-R., Richter, M., Knorr, A., Kako, S., and Arakawa, Y. *Physical Review B* **85**(8), 081303(R) (2012).
- [67] Holmes, M. J., Choi, K., Kako, S., Arita, M., and Arakawa, Y. *Nano letters* **14**(2), 982–986 (2014).
- [68] Santori, C., Götzinger, S., Yamamoto, Y., Kako, S., Hoshino, K., and Arakawa, Y. *Applied Physics Letters* **87**(5), 051916 (2005).
- [69] Kako, S., Santori, C., Hoshino, K., Götzinger, S., Yamamoto, Y., and Arakawa, Y. *Nature materials* **5**(11), 887–892 (2006).
- [70] Holmes, M. J., Kako, S., Choi, K., Arita, M., and Arakawa, Y. *ACS Photonics* **3**(4), 543–546 (2016).
- [71] Heindel, T. *Elektrisch gepumpte Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen für die Quantenkommunikation*. Dissertation, Julius-Maximilians-Universität Würzburg, Würzburg, (2013).
- [72] Schmidt, G. *In-situ Kathodolumineszenzspektroskopie an photonischen Halbleiterheterostrukturen im Rastertransmissionselektronenmikroskop*. Diplomarbeit, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Magdeburg, (2011).
- [73] Müller, M. *Tieftemperatur-Kathodolumineszenzspektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop an komplexen nitridischen Halbleiterstrukturen*. Diplomarbeit, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Magdeburg, (2012).

- [74] Pennycook, S. J. and Nellist, P. D. *Scanning transmission electron microscopy: Imaging and analysis*. Springer, New York, (2011).
- [75] Goldstein, J. I., Costley, J. L., Lorimer, G. W., and Reed, R. J. B. *Scanning Electron Microscopy 1977 (IITRI, Chicago, IL, 1977)* **1**, 315–324 (1977).
- [76] Reimer, L. and Kohl, H. *Transmission electron microscopy: Physics of image formation*, volume 36 of *Springer series in optical sciences*. Springer, New York, 5th edition, (2008).
- [77] Williams, D. B., Carter, C. B., and Spence, John C. H. *Transmission electron microscopy: A textbook for materials science*. Springer, New York, 2nd edition, (2009).
- [78] Wang, Z. L. *Micron* **34**(3-5), 141–155 (2003).
- [79] Howie, A. *Journal of Microscopy* **117**(1), 11–23 (1979).
- [80] Peng, L.-M. *Micron* **30**(6), 625–648 (1999).
- [81] Hartel, P., Rose, H., and Dinges, C. *Ultramicroscopy* **63**(2), 93–114 (1996).
- [82] Alexander, H. *Physikalische Grundlagen der Elektronenmikroskopie*. Teubner-Studienbücher: Angewandte Physik. Teubner, Stuttgart, (1997).
- [83] Fultz, B. and Howe, J. M. *Transmission electron microscopy and diffractometry of materials*. Springer, Berlin and New York, 3rd edition, (2008).
- [84] Voyles, P., Grazul, J., and Muller, D. *Ultramicroscopy* **96**(3-4), 251–273 (2003).
- [85] Cowley, J. and Huang, Y. *Ultramicroscopy* **40**(2), 171–180 (1992).
- [86] Noltemeyer, M., Bertram, F., Hempel, T., Bastek, B., Christen, J., Brandt, M., Lorenz, M., Grundmann, M., Teherani, F. H., Look, D. C., and Rogers, D. J. *Proc. of SPIE, Oxide-based Materials and Devices III* **8263**, 82630X (2012).
- [87] Polyakov, A. N., Noltemeyer, M., Hempel, T., Christen, J., and Stepovich, M. A. *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics* **76**(9), 970–973 (2012).
- [88] Polyakov, A. N., Noltemeyer, M., Hempel, T., Christen, J., and Stepovich, M. A. *Journal of Surface Investigation. X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques* **6**(6), 901–905 (2012).
- [89] Noltemeyer, M. *Optische Untersuchungen des mikroskopischen exzitonischen und ambipolaren Transports in ZnO und GaN*. Diplomarbeit, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Magdeburg, (2016).

- [90] Schmidt, G., Müller, M., Bertram, F., Veit, P., Petzold, S., Das, A., and Monroy, E. *Microscopy and Microanalysis* **18**(S2), 1878–1879 (2012).
- [91] Egerton, R. *Electron Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope*. Springer, Boston, 3rd edition, (2011).
- [92] Malis, T., Cheng, S. C., and Egerton, R. F. *Journal of Electron Microscopy Technique* **8**(2), 193–200 (1988).
- [93] Kobayashi, T., Sugita, T., Koyama, M., and Takayanagi, S.-i. *IEEE Transactions on Nuclear Science* **19**(3), 324–333 (1972).
- [94] Keast, V. J., Scott, A. J., Kappers, M. J., Foxon, C. T., and Humphreys, C. J. *Physical Review B* **66**(12), 125319 (2002).
- [95] Brockt, G. and Lakner, H. *Micron* **31**(4), 435–440 (2000).
- [96] Hosoi, J., Oikawa, T., Inoue, M., Kokubo, Y., and Hama, K. *Ultramicroscopy* **7**(2), 147–153 (1981).
- [97] Lee, C.-W. *Journal of Electron Microscopy* **51**(3), 143–148 (2002).
- [98] Yacobi, B. G. and Holt, D. B. *Cathodoluminescence Microscopy of Inorganic Solids*. Springer, Boston, (1990).
- [99] Loitsch, B., Müller, M., Winnerl, J., Veit, P., Rudolph, D., Abstreiter, G., Finley, J. J., Bertram, F., Christen, J., and Koblmüller, G. *New Journal of Physics* **18**(6), 063009 (2016).
- [100] Smeeton, T. M., Humphreys, C. J., Barnard, J. S., and Kappers, M. J. *Journal of Materials Science* **41**(9), 2729–2737 (2006).
- [101] Xiao, H. Y., Gao, F., Zu, X. T., and Weber, W. J. *Journal of Applied Physics* **105**(12), 123527 (2009).
- [102] Corbett, J. W. *Electron radiation damage in semiconductors and metals*, volume 7 of *Solid state physics. Supplement*. Academic Press, New York, (1966).
- [103] Look, D. C., Reynolds, D. C., Hemsley, J. W., Szelove, J. R., Jones, R. L., and Molnar, R. J. *Physical Review Letters* **79**(12), 2273–2276 (1997).
- [104] Mera, Y., Suzuki, K., and Maeda, K. *Physica B: Condensed Matter* **340-342**, 488–491 (2003).
- [105] Gale, B. and Hale, K. F. *British Journal of Applied Physics* **12**(3), 115–117 (1961).

- [106] Morkoç, H. *Nitride Semiconductors and Devices*, volume 32 of *Springer series in materials science*. Springer, Berlin and Heidelberg, (1999).
- [107] Boyall, N. M., Durose, K., and Watson, I. M. *Material Research Society Symposium Proceeding* **743**, L11.13 (2002).
- [108] Scheel, H., Frank, G., and Strunk, H. P. *physica status solidi (a)* **202**(12), 2336–2343 (2005).
- [109] Ohno, Y., Kawai, Y., and Takeda, S. *Physical Review B* **59**(4), 2694–2699 (1999).
- [110] Steeds, J. W. *Le Journal de Physique Colloques* **50**(C6), C6–65–C6–72 (1989).
- [111] Yuan, J., Berger, S. D., and Brown, L. M. *Journal of Physics: Condensed Matter* **1**(20), 3253–3265 (1989).
- [112] Albrecht, M., Strunk, H. P., Weyher, J. L., Grzegory, I., Porowski, S., and Wosinski, T. *Journal of Applied Physics* **92**(4), 2000 (2002).
- [113] Boyall, N. M. *Combined TEM - cathodoluminescence study of nitride semiconductor structures*. PhD thesis, University of Durham, Durham, (2003).
- [114] Bergmann, L., Schäfer, C., Kassing, R., Blügel, S., Niedrig, H., and Eichler, H.-J. *Lehrbuch der Experimentalphysik: Zum Gebrauch bei akademischen Vorlesungen und zum Selbststudium*. De Gruyter, Berlin, 10th edition, (2004).
- [115] Schmidt, G., Veit, P., Metzner, S., Berger, C., Bertram, F., Dadgar, A., Strittmatter, A., and Christen, J. *Microscopy and Microanalysis* **22**(S3), 602–603 (2016).
- [116] Schmidt, G., Müller, M., Veit, P., Bertram, F., Christen, J., Glauser, M., Carlin, J.-F., Cosendey, G., Butté, R., and Grandjean, N. *Applied Physics Letters* **105**(3), 032101 (2014).
- [117] Nakamura, S., Senoh, M., and Mukai, T. *Japanese Journal of Applied Physics* **32**(1A/B), L8–L11 (1993).
- [118] Elsner, J., Jones, R., Sitch, P. K., Porezag, V. D., Elstner, M., Frauenheim, T., Heggie, M. I., Öberg, S., and Briddon, P. R. *Physical Review Letters* **79**(19), 3672–3675 (1997).
- [119] Shockley, W. *Physical Review* **91**(6), 1563–1564 (1953).
- [120] Read, W. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* **45**(367), 775–796 (1954).

- [121] Elsner, J., Jones, R., Heggie, M. I., Sitch, P. K., Haugk, M., Frauenheim, T., Öberg, S., and Briddon, P. R. *Physical Review B* **58**(19), 12571–12574 (1998).
- [122] Lympirakis, L., Neugebauer, J., Albrecht, M., Remmele, T., and Strunk, H. P. *Physical Review Letters* **93**(19), 196401 (2004).
- [123] Webb, E. B., Zimmerman, J. A., and Seel, S. C. *Mathematics and Mechanics of Solids* **13**(3-4), 221–266 (2008).
- [124] Hirth, J. P. and Lothe, J. *Theory of dislocations*. Krieger Publishing Company, Malabar, 2nd edition, (1992).
- [125] Gmeinwieser, N. and Schwarz, U. T. *Physical Review B* **75**(24), 245213 (2007).
- [126] Shi, C., Asbeck, P. M., and Yu, E. T. *Applied Physics Letters* **74**(4), 573 (1999).
- [127] Vurgaftman, I., Meyer, J. R., and Ram-Mohan, L. R. *Journal of Applied Physics* **89**(11), 5815 (2001).
- [128] Yan, Q., Rinke, P., Janotti, A., Scheffler, M., and Van de Walle, Chris G. *Physical Review B* **90**(12), 125118 (2014).
- [129] Yan, Q., Rinke, P., Scheffler, M., and Van de Walle, Chris G. *Applied Physics Letters* **97**(18), 181102 (2010).
- [130] Chuang, S. L. and Chang, C. S. *Physical Review B* **54**(4), 2491–2504 (1996).
- [131] Gmeinwieser, N., Gottfriedsen, P., Schwarz, U. T., Wegscheider, W., Clos, R., Krtshil, A., Krost, A., Weimar, A., Brüderl, G., Lell, A., and Härle, V. *Journal of Applied Physics* **98**(11), 116102 (2005).
- [132] Davydov, V. Y., Kitaev, Y. E., Goncharuk, I. N., Smirnov, A. N., Graul, J., Semchinova, O., Uffmann, D., Smirnov, M. B., Mirgorodsky, A. P., and Evarestov, R. A. *Physical Review B* **58**(19), 12899–12907 (1998).
- [133] Gil, B. *Physics of Wurtzite nitrides and oxides: Passport to devices*, volume 197 of *Springer Series in Materials Science*. Springer International Publishing, Cham, (2014).
- [134] Coldren, L. A., Corzine, S. W., and Mashanovitch, M. *Diode lasers and photonic integrated circuits*, volume 218 of *Wiley series in microwave and optical engineering*. Wiley, Hoboken and N.J, 2nd edition, (2012).
- [135] Glauser, M., Rossbach, G., Cosendey, G., Levrat, J., Cobet, M., Carlin, J.-F., Besbas, J., Gallart, M., Gilliot, P., Butté, R., and Grandjean, N. *physica status solidi (c)* **9**(5), 1325–1329 (2012).

- [136] Cosendey, G., Carlin, J.-F., Kaufmann, Nils A. K., Butté, R., and Grandjean, N. *Applied Physics Letters* **98**(18), 181111 (2011).
- [137] Glauser, M. *InGaN alloys and heterostructures: impact of localization effects on light-matter interaction in planar microcavities*. PhD thesis, École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Lausanne, (2014).
- [138] Glauser, M., Mounir, C., Rossbach, G., Feltin, E., Carlin, J.-F., Butté, R., and Grandjean, N. *Journal of Applied Physics* **115**(23), 233511 (2014).
- [139] Matthews, J. and Blakeslee, A. *Journal of Crystal Growth* **29**(3), 273–280 (1975).
- [140] Fischer, A., Kühne, H., and Richter, H. *Physical Review Letters* **73**(20), 2712–2715 (1994).
- [141] Holec, D., Zhang, Y., Rao, D. V. Sridhara, Kappers, M. J., McAleese, C., and Humphreys, C. J. *Journal of Applied Physics* **104**(12), 123514 (2008).
- [142] People, R. and Bean, J. C. *Applied Physics Letters* **47**(3), 322 (1985).
- [143] Hums, C. *MOVPE Wachstum und Eigenschaften von AlIn(Ga)N Schichten und Schichtsystemen*. Dissertation, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Magdeburg, (2012).
- [144] Leyer, M., Stellmach, J., Meissner, C., Pristovsek, M., and Kneissl, M. *Journal of Crystal Growth* **310**(23), 4913–4915 (2008).
- [145] Parker, C. A., Roberts, J. C., Bedair, S. M., Reed, M. J., Liu, S. X., and El-Masry, N. A. *Applied Physics Letters* **75**(18), 2776 (1999).
- [146] Bykhovski, A. D., Gelmont, B. L., and Shur, M. S. *Journal of Applied Physics* **81**(9), 6332 (1997).
- [147] Schömig, H., Halm, S., Forchel, A., Bacher, G., Off, J., and Scholz, F. *Physical Review Letters* **92**(10), 106802 (2004).
- [148] Chichibu, S., Wada, K., and Nakamura, S. *Applied Physics Letters* **71**(16), 2346 (1997).
- [149] Bellaiche, L., Mattila, T., Wang, L.-W., Wei, S.-H., and Zunger, A. *Applied Physics Letters* **74**(13), 1842 (1999).
- [150] Watson-Parris, D., Godfrey, M. J., Dawson, P., Oliver, R. A., Galtrey, M. J., Kappers, M. J., and Humphreys, C. J. *Physical Review B* **83**(11), 115321 (2011).

- [151] Schulz, S., Caro, M. A., Coughlan, C., and O'Reilly, E. P. *Physical Review B* **91**(3), 035439 (2015).
- [152] Kent, P. R. C. and Zunger, A. *Applied Physics Letters* **79**(13), 1977 (2001).
- [153] Wang, L.-W. *Physical Review B* **63**(24), 245107 (2001).
- [154] Chichibu, S. F., Uedono, A., Onuma, T., Haskell, B. A., Chakraborty, A., Koyama, T., Fini, P. T., Keller, S., Denbaars, S. P., Speck, J. S., Mishra, U. K., Nakamura, S., Yamaguchi, S., Kamiyama, S., Amano, H., Akasaki, I., Han, J., and Sota, T. *Nature materials* **5**(10), 810–816 (2006).
- [155] Chichibu, S., Sota, T., Wada, K., and Nakamura, S. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures* **16**(4), 2204 (1998).
- [156] Graham, D. M., Soltani-Vala, A., Dawson, P., Godfrey, M. J., Smeeton, T. M., Barnard, J. S., Kappers, M. J., Humphreys, C. J., and Thrush, E. J. *Journal of Applied Physics* **97**(10), 103508 (2005).
- [157] Galtrey, M. J., Oliver, R. A., Kappers, M. J., Humphreys, C. J., Clifton, P. H., Larson, D., Saxey, D. W., and Cerezo, A. *Journal of Applied Physics* **104**(1), 013524 (2008).
- [158] Franke, A. *Licht - Materie - Wechselwirkung in nitridischen Mikrokavitäten*. Dissertation, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Magdeburg, (2012).
- [159] Butté, R. and Grandjean, N. *Semiconductor Science and Technology* **26**(1), 014030 (2011).
- [160] Levrat, J., Butté, R., Christmann, G., Feltin, E., Carlin, J.-F., and Grandjean, N. *physica status solidi (c)* **6**(12), 2820–2827 (2009).
- [161] Yamamoto, Y., Machida, S., and Björk, G. *Physical Review A* **44**(1), 657–668 (1991).
- [162] Bennett, C. and Shor, P. *IEEE Transactions on Information Theory* **44**(6), 2724–2742 (1998).
- [163] Nielsen, M. A. and Chuang, I. L. *Quantum computation and quantum information*. Cambridge University Press, Cambridge, 10th edition, (2000).
- [164] Ladd, T. D., Jelezko, F., Laflamme, R., Nakamura, Y., Monroe, C., and O'Brien, J. L. *Nature* **464**(7285), 45–53 (2010).
- [165] Bimberg, D., Grundmann, M., and Ledentsov, N. N. *Quantum dot heterostructures*. John Wiley, Chichester, 1st edition, (1999).

- [166] Shields, A. J. *Nature Photonics* **1**(4), 215–223 (2007).
- [167] Grundmann, M., Christen, J., Ledentsov, N. N., Böhrer, J., Bimberg, D., Ruvimov, S. S., Werner, P., Richter, U., Gösele, U., Heydenreich, J., Ustinov, V. M., Egorov, A. Y., Zhukov, A. E., Kop'ev, P. S., and Alferov, Z. I. *Physical Review Letters* **74**(20), 4043–4046 (1995).
- [168] Stier, O., Grundmann, M., and Bimberg, D. *Physical Review B* **59**(8), 5688–5701 (1999).
- [169] Michler, Imamoglu, Mason, Carson, Strouse, and Buratto. *Nature* **406**(6799), 968–970 (2000).
- [170] Michler, P., Kiraz, A., Becher, C., Schoenfeld, W. V., Petroff, P. M., Zhang, L., Hu, E., and Imamoglu, A. *Science (New York, N.Y.)* **290**(5500), 2282–2285 (2000).
- [171] Santori, C., Pelton, M., Solomon, G., Dale, Y., and Yamamoto, Y. *Physical Review Letters* **86**(8), 1502–1505 (2001).
- [172] Yuan, Z., Kardynal, B. E., Stevenson, R. M., Shields, A. J., Lobo, C. J., Cooper, K., Beattie, N. S., Ritchie, D. A., and Pepper, M. *Science* **295**(5552), 102–105 (2002).
- [173] Kako, S., Holmes, M., Sergent, S., Bürger, M., As, D. J., and Arakawa, Y. *Applied Physics Letters* **104**(1), 011101 (2014).
- [174] Callsen, G., Carmele, A., Hönig, G., Kindel, C., Brunmeier, J., Wagner, M. R., Stock, E., Reparaz, J. S., Schliwa, A., Reitzenstein, S., Knorr, A., Hoffmann, A., Kako, S., and Arakawa, Y. *Physical Review B* **87**(24), 245314 (2013).
- [175] Tchernycheva, M., Nevou, L., Doyennette, L., Julien, F. H., Warde, E., Guillot, F., Monroy, E., Bellet-Amalric, E., Remmele, T., and Albrecht, M. *Physical Review B* **73**(12), 125347 (2006).
- [176] Schmidt, G., Berger, C., Veit, P., Metzner, S., Bertram, F., Bläsing, J., Dadgar, A., Strittmatter, A., Christen, J., Callsen, G., Kalinowski, S., and Hoffmann, A. *Applied Physics Letters* **106**(25), 252101 (2015).
- [177] Schmidt, G., Veit, P., Berger, C., Bertram, F., Dadgar, A., Strittmatter, A., and Christen, J. *Japanese Journal of Applied Physics* **55**(5S), 05FF04 (2016).
- [178] Rosner, S. J., Carr, E. C., Ludowise, M. J., Girolami, G., and Erikson, H. I. *Applied Physics Letters* **70**(4), 420 (1997).
- [179] Sugahara, T., Sato, H., Hao, M., Naoi, Y., Kurai, S., Tottori, S., Yamashita, K., Nishino, K., Romano, L. T., and Sakai, S. *Japanese Journal of Applied Physics* **37**(4A), L398–L400 (1998).

- [180] Kaschner, A., Hoffmann, A., Thomsen, C., Bertram, F., Riemann, T., Christen, J., Hiramatsu, K., Shibata, T., and Sawaki, N. *Applied Physics Letters* **74**(22), 3320 (1999).
- [181] Riemann, T., Christen, J., Beaumont, B., Faurie, J.-P., and Gibart, P. *Superlattices and Microstructures* **36**(4-6), 833–847 (2004).
- [182] Rouvière, J. L., Simon, J., Pelekanos, N., Daudin, B., and Feuillet, G. *Applied Physics Letters* **75**(17), 2632 (1999).
- [183] Tokumoto, Y., Shibata, N., Mizoguchi, T., Yamamoto, T., and Ikuhara, Y. *Physica B: Condensed Matter* **404**(23-24), 4886–4888 (2009).
- [184] Park, C. H. and Chadi, D. J. *Physical Review B* **55**(19), 12995–13001 (1997).
- [185] Bogusławski, P. and Bernholc, J. *Physical Review B* **56**(15), 9496–9505 (1997).
- [186] Skierbiszewski, C., Suski, T., Leszczynski, M., Shin, M., Skowronski, M., Bremser, M. D., and Davis, R. F. *Applied Physics Letters* **74**(25), 3833 (1999).
- [187] Zeisel, R., Bayerl, M. W., Goennenwein, S. T. B., Dimitrov, R., Ambacher, O., Brandt, M. S., and Stutzmann, M. *Physical Review B* **61**(24), R16283–R16286 (2000).
- [188] Mattila, T. and Nieminen, R. M. *Physical Review B* **54**(23), 16676–16682 (1996).
- [189] Van de Walle, Chris G. *Physical Review B* **57**(4), R2033–R2036 (1998).
- [190] Bastek, B., Bertram, F., Christen, J., Hempel, T., Dadgar, A., and Krost, A. *Applied Physics Letters* **95**(3), 032106 (2009).
- [191] Monroy, E., Zenneck, J., Cherkashinin, G., Ambacher, O., Hermann, M., Stutzmann, M., and Eickhoff, M. *Applied Physics Letters* **88**(7), 071906 (2006).
- [192] Callsen, G., Pahn, G. M. O., Kalinowski, S., Kindel, C., Settke, J., Brunnmeier, J., Nenstiel, C., Kure, T., Nippert, F., Schliwa, A., Hoffmann, A., Markurt, T., Schulz, T., Albrecht, M., Kako, S., Arita, M., and Arakawa, Y. *Physical Review B* **92**(23), 235439 (2015).
- [193] Callsen, G. *Advanced optical signatures of single, wurtzite GaN quantum dots: From fundamental exciton coupling mechanisms towards tunable photon statistics and hybrid-quasiparticles*. Dissertation, TU Berlin, Berlin, (2015).
- [194] Kako, S., Hoshino, K., Iwamoto, S., Ishida, S., and Arakawa, Y. *Applied Physics Letters* **85**(1), 64 (2004).

- [195] Renard, J., Songmuang, R., Bougerol, C., Daudin, B., and Gayral, B. *Nano Letters* **8**(7), 2092–2096 (2008).
- [196] Amloy, S., Yu, K. H., Karlsson, K. F., Farivar, R., Andersson, T. G., and Holtz, P. O. *Applied Physics Letters* **99**(25), 251903 (2011).
- [197] Amloy, S., Karlsson, K. F., Andersson, T. G., and Holtz, P. O. *Applied Physics Letters* **100**(2), 021901 (2012).
- [198] Hönig, G., Rodt, S., Callsen, G., Ostapenko, I. A., Kure, T., Schliwa, A., Kindel, C., Bimberg, D., Hoffmann, A., Kako, S., and Arakawa, Y. *Physical Review B* **88**(4), 045309 (2013).
- [199] Uskov, A. V., Nishi, K., and Lang, R. *Applied Physics Letters* **74**(21), 3081 (1999).
- [200] Lee, J., Koteles, E. S., and Vassell, M. O. *Physical Review B* **33**(8), 5512–5516 (1986).
- [201] Rudin, S. and Reinecke, T. L. *Physical Review B* **41**(5), 3017–3027 (1990).
- [202] Rudin, S., Reinecke, T. L., and Segall, B. *Physical Review B* **42**(17), 11218–11231 (1990).
- [203] Demangeot, F., Simeonov, D., Dussaigne, A., Butté, R., and Grandjean, N. *physica status solidi (c)* **6**(S2), S598–S601 (2009).
- [204] Holmes, M., Kako, S., Choi, K., Arita, M., and Arakawa, Y. *Physical Review B* **92**(11), 115447 (2015).
- [205] Kindel, C., Callsen, G., Kako, S., Kawano, T., Oishi, H., Hönig, G., Schliwa, A., Hoffmann, A., and Arakawa, Y. *physica status solidi (RRL) - Rapid Research Letters* **8**(5), 408–413 (2014).
- [206] Robinson, H. D. and Goldberg, B. B. *Physical Review B* **61**(8), R5086–R5089 (2000).
- [207] Rol, F., Gayral, B., Founta, S., Daudin, B., Eymery, J., Gérard, J.-M., Mariette, H., Le Dang, S., and Peyrade, D. *physica status solidi (b)* **243**(7), 1652–1656 (2006).
- [208] Sergent, S., Kako, S., Bürger, M., As, D. J., and Arakawa, Y. *Applied Physics Letters* **103**(15), 151109 (2013).
- [209] Tang, Y., Rich, D. H., Mukhametzhanov, I., Chen, P., and Madhukar, A. *Journal of Applied Physics* **84**(6), 3342 (1998).
- [210] Thränhardt, A., Ell, C., Khitrova, G., and Gibbs, H. M. *Physical Review B* **65**(3), 035327 (2002).

- [211] Bretagnon, T., Lefebvre, P., Valvin, P., Bardoux, R., Guillet, T., Taliercio, T., Gil, B., Grandjean, N., Semond, F., Damilano, B., Dussaigne, A., and Massies, J. *Physical Review B* **73**(11), 113304 (2006).
- [212] Brunner, D., Angerer, H., Bustarret, E., Freudenberg, F., Höpler, R., Dimitrov, R., Ambacher, O., and Stutzmann, M. *Journal of Applied Physics* **82**(10), 5090 (1997).
- [213] Andreev, A. D. and O'Reilly, E. P. *Applied Physics Letters* **79**(4), 521 (2001).
- [214] Sallen, G., Tribu, A., Aichele, T., André, R., Besombes, L., Bougerol, C., Richard, M., Tatarenko, S., Kheng, K., and Poizat, J.-P. *Nature Photonics* **4**(10), 696–699 (2010).



# Abkürzungsverzeichnis

## Akronyme

ADF	annulares Dunkelfeld (engl. <i>annular dark field</i> )
BF	Hellfeld (engl. <i>bright field</i> )
CCD	engl. <i>charge coupled device</i> )
CL	Kathodolumineszenz (engl. <i>cathodoluminescence</i> )
CLI	Kathodolumineszenzintensitätsbild
DX	tiefe Störstellen
FWHM	Halbwertsbreite (engl. <i>full width at half maximum</i> )
HAADF	Weitwinkeldunkelfeld (engl. <i>high angle annular dark field</i> )
HBT	Hanbury-Brown & Twiss-Interferometer
LHe	Flüssig-Helium (engl. <i>liquid Helium</i> )
LO	longitudinal optisch (engl. <i>longitudinal optical</i> )
MBE	Molekularstrahlepitaxie (engl. <i>molecular beam epitaxy</i> )
ML	Monolage(n) (engl. <i>monolayer</i> )
MOVPE	Metallorganische Gasphasenepitaxie (engl. <i>metal organic vapor phase epitaxy</i> )
MQW	Mehrfachquantenfilm (engl. <i>multiple quantum well</i> )
NBE	bandkanten nahe Emission (engl. <i>near band edge emission</i> )
( $\mu$ )PL	(Mikro-)Photolumineszenz
PMT	Photoelektronenvervielfacher (engl. <i>photomultiplier</i> )
QCSE	Stark-Effekt in Quantenstrukturen (engl. <i>quantum confined Stark effect</i> )
QD	Quantenpunkt (engl. <i>quantum dot</i> )
QW	Quantenfilm (engl. <i>quantum well</i> )
TD	Durchstoßversetzungen (engl. <i>threading dislocation</i> )
TEM	Transmissionselektronenmikroskop/-ie
SEM	Rasterelektronenmikroskop (engl. <i>scanning electron microscope</i> )
SEM-CL	Kathodolumineszenz im Rasterelektronenmikroskop
SQW	Einzelquantenfilm (engl. <i>single quantum well</i> )
STEM	Rastertransmissionselektronenmikroskop/-ie (engl. <i>scanning transmission electron microscope/-y</i> )

STEM-CL	Kathodolumineszenz im Rastertransmissionselektronenmikroskop
TRCL	zeitaufgelöste Kathodolumineszenz (engl. <i>time resolved cathodoluminescence</i> )
UV	ultraviolett
ZLP	Peak des Elektronenenergieverlustspektrums ohne Energieverlust (engl. <i>zero-loss-peak</i> )

## Symbole

$A$	relative Atommasse
$a$	basale Gitterkonstante des Wurtzitkristalls
$b_{E_g}^{ABN}$	<i>bowing</i> -Parameter der Bandlücke des ternären Halbleiters ABN
$b_{P_{sp}}^{ABN}$	<i>bowing</i> -Parameter der spontanen Polarisierung der ternären Halbleiterverbindung ABN
$b_{STEM}$	Verbreiterung des Primärelektronenstrahls im STEM
$b$	Betrag des Burgervektors
$C_{ij}$	Komponenten des Elastizitätstensors
$c$	Gitterkonstante des Wurtzitkristalls
$c_0$	Vakuumlichtgeschwindigkeit
$D$	Diffusivität
$d$	Schichtdicke
$d_{cv}$	optisches Dipol-Matrix-Element des Intrabandübergangs
$D_{ph}$	photonische Zustandsdichte
$e$	Elementarladung
$E_0$	Ruhenergie
$E_e$	Primärelektronenenergie ändern?
$E_g$	Bandlückenenergie
$E_i$	Bildungsenergie von Elektron-Loch-Paaren
$\overline{\Delta E_{inel}}$	mittlerer Energieverlust der Primärelektronen pro inelastischer Streuung
$E'_A _{max}$	maximale kinetische Energie des Atoms nach Stoßprozess mit Elektron
$E_p$	Plasmonenenergie
$E_{ph}$	Energie des Photons / der Kavitätsmode
$\Delta E_{ph}$	spektrale Breite der Photonmode
$F$	Finesse der Kavität
$G_0$	Generationsrate der Überschussladungsträger
$g_{th}$	Verstärkung bei Einsetzen der Lasertätigkeit
$\hbar$	reduziertes Plancksches Wirkungsquantum
$I$	Intensität einer elektromagnetischen Welle
$ I $	Überlappintegral der Elektron- und Lochwellenfunktion
$I_e$	Strom des einfallenden Primärelektronenstrahls
$I_{EEL}$	Intensität des Elektronenenergieverlustes ändern? in $I_{EEL}$
$I_{HAADF}$	Elektronenintensität des Weitwinkeldetektors
$k$	Betrag des Wellenvektors
$k_{\perp}$	senkrechte Komponente des Wellenvektors
$k_{\parallel}$	laterale Komponente des Wellenvektors

$L_{diff}$	Diffusionslänge der Überschussladungsträger
$l_{imfp}$	mittlere freie Weglänge der Primärelektronen bei inelastischer Streuung
$M_A$	Ruhmasse des Atoms
$m_e$	Ruhmasse des Elektrons
$m_{ph}^*$	effektive Masse des Kavitätsphotons
$n$	Brechungsindex
$\Delta n$	Überschussladungsträgerdichte ändern?
$\bar{N}_{inel}$	mittlere Anzahl inelastischer Stöße je Primärelektron
$N_{ph}$	Anzahl photonischer Moden
$P$	Wahrscheinlichkeit
$P_{in}$	eingestrahlte Leistung durch Primärelektronenstrahl
$Q_c$	Qualitätsfaktor der Kavität
$dQ/dz$	generierte Wärme pro Einheitslänge
$r$	radialer Abstand zur Elektronensonde
$R_{probe}$	Durchmesser des einfallenden Primärelektronenstrahls
$R$	Reflektivität
$\Delta R$	laterale Anregungsweite des Primärelektronenstrahls
$s$	Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit der Überschussladungsträger
$T$	Temperatur
$Z$	Ordnungszahl
$\alpha_{int}$	interne optische Verluste in der Mikrokavität
$\Gamma$	relativer Füllfaktor
$\Gamma_{app}$	Linienverbreiterung durch Auflösungsgrenze
$\Gamma_{exc}$	Linienbreite eines QD-Exzitons
$\Gamma_{(in)hom}$	inhomogene Linienverbreiterung
$\epsilon_0$	Permittivität des Vakuums
$\epsilon_{ij}$	Komponenten des Verzerrungstensors
$\kappa$	Wärmeleitfähigkeit
$\theta$	Einfalls-/Ausfallswinkel
$\rho$	Massendichte
$\tau$	Verzögerungszeit
$\tau_{ini}$	anfängliche Lebensdauer
$\tau_{life}$	Lebensdauer der Überschussladungsträger
$\tau_{rad}$	strahlende Lebensdauer der Überschussladungsträger

# Publikationsliste

## Publikationen in chronologischer Reihenfolge:

- **Gordon Schmidt**, Peter Veit, Sebastian Metzner, Christoph Berger, Frank Bertram, Armin Dadgar, André Strittmatter und Jürgen Christen, *Nanoscale Cathodoluminescence of an InGaN Single Quantum Well Intersected by Individual Dislocations*, *Microscopy and Microanalysis* **22**, 602 (2016), doi: 10.1017/S143192761600386X
- Frank Bertram, Marcus Müller, **Gordon Schmidt**, Peter Veit, Silke Petzold, Steven Albert, Ana María Bengoechea-Encabo, Miguel Ángel Sánchez-García, Enrique Calleja und Jürgen Christen, *Nanoscale Imaging of Structural and Optical Properties Using Helium Temperature Scanning Transmission Electron Microscopy Cathodoluminescence of Nitride Based Nanostructures*, *Microscopy and Microanalysis* **22**, 600 (2016), doi: 10.1017/S1431927616003858
- **Gordon Schmidt**, Peter Veit, Christoph Berger, Frank Bertram, Armin Dadgar, André Strittmatter und Jürgen Christen, *Clustered quantum dots in single GaN islands formed at threading dislocations*, *Japanese Journal of Applied Physics* **55**, 05FF04 (2016), doi: 10.7567/JJAP.55.05FF04
- Marcus Müller, **Gordon Schmidt**, Sebastian Metzner, Peter Veit, Frank Bertram, Sergiy Krylyuk, Ratan Debnath, Jong-Yoon Ha, Baomei Wen, Paul Blanchard, Abhishek Motayed, Matthew R. King, Albert V. Davydov und Jürgen Christen, *Structural and optical nanoscale analysis of GaN core-shell microrod arrays fabricated by combined top-down and bottom-up process on Si(111)*. *Japanese Journal of Applied Physics* **55**, 05FF02 (2016) doi: 10.7567/JJAP.55.05FF02

- Christoph Berger, Andreas Lesnik, Thomas Zettler, **Gordon Schmidt**, Peter Veit, Armin Dadgar, Jürgen Bläsing, Jürgen Christen und André Strittmatter, *Metalorganic chemical vapor phase epitaxy of narrow-band distributed Bragg reflectors realized by GaN:Ge modulation doping*, Journal of Crystal Growth **440**, 6 (2016), doi: 10.1016/j.jcrysgro.2016.01.027
- Jan Wagner, Clemens Wächter, Johannes Wild, Marcus Müller, Sebastian Metzner, Peter Veit, **Gordon Schmidt**, Michael Jetter, Frank Bertram, Josef Zweck, Jürgen Christen und Peter Michler, *Defect reduced selectively grown GaN pyramids as template for green InGaN quantum wells*, physica status solidi (b) **253**, 67 (2015), doi: 10.1002/pssb.201552427
- Marcus Müller, **Gordon Schmidt**, Sebastian Metzner, Peter Veit, Frank Bertram, Robert Anton Richard Leute, Dominik Heinz, Junjun Wang, Tobias Meisch, Ferdinand Scholz und Jürgen Christen, *Nanoscale cathodoluminescence imaging of III-nitride-based LEDs with semipolar quantum wells in a scanning transmission electron microscope*, physica status solidi (b) **253**, 112 (2015), doi: 10.1002/pssb.201552474
- **Gordon Schmidt**, Peter Veit, Matthias Wieneke, Frank Bertram, Armin Dadgar, Alois Krost und Jürgen Christen, *Nanoscale cathodoluminescence of stacking faults and partial dislocations in a-plane GaN*, physica status solidi (b) **253**, 73 (2015), doi: 10.1002/pssb.201552451
- Robert A. R. Leute, Dominik Heinz, Junjun Wang, Tobias Meisch, Marcus Müller, **Gordon Schmidt**, Sebastian Metzner, Peter Veit, Frank Bertram, Jürgen Christen, Martin Martens, Tim Wernicke, Michael Kneissl, Stefan Jenisch, Steffen Strehle, Oliver Rettig, Klaus Thonke und Ferdinand Scholz, *Embedded GaN nanostripes on c-sapphire for DFB lasers with semipolar quantum wells*, physica status solidi (b) **253**, 180 (2015), doi: 10.1002/pssb.201552277

- Arne Urban, Marcus Müller, Christopher Karbaum, **Gordon Schmidt**, Peter Veit, Joerg Malindretos, Frank Bertram, Jürgen Christen und Angela Rizzi, *Optical emission of individual GaN nanocolumns analyzed with high spatial resolution*, Nano Letters **15**, 5105 (2015), doi: 10.1021/acs.nanolett.5b01278
- **Gordon Schmidt**, Christoph Berger, Peter Veit, Sebastian Metzner, Frank Bertram, Jürgen Bläsing, Armin Dadgar, André Strittmatter, Jürgen Christen, Gordon Callsen, Stefan Kalinowski und Axel Hoffmann, *Direct evidence of single quantum dot emission from GaN islands formed at threading dislocations using nanoscale cathodoluminescence: A source of single photons in the ultraviolet*, Applied Physics Letters **106**, 252101 (2015), doi: 10.1063/1.4922919
- Christoph Berger, Armin Dadgar, Jürgen Bläsing, Andreas Lesnik, Peter Veit, **Gordon Schmidt**, Thomas Hempel, Jürgen Christen, Alois Krost und André Strittmatter, *Growth of AlInN/GaN distributed Bragg reflectors with improved interface quality*, Journal of Crystal Growth **414**, 105 (2014), doi: 10.1016/j.jcrysgro.2014.09.008
- **Gordon Schmidt**, Marcus Müller, Peter Veit, Frank Bertram, Jürgen Christen, Marlene Glauser, Jean-François Carlin, Gatien Cosendey, Raphael Butté und Nicolas Grandjean, *Nano-scale luminescence characterization of individual InGaN/GaN quantum wells stacked in a microcavity using scanning transmission electron microscope cathodoluminescence*, Applied Physics Letters **105**, 032101 (2014), doi: 10.1063/1.4890670

- Steven Albert, Ana María Bengoechea-Encabo, Francesca Barbagini, David López-Romero, Miguel Ángel Sánchez-García, Pierre Lefebvre, Xiang Kong, Uwe Jahn, Achim Trampert, Marcus Müller, Frank Bertram, **Gordon Schmidt**, Peter Veit, Silke Petzold, Jürgen Christen, Philippe De Mierry, Jesus Zuñiga-Perez und Enrique Calleja,  
*Advances on MBE Selective Area Growth of III- Nitride nanostructures: from nano-LEDs to pseudo substrates,*  
 International Journal of High Speed Electronics and Systems **23**, 1450020 (2014),  
 doi: 10.1142/S0129156414500207
- Frank Bertram, Marcus Müller, **Gordon Schmidt**, Peter Veit, Jürgen Christen, Arne Urban, Joerg Malindretos und Angela Rizzi,  
*Extended defects in GaN nanocolumns characterized by cathodoluminescence directly performed in a transmission electron microscope,*  
 Turkish Journal of Physics **38**, 323 (2014),  
 doi: 10.3906/fiz-1405-5
- Steven Albert, Ana María Bengoechea-Encabo, María Sabido-Siller, Marcus Müller, **Gordon Schmidt**, Sebastian Metzner, Peter Veit, Frank Bertram, Miguel Ángel Sánchez-García, Jürgen Christen und Enrique Calleja,  
*Growth of InGaN/GaN core-shell structures on selectively etched GaN rods by molecular beam epitaxy,*  
 Journal of Crystal Growth **392**, 5 (2014),  
 doi: 10.1016/j.jcrysgro.2014.01.030
- Marcus Müller, **Gordon Schmidt**, Sebastian Metzner, Frank Bertram, Silke Petzold, Peter Veit, Jürgen Christen, Clemens Wächter, Michael Jetter und Peter Michler,  
*Direct imaging of GaN pyramids covered by InGaN single quantum well using nano-scale Scanning Transmission Electron Microscopy Cathodoluminescence,*  
 Microscopy and Microanalysis **18**, 1838 (2012),  
 doi: 10.1017/S143192761201104X
- Frank Bertram, Jürgen Christen, **Gordon Schmidt**, Peter Veit, Christoph Berger und Alois Krost,  
*Direct nano-scale correlation of structural and optical properties of lattice matched AlInN/AlGaN DBRs using helium temperature scanning transmission electron microscopy cathodoluminescence,*  
 Microscopy and Microanalysis **18**, 1874 (2012),  
 doi: 10.1017/S1431927612011221

- Jürgen Christen, Frank Bertram, **Gordon Schmidt**, Peter Veit, Silke Petzold, Roghaiyeh Ravash, Armin Dadgar und Alois Krost,  
*Cathodoluminescence directly performed in a transmission electron microscope: nanoscale correlation of structural and optical properties*,  
Microscopy and Microanalysis **18**, 1834 (2012),  
doi: 10.1017/S1431927612011026
- **Gordon Schmidt**, Marcus Müller, Frank Bertram, Peter Veit, Silke Petzold, Aparna Das, Eva Monroy und Jürgen Christen,  
*Highly spatially resolved Cathodoluminescence of Single GaN Quantum Dots directly performed in a Scanning Transmission Electron Microscope*,  
Microscopy and Microanalysis **18**, 1878 (2012),  
doi: 10.1017/S1431927612011245
- Roghaiyeh Ravash, Peter Veit, Mathias Müller, **Gordon Schmidt**, Anja Dempewolf, Thomas Hempel, Jürgen Bläsing, Frank Bertram, Armin Dadgar, Jürgen Christen und Alois Krost,  
*Growth and stacking fault reduction in semi-polar GaN films on planar Si(112) and Si(113)*,  
physica status solidi (c) **9**, 507 (2012),  
doi: 10.1002/pssc.201100532
- Armin Dadgar, Roghaiyeh Ravash, Peter Veit, **Gordon Schmidt**, Matthias Müller, Anja Dempewolf, Frank Bertram, Matthias Wieneke, Jürgen Christen und Alois Krost,  
*Eliminating stacking faults in semi-polar GaN by AlN interlayers*,  
Applied Physics Letters **99**, 021905 (2011),  
doi: 10.1063/1.3610467

#### andere wissenschaftliche Leistungen:

- **Tyngye Li Memorial Poster Award** (erster Platz, Erstautor)  
August 2013 – International Nano-Optoelectronic Workshop (Cargèse, Korsika)  
*Individual GaN Quantum Dots imaged by low temperature cathodoluminescence spectroscopy in a STEM*
- **Poster Award – Physical Sciences** (erster Platz, Erstautor)  
August 2012 - Microscopy and Microanalysis 2012 (Phoenix)  
*Highly spatially resolved Cathodoluminescence of single GaN Quantum Dots directly performed in a Scanning Transmission Electron Microscope*



# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all jenen bedanken, die zur Entstehung und Fertigstellung dieser Arbeit beigetragen haben.

Herr Prof. Jürgen Christen ermöglichte mir nicht nur die Bearbeitung interessanter und aktueller Themen der Halbleiterphysik während meiner Promotionsphase. Er brachte mir auch das Vertrauen entgegen, an einer einzigartigen, nicht etablierten Messapparatur zu forschen. Ich danke ihm für die Möglichkeit in seiner Arbeitsgruppe eigenverantwortlich und selbstständig zu forschen, für seine Unterstützung und für seine Förderung.

Ich danke Herrn Prof. Dr. Martin Eickhoff für die sorgfältige Begutachtung dieser Arbeit und für die kritischen Kommentare und Fragen während meiner Verteidigung.

Ich bedanke mich bei dem Vorsitzenden der Prüfungskommission Herrn Prof. Dr. Jan Wiersig für die Prüfungsleitung sowie allen Kommissionsmitgliedern für die investierte Zeit, sich mit meiner Arbeit auseinanderzusetzen.

Ein besonderer Dank gilt Frau Silvia Simon, die sich für einen schnellen Ablauf meines Promotionsverfahrens eingesetzt hat.

Ich bedanke mich bei der Deutschen Forschungsgemeinschaft und dessen Sonderforschungsbereich 787 (SFB 787) für die finanzielle Unterstützung.

Ich bedanke mich bei Herrn Prof. Christian Thomson, Herrn Prof. Andreas Knorr, Frau Prof. Janina Maultzsch, Herrn Prof. Jürgen Christen und dem Vorstand des SFBs 787 für die Aufnahme in die School of Nanophotonics. Dadurch wurde mir neben der Teilnahme an Seminaren, Weiterbildungen, Workshops, *soft-skill*-Kursen und dem wissenschaftlichen Austausch mit externen Forschern auch die Teilnahme an internationalen Konferenzen ermöglicht.

Ich bedanke mich bei Herrn PD Dr. Frank Bertram für die Begleitung und Unterstützung meiner Forschungen. Er förderte und forderte mich stets. Innerhalb meiner Promotionsphase gab er mir immer wieder neue Ideen zur Verbesserung von Experimenten und half mir jederzeit bei der Interpretation der Messdaten. Seine Programmierung der *xclmd*-Software war entscheidend für die umfassende Auswertung von STEM-CL-Daten. Neben der Bewäl-

tigung alltäglicher bürokratischer Hürden half er mir bei der Planung zur Teilnahme an Konferenzen.

An der Seite von Herrn Dr. Peter Veit bestritt ich die experimentelle Arbeit an der STEM-CL-Apparatur. Seine Bereitschaft zu kritischen und spannenden Diskussionen sowie sein unermüdliches Engagement haben maßgeblich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen. Er hatte immer ein offenes Ohr für meine wissenschaftlichen Fragestellungen und arbeitete aufopfernd mit mir an deren Beantwortung. Ohne seine enorme Ausdauer, gute Laune und kulinarische Verpflegung wäre so mancher Messtag zur Strapaze geworden. Seine umsichtige und ausgeglichene Art zeigten mir darüber hinaus, wie man schwierige Situationen aller Art bewältigen kann. Ich danke ihm vielmals für all das!

Frau Dipl.-Phys. Silke Petzold und Frau Petra Krenz haben während meiner Promotionsphase die Präparation der TEM-Lamellen in äußerst präziser, geschickter und ausdauernder Art und Weise durchgeführt. Dabei fertigten Sie unzählige TEM-Lamellen an und ließen sich nie von speziellen Zielpräparationen abschrecken. Die bei jeder Probe genauestens dokumentierten Arbeitsschritte halfen mir bei so mancher Rückfrage. Ihre Arbeit ebnete den Erfolg meiner STEM-CL-Untersuchungen. Ich danke beiden für Ihre Arbeit!

Ich bedanke mich bei der gesamten Arbeitsgruppe „Halbleiterepitaxie“ um Herrn Prof. André Strittmatter und Herrn Prof. Armin Dadgar für die Zurverfügungstellung von hochwertigem Probenmaterial. Insbesondere hat Herr Dipl.-Phys. Christoph Berger immer wieder Mikrokavitäten und Quantenpunkte exzellenter struktureller Qualität bereitgestellt. Seine ausgezeichneten Proben bilden die Grundlage dieser Dissertation. Ich danke Herrn Dipl.-Phys. Matthias Wieneke und Herrn Dipl.-Phys. Silvio Neugebauer für die Möglichkeit ihre Proben zu untersuchen. Auch wenn die Ergebnisse nicht in diese Arbeit eingeflossen sind, so stellen sie dennoch einen enormen wissenschaftlichen Mehrwert dar.

Ich danke Herrn Prof. Alois Krost für seine Beiträge zu dieser Arbeit. Unter seiner Obhut und federführend wurden in der Arbeitsgruppe „Halbleiterepitaxie“ Proben hergestellt, die ich während meiner Promotionsphase charakterisiert habe. Aufgrund äußerst unglücklicher Umstände konnte er jedoch eine Vielzahl an Ergebnissen seiner Proben nicht erfahren.

Herrn Prof. Dr. Nicolas Grandjean, Herrn Dr. Raphael Butté und Frau Dr. Marlene Glauser danke ich für die Bereitstellung von hervorragendem Probenmaterial.

Ich danke allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe „Festkörperphysik“, die mich sehr herzlich aufgenommen haben und mir jederzeit mit Rat und Tat zur Seite standen.

Herrn Dr. Thomas Hempel danke ich für die vielen elektronenmikroskopischen Untersuchungen und den vielen Ratschlägen fernab der Wissenschaft. Für die ständige Unterstützung und Hilfe im PL-Labor bedanke ich mich bei Herrn Dipl.-Ing. Stephan Sterling. Er hatte immer ein offenes Ohr für meine Verbesserungsvorschläge im PL-Laboralltag und

setzte diese in die Tat um. Darüber hinaus nahm er mir viele Vorbereitungsarbeiten ab und versorgte mich bei so manch langwieriger Messung mit Kaffee. Ich bedanke mich bei Herrn Dipl.-Phys. Sebastian Metzner für die vielen Untersuchungen an der SEM-CL. Seine Ergebnisse dienten nicht nur zur Orientierung für nachfolgende STEM-CL-Experimente, sondern lieferten neue interessante Fragestellungen und halfen bei der Interpretation. Frau Dipl.-Phys. Anja Dempewolf und Frau Dipl.-Phys. Olga August danke ich für die vielen Zuarbeiten.

Ich danke allen Mitarbeitern der Werkstatt: Jürgen Weißenborn, Diana Ehrlich, Dirk Ehrlich und Thomas Saar! Meine Konstruktionen und Bauteile haben sie jeder Zeit zuverlässig und schnell verwirklicht. Dabei standen sie mir bei fertigungs-/konstruktionstechnischen Fragen mit Rat und Tat zur Seite.

Ganz besonderer Dank gilt Herrn Dipl.-Phys. Marcus Müller. Seite an Seite haben wir an der erfolgreichen Umsetzung und an ein tiefgreifendes Verständnis von STEM-CL-Experimenten gearbeitet. In unserer engen wissenschaftlichen Zusammenarbeit waren wir gemeinsam darauf aus, die STEM-CL-Gruppe voranzutreiben. Dabei halfen mir unsere wissenschaftliche Diskussionen. Vielen Dank!

Ich bedanke mich bei meinen Kollegen und Freunden Marcus, Christopher, Mathias, Jonas und Christoph für die kritischen Diskussionen zu meinen physikalischen Fragestellungen (auch wenn ihr dazu mal keine Lust hattet) und natürlich für die vielen lustigen Momente auf und neben der Arbeit. Mit Euch haben die Konferenzen gleich doppelt so viel Spaß gemacht! Danke dafür!

Mein aufrichtiger Dank geht an meine Eltern und mein Bruder für die bedingungslose Unterstützung, Liebe und Stolz.

Mein tiefster Dank gilt Christin für Ihre Liebe, Ihre aufopfernde Unterstützung, Ihr unermüdliches Verständnis und Ihre Engelsgeduld im Verlauf meiner Promotionsphase und meiner ganzen physikalischen Exkursionen davor und währenddessen. Ohne Dich und Deinen moralischen Rückhalt wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen. Es gibt keine größere Stütze als einen Grund zu haben, nach Haus zu kommen und zusammen mit Dir und Gregor die alltägliche Arbeit zu vergessen. Danke!



# Lebenslauf

## Persönliche Daten

Name	Gordon Schmidt
Wohnsitz	Wilhelm-Raabe-Straße 7, 39108 Magdeburg
Geburtsdatum und -ort	06.09.1985, Staßfurt
Familienstand	ledig
Staatszugehörigkeit	deutsch

---

## Schulbildung

1991-1995	Grundschule Löderburg
1995-1996	Salzlandgymnasium
1996-2005	Dr.-Frank-Gymnasium
	Allgemeine Hochschulreife, Note: 1,8

---

## Studium

2005-2011	Physikstudium Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg Diplomnote: 1,2
-----------	---

---

## Beruflicher Werdegang

05.2008-06.2011	Hilfswissenschaftler Fraunhofer Institut für Fabrikbetrieb und -automatisierung
seit 08.2011	Mitglied der Graduiertenschule School of Nanophotonics (Sonderforschungsbereich 787)
seit 12.2011	wissenschaftlicher Mitarbeiter und Doktorand Institut für Experimentelle Physik Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg
07.2012-09.2012	Forschungsaufenthalt Nanoscience and Materials Physics (Prof. Ponce) Arizona State University (Tempe, Arizona USA)

Magdeburg, den 18. Dezember 2017

Dipl.-Phys. Gordon Schmidt



# Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die von mir eingereichte Dissertation zu dem Thema:

**„Optische Nanocharakterisierung  
GaN-basierter Quantenstrukturen für Mikrokavitäten“**

selbstständig verfasst, nicht schon als Dissertation verwendet habe und die benutzten Hilfsmittel und Quellen vollständig angegeben wurden. Weiterhin erkläre ich, dass ich weder diese noch eine andere Arbeit zur Erlangung des akademischen Grades doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.) an anderen Einrichtungen eingereicht habe.

Magdeburg, den 18. Dezember 2017

Dipl.-Phys. Gordon Schmidt

