

# Kapitel 1

## Einleitung

Die letzten Jahre sind durch die rasante Entwicklung der Herstellungsprozesse niederdimensionaler Strukturen (sogenannte „Nanostrukturen“) gekennzeichnet, sei es im Bereich der Biologie, der Chemie oder der Festkörperphysik. In der Halbleiterbranche werden durch Fortschritte in der Wachstums- oder Mikrostrukturierungstechnologie immer kleinere Strukturen mit immer besserer Qualität und Reproduzierbarkeit hergestellt. Dies ist für industrielle Anwendungen hochinteressant: Die Strukturgröße aktueller elektronischen Elemente liegt weit unterhalb von einem Mikrometer, und Millionen davon befinden sich in einem Mikroprozessor.

Durch die Reduzierung der Dimensionen treten quantenmechanischen Eigenschaften auf. In quasi-nulldimensionalen Systemen werden nur diskrete Energieniveaus besetzt. Ein Exziton in Nanostrukturen kann außerdem wie jedes quantenmechanische Teilchen als Welle betrachtet werden und durch seine Wellenfunktion und seine Phase beschrieben werden. Bleibt die Phase erhalten, kann das quantenmechanische Teilchen Interferenzen zeigen. Bleibt die Phase nicht erhalten, geht die Kohärenz der Ortswellenfunktion verloren. Nanostrukturen wecken durch diese neuen Eigenschaften das Interesse für neue optoelektronische Bauteile (Leuchtdioden im sichtbaren Bereich, Laser mit niedrigerer Inversionsschwelle, Quantenverarbeitung). Daher ist es wichtig, das Verhalten der Exzitonen in Nanostrukturen, wie z. B. die Besetzung der einzelnen Zustände in quasi-nulldimensionalen Systemen, zu verstehen. Gerade im Hinblick auf kohärente Manipulation ist es ebenso wichtig, die Kohärenzzeiten und Kohärenzlängen der Exzitonwellenfunktion zu erforschen. Neueste Fortschritte im Bereich der ortsauflösenden linearen Spektroskopie erlauben es jetzt, mit einer sub- $\mu\text{m}$ -räumlichen Auflösung die optischen Prozesse in Nanostrukturen direkt zu beobachten.

Quasi-nulldimensionale Systeme (Quanteninseln- oder Quantenpunktsysteme) wer-

den derzeit intensiv untersucht. Das Interesse liegt dabei meistens in der Spektroskopie einzelner Zustände in den Inseln [1, 2, 3]. Die in dieser Arbeit vorgestellte Untersuchung betrachtet dagegen ein Ensemble von Exzitonen, und ist der Umverteilung zwischen unterschiedlichen Zuständen gewidmet.

In quasi-zweidimensionalen Systemen ist der in-plane Transport der Exzitonen ein wichtiges Thema. Bis jetzt wurde aber nur der inkohärente Bereich untersucht [4, 5]. Im Rahmen dieser Arbeit wird auf die kohärente Phase näher eingegangen.

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der räumlichen Ausbreitung der Exzitonen in niederdimensionalen Heterostrukturen und nimmt unterschiedliche Aspekte der räumlichen und energetischen Relaxation der Exzitonen unter die Lupe:

- Die thermisch aktivierte Umverteilung von Exzitonen zwischen lokalisierten Einzelzuständen in quasi-nulldimensionalen Systemen.
- Die Energielaxation der Exzitonen in Quantenfilmen und ihre Ortsabhängigkeit
- Die Dynamik des räumlichen Transports von Exzitonen in Quantenfilmen im kohärenten Bereich.

### **Gliederung der Arbeit**

Am Anfang werden die zum Verständnis dieser Arbeit relevanten Begriffe der Halbleiteroptik in *Kapitel 2* erläutert. Die experimentellen Messmethoden zur Charakterisierung und die Methoden zur Steigerung der Orts- und Zeitauflösung werden dann in *Kapitel 3* vorgestellt. Anschließend werden die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Proben in *Kapitel 4* strukturell sowie optisch charakterisiert.

*Kapitel 5* befasst sich mit der Energielaxation der Exzitonen, einerseits in Quanteninsel-Systemen und andererseits in Mehrfachquantenfilm-Strukturen. Bei den Quanteninseln wird die Art der räumlichen Relaxation diskutiert und anhand einer Monte Carlo-Simulation der Exzitonendynamik die Frage geklärt, ob der Exzitonentransfer zwischen benachbarten Inseln oder zwischen räumlich getrennten Zuständen innerhalb einer inhomogenen Insel erfolgen kann. Nach diesem System mit stark lokalisierten Zuständen und deren quasi-nulldimensionalen-Eigenschaften wird die Energielaxation und das Thermalisieren der Exzitonen in Systemen, in denen ihre Bewegung nur noch in einer Raumrichtung eingeschränkt ist, d.h. in Quantenfilmen, diskutiert. Dabei wird mit Hilfe der sogenannten Phononseitenbanden-Spektroskopie die Energie der Exzitonerverteilung direkt beobachtet. Der Einfluss der Dimensionsreduzierung sowie die Ortsabhängigkeit der Energielaxationszeiten werden diskutiert.

---

Die Dynamik des räumlichen Transports von Exzitonen in Quantenfilmen steht im Mittelpunkt der Kapitel 6 und 7. Im *Kapitel 6* werden auf ZnSe Filmen basierende II-VI-Heterostrukturen mit unterschiedlichen strukturellen Eigenschaften untersucht. Es wird experimentell gezeigt und auch modelliert, dass der Transport in einer ersten Phase nicht-diffusive Eigenschaften besitzt. Es wird außerdem zum ersten Mal gleichzeitig die Kohärenzzeit und vor allem die bisher wenig untersuchte Kohärenzlänge der Exzitonenwellenfunktion ermittelt. Temperatur- sowie Lokalisierungseffekte werden anschließend diskutiert. Die experimentellen Befunde werden von einer Monte Carlo-Simulation des exzitonischen Transports unterstützt. *Kapitel 7* stellt experimentelle Ergebnisse zum Transport von Exzitonen in III-V-Heterostrukturen vor. Diese Studie bringt neue Erkenntnisse zur Diskussion um die Bildung von Exzitonen. Am Ende werden die wichtigen Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst.



# Kapitel 2

## Allgemeine Grundlagen

Zunächst wird in diesem Kapitel auf die Grundlagen der Halbleiterspektroskopie eingegangen. Nach diesem eher theoretischen Teil folgt ein experimentell orientierter Teil über Halbleiterheterostrukturen und deren Herstellung. Daran anschließend werden die im Rahmen dieser Arbeit relevanten Konstanten und spezifischen Parameter der verwendeten Materialsysteme angegeben.

### 2.1 Kristallstruktur

Die Halbleitermaterialien, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurden, sind binäre II-VI (ZnSe, CdSe, MgS), bzw. III-V (GaAs, AlAs) Verbindungshalbleiter. Alle kristallisieren in der thermodynamisch stabilen Zinkblendestruktur. Bei CdSe und ZnS existiert zwar auch eine hexagonale Kristallstruktur; bei den gewählten Wachstumsbedingungen kristallisieren CdSe und ZnSe in der kubischen Phase. Abb. 2.1a. zeigt die atomare Anordnung der Zinkblendestruktur, die aus zwei kubischflächenzentrierten Bravais-Gittern mit einer zweiatomigen (A-B) Basis und der Gitterkonstanten  $a$  besteht. Dabei sind die B-Atome gegenüber den A-Atomen um den Wert  $\frac{a}{4} [1,1,1]$  verschoben.

Die A-Atome sind mit vier B-Atomen gebunden, wobei der kovalente Anteil der Bindung mit  $sp^3$ -Hybridisierung beschrieben wird. Der ionische (polare) Anteil der Bindung ist im Fall der II-VI Proben größer als bei den III-V Heterostrukturen – die II-VI Bindung hat einen größeren ionischen Anteil, was zu unterschiedlichen optischen Eigenschaften führt.

Für die Zinkblendestruktur kann mit Hilfe einer Pseudopotentialrechnung die Bandstruktur ermittelt werden [6]. Sie ist in Abb. 2.1.c. in der Nähe des Zentrums der