

3-dimensionale GaN-Nanostrukturen – Grundlagen neuartiger Leuchtdioden

Werner Bergbauer



Cuvillier Verlag Göttingen
Internationaler wissenschaftlicher Fachverlag



3-dimensionale GaN-Nanostrukturen - Grundlagen neuartiger Leuchtdioden -

Von der Fakultät für Elektrotechnik, Informationstechnik, Physik
der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig

zur Erlangung der Würde eines

Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)

genehmigte Dissertation

von Werner Bergbauer aus Regensburg

eingereicht am: 04.04.2011

mündliche Prüfung am: 31.05.2011

Referent: Prof. Dr. rer. nat. Andreas Waag

Koreferent: Prof. Dr. rer. nat. Meinhard Schilling

2011

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen
Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über
<http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

1. Aufl. - Göttingen: Cuvillier, 2011

Zugl.: (TU) Braunschweig, Univ., Diss., 2011

978-3-86955-833-2

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2011

Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen

Telefon: 0551-54724-0

Telefax: 0551-54724-21

www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung
des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile
daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie)
zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2011

Gedruckt auf säurefreiem Papier

978-3-86955-833-2

Inhaltsverzeichnis

Abstract	1
Kurzbeschreibung	3
1. Einleitung und Motivation	7
2. Grundlagen	13
2.1. Das Materialsystem AlInGaN	13
2.1.1. Materialeigenschaften	13
2.1.2. Das ternäre Materialsystem InGaN	16
2.1.3. Piezoelektrische Felder	17
2.2. Licht emittierende Dioden (LED)	19
2.2.1. Der Schichtaufbau einer LED	20
2.2.2. Die Dünnschicht LED	21
2.2.3. Effizienz	22
2.2.4. Weiße LEDs	25
2.3. Grundlagen der Metallorganischen Gasphasen-Epitaxie	26
2.3.1. Reaktoreigenschaften	26
2.3.2. Alkyle und Hydride	27
2.3.3. Substrate	29
2.3.4. Wachstumsprozesse	30
2.3.5. Dotierung	32
2.3.6. Wachstum von InGaN	33
3. GaN-Nanosäulen - Stand der Technik	35
3.1. Wachstum von GaN-Nanosäulen	36
3.2. Einbau von Indium	39
3.3. Chiptechnologie	42
4. Das Wachstum von geordneten Nanosäulen	45
4.1. Positionskontrolle des Nanosäulenwachstums: Templateherstellung	46
4.1.1. Verwendete Lithographieverfahren	46
4.1.2. Masken- und Stempeldesign	49
4.2. Prozesssteuerung: MOVPE-Wachstum	52
4.2.1. Trägergaskomposition	53
4.2.2. Wachstumszeit	60
4.2.3. Temperatur	62
4.2.4. Kristallorientierung	66
4.2.5. Wachstumsprozess	72

4.3. Evaluation der Materialqualität	79
4.3.1. Strukturelle Besonderheiten	80
4.3.2. Optische Eigenschaften und Nachweis von Verunreinigungen und Defekten	85
5. Die Epitaxie von NanoLEDs	91
5.1. Einbau von Indium: Ternäre Verbindungen für die aktive Zone	91
5.1.1. Optische Eigenschaften	92
5.1.2. Strukturelle Eigenschaften	98
5.2. Dotierung	104
6. NanoLED-Design und Umsetzung des Chipkonzeptes	111
6.1. Top-Down Ansatz: Von der 2D-LED zur Nanosäulen-LED	112
6.2. Verfüllen von Nanostrukturen	114
6.2.1. Eigenschaften der Füllmaterialien	115
6.2.2. Transparenz und Alterungsstabilität	120
6.3. Kontaktieren	121
6.4. Elektrolumineszenz von NanoLEDs	124
7. Zusammenfassung und Ausblick	131
A. Anhang	137
A.1. Funktionsweise einer Leuchtdiode	137
A.2. Stromabhängiges Verhalten einer InGaN SQW LED	144
Verzeichnis verwendeter Naturkonstanten, Formelzeichen und Abkürzungen	149
Naturkonstanten	149
Formelzeichen und Abkürzungen	149
Abbildungsverzeichnis	153
Tabellenverzeichnis	161
Literaturverzeichnis	163
Lebenslauf und Veröffentlichungen	173
Danksagung	177

Abstract

The efficient generation of light is gaining more and more importance. An efficient light source for general lighting has the potential to save a significant amount of worlds total energy consumption. Additionally, highly efficient backlighting will enhance the battery life time of mobile devices like notebooks and cell phones. Light emitting diodes (LEDs) based on the material system AlInGaN are promising to be one of the future key technologies in illumination.

NanoLEDs with three dimensional active layers are an attractive way of pushing LED-technology to the theoretical limits. The possible advantages are promising: Enlarged active area by an order of magnitude and enhanced indium incorporation yielding highly efficient long wavelength AlInGaN devices. Moreover, white light emission without any phosphor conversion could be possible by multicolour emission of nanorods.

Advanced growth methods and chip processes for nanorods were shown in the past decade of intensive research. However, all of this progress was on dedicated laboratory equipment and therefore not capable for production. The development of 3-dimensional GaN nanostructures for future LED applications was the aim of this Ph.D. thesis. Starting from the substrate preparation all necessary process steps, up to the electrical contacting of the fully processed LED, were demonstrated.

For the first time the growth of ordered GaN nanorods was achieved in a large volume production-like MOCVD tool. Nanoimprint lithography was identified to be an appropriate method for substrate patterning and therefore an exact positioning of the nanorods. Beyond the state of the art, three dimensional nanostructures with high aspect ratios were grown without the need of pulsed MOCVD or catalytic growth processes. The carrier gas composition, the distance between nanorods, the growth time, the temperature as well as the crystal orientation were determined to be the most important MOCVD parameters that influence the shape and size of the nanorods. Using these parameters, the ratio between polar, semi- and nonpolar facets and therefore the morphology could be controlled very accurately. The role of hydrogen was identified to manipulate the growth rates on distinct crystal facets. Thus, a general scientific appreciation of the nanorod growth mechanism within large volume MOCVD reactors was generated for the first time. The excellent crystal quality of both semipolar $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ and $\{10\bar{1}\bar{2}\}$ facets was proven by transmission electron microscopy (TEM)

investigations. A defect reduction during the growth of the nanorods was observed, consistent with results from other scientific groups. The improvement of structural quality with length of nanorod was shown by cathodoluminescence (CL) measurements to be in good agreement with the TEM-analysis. However, some threading dislocations and nanocavities extended through the entire nanostructure from the nucleation site to the top facet. An increased quality of the mask patterning process and an improved nucleation process were found to avoid these kind of defects.

In addition to the growth of GaN nanorods, InGaN/GaN quantum wells and doped layers within the nanostructures are required for a working NanoLED device. Firstly, the incorporation of Indium at the different facets as well as the doping of position controlled nanostructures was demonstrated. The detailed analysis of photoluminescence (PL) and CL measurements enabled a deeper understanding on the growth mechanisms of InGaN quantum wells on the nanorod surface. The combination with TEM-analysis confirmed the core-shell like growth of the quantum wells. Therefore, the active area covered the entire surface of the nanostructures. Depending on the crystal facet the emission wavelength varied over a wide spectral range. In addition to the incorporation of Indium, n- and p-type conductivity of the grown nanostructures was also confirmed. The amount of n-type doping was estimated by electrical measurements at the IHT, TU Braunschweig by using very small conductive needles within a SEM setup. Moreover, the electroluminescence of coalesced nanostructures verified p-conductivity of the shell like p-side. These core-shell results are a first step for LEDs with significantly increased active area.

A multiplicity of new process steps - compared to conventional, two dimensional LED structures - are necessary to integrate nanorods within a fully working LED chip. For example, the NanoLEDs have to be embedded within a stable, passivating matrix with superior optical properties and the capability for production like processes.

In this thesis, fully stable LED operation of top-down etched NanoLEDs was achieved by the development of new chip process steps. The embedding material used showed perfect filling behaviour even for very small spaces. Based on the successful filling, all necessary process steps up to the electrical contacting were demonstrated, yielding excellent small current behaviour as well as forward voltages in the range of state-of-the-art devices. Finally, the possibility to check the functionality of single NanoLEDs within an ensemble of nearly 10000 simultaneously driven columns by μ -electroluminescence measurements was enabled by using transparent indium-tin-oxide top contacts.

Kurzbeschreibung

Die effiziente Erzeugung von Licht gewinnt immer mehr an Bedeutung. Nicht nur in der Allgemeinbeleuchtung steckt hier noch großes Potential, auch die Laufzeiten von mobilen Geräten, wie Notebooks oder Mobiltelefonen, können mit hocheffizienter Hinterleuchtung verbessert werden. Leuchtdioden aus dem Materialsystem AlInGaN entwickelten sich in den letzten Jahren zu einer Schlüsseltechnologie in diesen Sektoren. Die Effizienz von modernen Leuchtdioden ist bereits ausgezeichnet und es wird zunehmend schwieriger, diese weiter zu steigern.

Ein sehr vielversprechender Ansatz, diese Technologie näher an die theoretisch erreichbaren Grenzen zu bringen, ist der Übergang von einem zweidimensionalen Schichtaufbau zu dreidimensionalen NanoLEDs. Dieser technologisch aufwändige Schritt verspricht Vorteile, wie z.B. eine vergrößerte aktive Fläche, einen verbesserten Einbau von Indium und die Emission von verschiedenen Wellenlängen innerhalb eines einzelnen LED-Chips zur Erzeugung weißen Lichts ohne die Notwendigkeit einer Phosphorkonversion.

In den letzten 10 Jahren intensiver Forschung auf dem Gebiet der Halbleiter-Nanosäulen wurden zwar technologische Fortschritte für Wachstumsmethoden und Chipprozesse gezeigt, diese waren jedoch ausnahmslos auf spezielle Laborbedingungen zugeschnitten und für eine Produktanwendung nicht nutzbar.

Das Ziel dieser Arbeit war die Entwicklung und Verknüpfung aller zur Herstellung von neuartigen NanoLEDs erforderlichen Prozessschritte. Diese reichen von der Präparation der Wachstumssubstrate bis hin zur elektrischen Kontaktierung des vollständig prozessierten LED Bauelements.

Im Laufe dieser Dissertation ist erstmals das Wachstum von geordneten GaN-Nanosäulen in einer großvolumigen MOVPE-Produktionsanlage erreicht worden. Dabei wurde Nanoimprint-Lithographie als geeignete Methode für die Positionskontrolle der Nanosäulen identifiziert. Über den Stand der Technik hinaus wurde eine Prozessabfolge entwickelt, die dreidimensionale Nanostrukturen mit hohem Aspektverhältnis ohne die Notwendigkeit von gepulsten Gasen oder Katalysatoren ermöglicht. Als wesentliche Steuerungsparameter konnten die Trägergaskomposition, der Abstand zwischen den Nanosäulen, die Wachstumszeit, die Temperatur und die Kristallorientierung bestimmt werden. Die Morphologie, insbesondere das Oberflä-

chenverhältnis zwischen polaren, semipolaren und unpolaren Kristallfacetten kann so gezielt beeinflusst werden. Die Verknüpfung der Ergebnisse der verschiedenen Auswertungen ergab, dass dies im Wesentlichen aus einer Manipulation der Wachstumsraten durch eine Wasserstoffpassivierung von verschiedenen Kristallfacetten resultiert. Die bei den Experimenten gewonnenen Erkenntnisse konnten dazu genutzt werden, erstmals ein grundlegendes Verständnis für die Wachstumsmechanismen von GaN-Nanosäulen in einer MOVPE-Großvolumenanlage zu generieren. Die hervorragende Materialqualität der beiden semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ und $\{10\bar{1}2\}$ Facetten konnte durch die strukturelle Transmissionselektronenmikroskop(TEM)-Analyse der Nanosäulen festgestellt werden. Dabei konnte, ebenso wie bei anderen Forschungsgruppen, eine Defektreduktion während des Nanosäulenwachstums beobachtet werden. Kathodolumineszenz(KL)-Messungen zeigten übereinstimmend mit den TEM-Analysen, dass mit Verlauf des Wachstums die bei der Nukleation entstandenen Defekte abnehmen und die Materialqualität zur Spitze der Nanosäule hin ansteigt. Allerdings treten in manchen Nanostrukturen auch Schraubenversetzungen und Nanokavitäten auf, welche die gesamte Säule vom Nukleationspunkt bis zur Spitze durchlaufen. Diese können durch eine Verbesserung der Maskenqualität und des Nukleationsprozesses deutlich reduziert werden.

Nach dem Wachstum von GaN-Nanostrukturen sind der Einbau von InGaN/GaN-Quantenfilmen und die Dotierung die nächsten notwendigen Schritte auf dem Weg zu einer funktionsfähigen NanoLED. Die wenigen bisher veröffentlichten Ergebnisse zur Integration von optisch aktiven InGaN-Schichten mit MOVPE wurden an selbstorganisiert gewachsenen Nanosäulen gezeigt. In dieser Arbeit konnte erstmals der Einbau von InGaN-Quantenfilmen auf verschiedensten Facetten positionskontrollierter Nanostrukturen realisiert werden. TEM-Analysen erbrachten den Nachweis, dass sich die aktive Schicht wie ein Mantel um die komplette Nanostruktur zieht (Core-Shell Wachstum). Die Auswertung von Photolumineszenz (PL)- und KL-Messungen zeigte eine variierende Emissionswellenlänge, je nach Orientierung der Wachstumsfacette. Zusätzlich zum Einbau von Indium konnte die n- und p-Leitfähigkeit an Nanostrukturen nachgewiesen werden. Hierbei wurde mit Hilfe des Nanonadelmessplatzes des IHT der TU Braunschweig eine grobe Abschätzung der Leitfähigkeit und der Höhe der n-Dotierung getroffen. Erste Elektrolumineszenzerggebnisse von koaleszierten Nanostrukturen demonstrierten darüber hinaus die funktionsfähige p-Leitfähigkeit. Die international erstmals auf geordneten Nanosäulen gezeigten Core-Shell Ergebnisse sind ein erster Schritt zu LEDs mit signifikant erhöhter aktiver Fläche.

Die Integration von Nanosäulen in einen LED-Chip benötigt - im Vergleich zur konventionellen, zweidimensionalen LED-Struktur - eine Vielzahl an neuen Prozessschritten. Die NanoLEDs müssen in eine stabile, passivierende Matrix gebettet werden, die neben ausgezeichneten optischen Eigenschaften auch für eine mögliche Fertigung geeignet sind. Dies

konnte in bisherigen wissenschaftlichen Berichten noch nicht für sämtliche Anforderungen übergreifend demonstriert werden.

In dieser Arbeit konnten elektrisch und optisch voll funktionsfähige NanoLEDs und die dazu erforderlichen Chipprozesse mit Hilfe von geätzten Nanosäulen demonstriert werden. Das dabei verwendete Einbettmaterial wies ausgezeichnete Verfülleigenschaften für Strukturen kleinster Größenordnungen auf. Darauf aufbauend konnten sämtliche notwendigen Prozessschritte bis hin zur Kontaktierung erfolgreich durchgeführt werden. Der elektrische Betrieb der NanoLEDs zeigte bei Nennstromdichte sehr gute Werte für die Vorwärtsspannung, die mit konventionellen LEDs vergleichbar ist. Durch das Aufdampfen eines transparenten Indiumzinnoxidkontaktes konnte mit Hilfe von μ -Elektrolumineszenzaufnahmen in einem Ensemble von fast 10000 gleichzeitig bestromten Säulen die Funktion individueller NanoLEDs überprüft werden.

Kapitel 1.

Einleitung und Motivation

Die Effizienz und die Helligkeit von Leuchtdioden (LEDs) konnte in den letzten Jahren enorm gesteigert werden. So erreichen violette und blaue LEDs mit ca. 10% - 18% Indium-Gehalt heute interne Effizienzen von über 70%. Die Vielzahl an weiteren Vorteilen wie eine lange Lebensdauer, schnelle Einschaltzeiten, gute Farbwiedergabe und kleinste Abmessungen eröffnet völlig neue Möglichkeiten für die Allgemeinbeleuchtung.

Trotz der bereits erreichten hohen Ausbeuten gibt es Potential, diese noch weiter zu steigern. So zeigen heute alle auf dem Materialsystem AlInGaN^1 basierenden Leuchtdioden eine verminderte interne Quanteneffizienz bei hohen Stromdichten. Als Ursache hierfür werden Auger-artige Rekombinationsprozesse vermutet, welche bei hohen Ladungsträgerdichten einen großen Einfluss haben (siehe Kapitel A.2 und [Laubsch2009]). Um diesen nichtstrahlenden Prozessen entgegenzuwirken, muss die Ladungsträgerdichte möglichst niedrig gehalten werden. Die Vergrößerung der aktiven Fläche bietet eine Möglichkeit, dies zu realisieren. Aufgrund dessen verfügen LEDs, die dem Stand der Technik entsprechen, über eine sehr fein abgestimmte aktive Struktur mit mehreren Quantenfilmen. Die gleichmäßige Verteilung der Ladungsträger auf alle Quantenfilme gestaltet sich jedoch schwierig.

Eine äußerst interessante Möglichkeit, die aktiv bestromte Fläche zu vergrößern, bietet die Erweiterung der aktiven Schicht um eine weitere Dimension. Im Vergleich zu konventionellen, zweidimensionalen Schichten, kann durch das dreidimensionale Wachstum von GaN-Nanosäulen die Oberfläche um ein Vielfaches vergrößert werden (siehe Abbildung 1.1). Dieser Ansatz wird unter dem Begriff „Core-Shell“ LED diskutiert. Der zusätzliche Gewinn an aktiver Fläche kann mit

¹Die Materialmischung aus Aluminium, Indium, Gallium und Stickstoff (AlInGaN) ermöglicht die Herstellung von hocheffizienten Leuchtdioden im blauen Spektralbereich.

$$\frac{A_{3D-S\ddot{a}ule}}{A_{2D-Film}} = \frac{2\pi r \cdot h}{R^2\pi} \cdot FF \approx \frac{2h}{R} \cdot FF = 4 \cdot AR \cdot FF \quad (1.1)$$

abgeschätzt werden [Waag2010]. Dabei entspricht r dem Radius des Kerns der Nanosäule, R dem Radius der kompletten Nanosäule, h der Höhe, FF dem Füllfaktor und AR dem Aspektverhältnis der Nanosäulen. Nimmt man eine relativ zum Radius des Kerns dünne p-Schicht an, skaliert die Zunahme an aktiver Fläche demnach in etwa mit dem Aspektverhältnis der Nanosäulen. Bei einem realistischen Füllfaktor von 50% und einem Aspektverhältnis von 10 vergrößert sich die aktive Fläche um den Faktor 20!

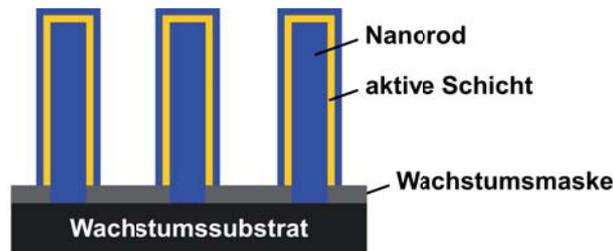


Abbildung 1.1.: Die schematische Darstellung einer Core-Shell Struktur. Dabei überziehen die aktiven und die p-dotierten Schichten (Mantel oder Shell) die dreidimensional gewachsenen Nanosäulen (Kern oder Core). Aufgrund dessen vergrößert sich die optisch aktive Schicht mit steigendem Aspektverhältnis der Nanosäulen.

Neben der Verbesserung des Hochstromverhaltens durch das Absenken der Ladungsträgerdichte in der aktiven Schicht birgt die Steigerung der internen Quanteneffizienz insbesondere im längerwelligen Bereich großes Potential in sich. Die beiden Materialsysteme der Wahl für LEDs im sichtbaren Bereich sind AlInGaN für blau und AlInGaP² für rot. Trägt man deren Gesamteffizienz über der Wellenlänge auf, so klafft eine Lücke im grünen Spektralbereich (siehe Abbildung 1.2). Man spricht hier von der grünen Lücke („The Green Gap“). Die Abnahme der internen Quanteneffizienz von AlInGaN-LEDs liegt dabei im steigenden Indiumgehalt begründet, welcher für grüne LEDs bereits etwa 30% beträgt. Aufgrund der größeren Gitterkonstante von InGaN gegenüber GaN entstehen Verspannungen durch Gitterfehlpassung. Diese gestalten den Einbau von Indium bei gleichzeitig hoher Qualität sehr schwierig; Kristalldefekte, Inhomogenitäten und Materialentmischungen nehmen drastisch zu.

²Die Materialmischung aus Aluminium, Indium, Gallium und Phosphor (AlInGaP) ermöglicht die Herstellung von hocheffizienten Leuchtdioden im roten Spektralbereich.

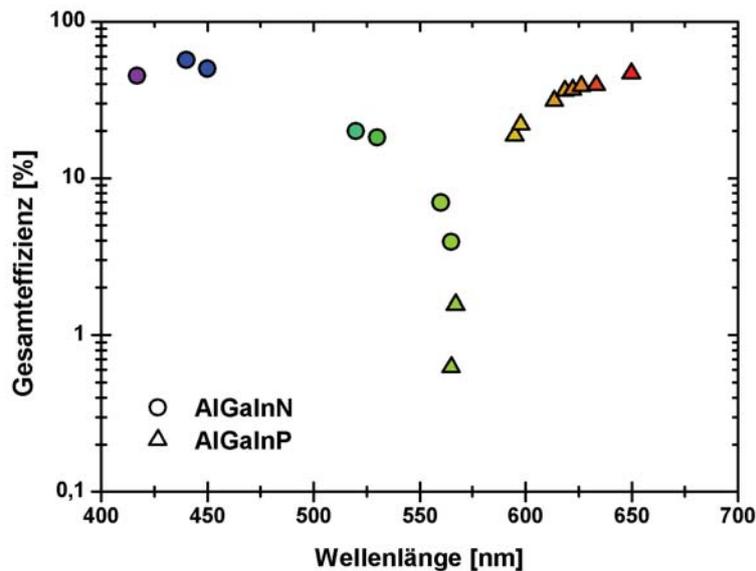


Abbildung 1.2.: The Green Gap: Die Effizienz von Leuchtdioden auf AlInGaN- und AlInGaP-Basis hängt stark von der Wellenlänge ab. Im grünen Spektralbereich stehen derzeit noch keine hocheffizienten LEDs zur Verfügung.

Säulen mit nanoskaligen Abmessungen könnten auch hier Abhilfe schaffen. Hierzu müsste die optisch aktive InGaN-Schicht als Quantenscheibe in den vertikalen Verlauf der Nanosäule eingebaut werden (siehe Abbildung 1.3). Durch die kleinen Durchmesser der Säulen kann ein Teil der Verspannung, welcher durch den Einbau von Indium in das InGaN/GaN-System induziert wird, durch eine Verformung der Geometrie relaxiert werden. Die Epitaxie von InGaN-Schichten mit hoher Materialqualität bis in den roten Spektralbereich könnte so möglich werden. Findet man darüber hinaus noch Ansatzpunkte, die Emissionswellenlänge einzelner Nanosäulen über den Durchmesser, den Abstand oder die Form auf dem verwendeten Wachstumssubstrat zu steuern, ist eine weiße LED ohne die Notwendigkeit von Konversion durch einen zusätzlich aufgebracht Phosphor im AlInGaN Materialsystem denkbar.

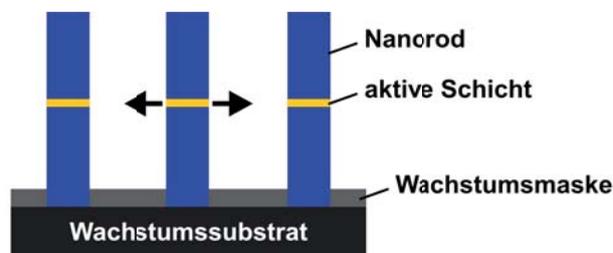


Abbildung 1.3.: Die schematische Darstellung einer Nanosäule mit einer Quantenscheibe im vertikalen Verlauf. Die eingebaute InGaN-Schicht hat durch die geringen Abmessungen die Möglichkeit, einen Teil der Verspannung zu relaxieren.

Zusätzlich zu den bereits erwähnten Vorteilen gibt es noch weitere Motivationspunkte für LEDs basierend auf Nanosäulen. Zum einen kann durch die geschickte Festlegung der Position der Nanosäulen die Abstrahlcharakteristik und die Auskopplung aufgrund photonischer Effekte verbessert werden. Zum anderen ergibt sich durch den geringen Durchmesser der Nanosäulen ein nur sehr geringer Wirkungsquerschnitt mit dem Substrat. Aufgrund dessen besteht die Möglichkeit, auf stark gitterfehlangepassten Substraten wie Saphir oder Silizium nahezu verspannungsfrei aufzuwachsen. Neben dem direkten Wachstum von optisch aktiven Schichten auf den dreidimensionalen Strukturen könnten so durch die Koaleszenz von Nanosäulen defektreduzierte, zweidimensionale Templates auf kostengünstigen Substraten wie Silizium realisiert werden.

Obwohl ein Teil der erhofften Vorteile bereits technologisch gezeigt wurde, sind, trotz intensiver Forschungsarbeit seit mehr als 10 Jahren, keine kommerziell verfügbaren Produkte mit Nanosäulen auf dem Markt (siehe Kapitel 3). Dies liegt zunächst an der mangelnden Kontrolle der Eigenschaften der gewachsenen Säulen. Erst die Vorstrukturierung der Wachstumssubstrate mit hochpräzisen Lithographieverfahren ermöglicht eine genaue Positionierung. Zusätzlich konnte lange Zeit das kolumnare Wachstum von Nanosäulen nur mittels Molekularstrahl-Epitaxie (MBE) realisiert werden, die für eine hochvolumige Produktion nur wenig geeignet ist. Das Wachstum von geordneten Nanosäulen mittels Metallorganischer Gasphasen-Epitaxie (MOVPE) verlangt bis dato die Verwendung eines gepulsten Reaktorbetriebes, weshalb auch diese Methode nur auf einem speziell für diese Prozessbedingungen maßgeschneiderten, sehr kleinen Reaktor sinnvoll möglich ist.

Das Ziel dieser Arbeit war die Entwicklung eines Wachstumsprozesses für dreidimensionale NanoLED-Strukturen in einer produktionstauglichen, großvolumigen MOVPE-Anlage, sowie die Analyse der elektronischen, optischen und strukturellen Eigenschaften derartiger NanoLEDs.

Das **Grundlagenkapitel 2** der Dissertation gibt einen Überblick über die fundamentalen Eigenschaften des Materialsystems AlInGaN. Darauf basierend wird die Funktionsweise einer LED anhand des prinzipiellen Schichtaufbaus und dem Konzept einer Dünnschicht-LED erläutert. Kurz werden auch Themen wie die Effizienz von Leuchtdioden und die Möglichkeiten, weiße LEDs herzustellen, beleuchtet. Abschnitt 2.3 behandelt die Grundlagen zum

Wachstum von GaN in einer MOVPE. Dort werden die Reaktoreigenschaften der Anlage, häufig verwendete Substrate und die in dieser Dissertation benötigten Alkyle und Hydride behandelt. Mit der Beschreibung der damit verbundenen Wachstumsprozesse, der Dotierung und dem Wachstum von InGaN wird dieser Abschnitt abgeschlossen.

Der derzeitige **Stand der Technik** von Nanosäulen wird in **Kapitel 3** diskutiert. Zunächst werden die bisher wichtigsten Veröffentlichungen zum Wachstum zusammengefasst. Eine Darstellung des in der Literatur beschriebenen Einbaus von Indium in Nanostrukturen und Ansätze für elektrisch betriebene Bauteile bilden die Abschnitte 3.2 und 3.3.

Im **Hauptkapitel 4** dieser Dissertation werden zunächst geeignete **Lithographieverfahren** für die Positionskontrolle evaluiert und neue Designs für die **Erforschung eines optimalen Wachstumsprozesses** diskutiert. Daran anschließend wird in Abschnitt 4.2 das Hauptaugenmerk auf die Epitaxie von Nanosäulen gelegt. Dabei werden prozesstechnische Parameter zur Steuerung der morphologischen Eigenschaften bestimmt, die es erstmals ermöglichen, in einer großvolumigen MOVPE-Anlage Nanosäulen wachsen zu lassen. In erster Linie werden hier die Trägergaskomposition, die Wachstumszeit, die Temperatur und die Kristallorientierung als wesentliche Einflussparameter identifiziert. Die bei den Experimenten gewonnenen Erkenntnisse werden in Abschnitt 4.2.5 dazu verwendet, ein besseres Verständnis für die Wachstumsmechanismen von Nanosäulen in einer MOVPE-Anlage zu generieren. Die Untersuchung der Materialqualität, sowie in struktureller als auch optischer Hinsicht, wird in 4.3.1 und 4.3.2 reflektiert.

Die **Epitaxie von NanoLEDs** wird in **Kapitel 5** behandelt. Einblicke in den Einbau von Indium in die in Kapitel 4 vorgestellten Nanostrukturen können hier mit Hilfe der Evaluation von Photolumineszenz- und Kathodolumineszenzmessungen gewonnen werden. Die Auswertung der Transmissionselektronenmikroskopanalysen in Abschnitt 5.1.2 hilft dabei, die im vorangegangenen Abschnitt 5.1.1 gewonnenen Erkenntnisse aus den optischen Untersuchungen richtig zu interpretieren. Die Dotierung von Nanosäulen mit Silizium und Magnesium im Gliederungspunkt 5.2 zeigt, dass sowohl die n- als auch die p-Dotierung der Nanostrukturen möglich ist.

Das abschließende **Kapitel 6** beschäftigt sich mit dem Design eines möglichen **Chipkonzeptes** für Nanosäulen. Um geeignete Teststrukturen für diese Experimente zu erhalten, wird zunächst auf das Ätzen von NanoLEDs eingegangen. Die Einbettung dieser NanoLEDs in eine für Produktionsprozesse geeignete Matrix ist der wesentliche Kernpunkt von Unterkapitel 6.2, bevor im Anschluss daran in 6.3 die Kontaktierung dieser NanoLEDs vorgestellt wird. Elektrolumineszenzeigenschaften dieser kontaktierten NanoLEDs und die Möglichkeit μ -Elektrolumineszenzaufnahmen einzelner NanoLEDs zu evaluieren, bilden den letzten Abschnitt 6.4.

Nach der **Zusammenfassung und dem Ausblick** auf weitere Schritte folgen im **Anhang A** noch zusätzliche Informationen, die dem Leser ergänzend zu den Grundlagen einen tieferen Einblick in das Verhalten einer AlInGaN-LED ermöglichen sollen.

Kapitel 2.

Grundlagen

Dieses Kapitel legt den Grundstein für die nachfolgenden Experimente, Auswertungen und Interpretationen. Zunächst werden die Materialeigenschaften der III-V Halbleiter GaN, InN und AlN vorgestellt. Hier ist das Hauptaugenmerk auf das Wachstum und die optischen Eigenschaften gelegt. Der ternäre Verbindungshalbleiter InGaN, der die Basis für die aktive Leuchtschicht blauer und grüner LEDs bildet, ist in einem gesonderten Kapitel behandelt. Daran anschließend wird der grundsätzliche Aufbau und die Funktionsweise von Leuchtdioden erläutert. Der Abschnitt über Elektrolumineszenz mit der Definition von Effizienz soll die Ansatzpunkte für eine Steigerung der Lichtausbeute aus Festkörperleuchtmitteln aufzeigen.

2.1. Das Materialsystem AlInGaN

2.1.1. Materialeigenschaften

Durch die Einstellung geeigneter Epitaxieparameter können die binären Gruppe III Nitride, zu denen Galliumnitrid (GaN), Aluminiumnitrid (AlN) und Indiumnitrid (InN) zählen, in drei verschiedenen Kristallstrukturen abgeschieden werden. Es handelt sich hierbei um die hexagonale Wurtzitstruktur (α -Phase), die Zinkblendestruktur (β -Phase) und die NaCl-Struktur.

Die in dieser Arbeit analysierten Proben wurden mit Hilfe von metallorganischer Gasphasenepitaxie (MOVPE, siehe Abschnitt 2.3) in der Wurtzitstruktur abgeschieden, welche unter den herkömmlichen Wachstumsbedingungen stabil entsteht. Die Wurtzitstruktur besitzt eine hexagonale Symmetrie, aufgrund derer die Indizes $\langle hkl \rangle$ im hexagonalen System angegeben

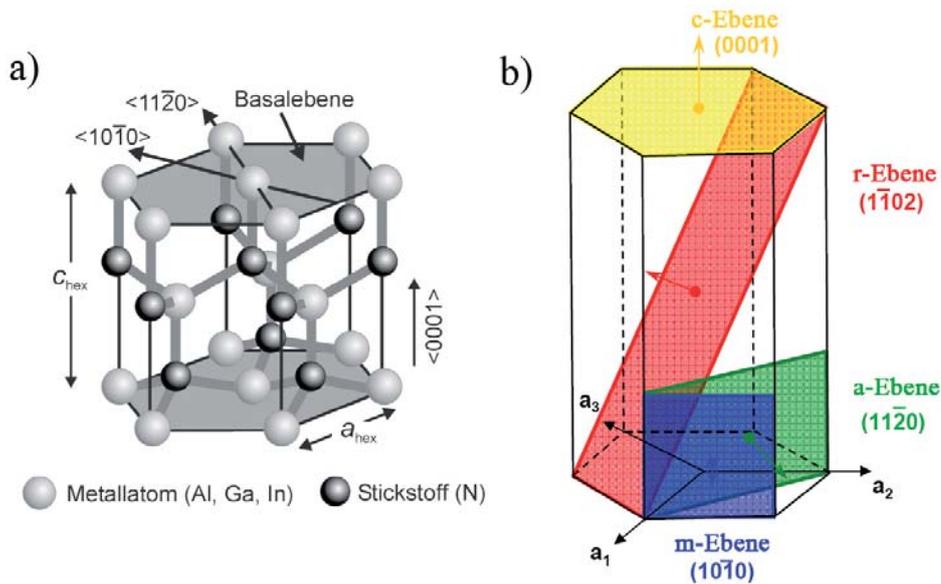


Abbildung 2.1.: Definition der Kristallrichtungen der hexagonalen Wurtzitstruktur a) mit Darstellung der Gallium und Stickstoffatome [Engl2005] und b) mit Darstellung der am häufigsten verwendeten Ebenen [Hollander2006].

werden (siehe Abbildung 2.1). Hierbei entsprechen die Parameter h, k und l den Millerschen Indizes und $i = -h-k$.

Die Werte für die Gitterkonstanten von GaN, AlN und InN befinden sich in Tabelle 2.1. Über die Varshni-Parameter kann der Temperatureinfluss auf die Bandlücke durch die empirische Gleichung

$$E_g(T) = E_g(T = 0K) - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} \quad (2.1)$$

beschrieben werden [Varshni1967]. Der Bandabstand E_g , sowie die Varshni-Parameter α und β , sind für die III-V Halbleiter dieses Kapitels ebenfalls in Tabelle 2.1 angegeben.

Tabelle 2.1.: Grundlegende Materialparameter der III-V Halbleiter GaN, InN, und AlN laut [Vurgaftman2003].

Parameter	GaN	AlN	InN
a_{hex} in (nm) (T=300K)	0,3189	0,3112	0,3545
c_{hex} in (nm) (T=300K)	0,5185	0,4982	0,5703
E_g in eV (T=0K)	3,510	6,25	0,78
α in meV/K	0,909	1,799	0,245
β in K	830	1462	624

Die Bandstruktur ist eine Darstellung für Energiezustände, die von Elektronen mit einem bestimmten Quasi-Impuls $\hbar k$ angenommen werden können. Dabei entspricht \hbar dem redu-

zierten Planck'schen Wirkungsquantum und k der Wellenzahl. Die Bandstruktur von GaN kann wie in Abbildung 2.2 als Leitungsband und dreifach aufgespaltenes Valenzband dargestellt werden [Jeon1996]. Bei einer Temperatur von 0 K befinden sich sämtliche Elektronen im Valenzband, welches dann vollständig gefüllt ist. Dementsprechend befinden sich keine Elektronen im Leitungsband, wodurch das Material bei $T = 0$ K ein Isolator ist. Die Größe der Bandlücke E_g gibt Auskunft über den energetischen Abstand der beiden Bänder, in dem sich bei einem reinen Kristall keine erlaubten Energiezustände befinden. Da sich bei GaN am

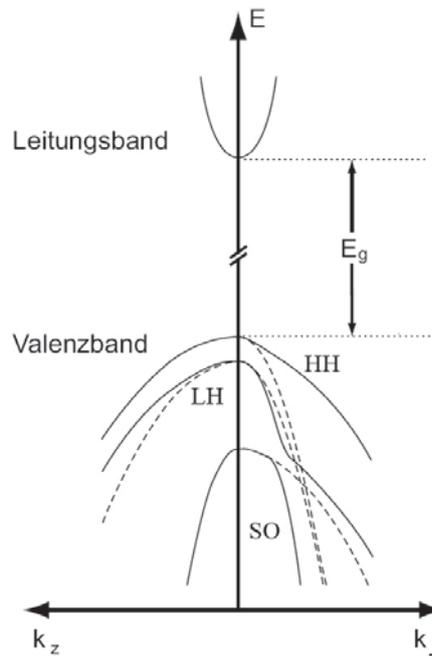


Abbildung 2.2.: Schematischer Verlauf der Bandstruktur von Wurtzit-GaN, adaptiert aus [Jeon1996]. Die gestrichelt dargestellte parabolische Näherung der Valenzbänder für die effektiven Massen der Löcher kann nur begrenzt in der Nähe des Gamma-Punktes zum Einsatz kommen. k_x , k_y und k_z verlaufen entlang der Hauptsymmetrierichtungen der ersten Brillouin-Zone und k_{\perp} ergibt sich aus $k_{\perp} = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$

Γ -Punkt das Leitungsbandminimum direkt über dem Valenzbandmaximum befindet, handelt es sich um einen direkten Halbleiter. In der Nähe des Γ -Punktes kann der Bandverlauf mit der Dispersionsrelation des freien Elektrons als Parabel

$$E(k) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} \quad (2.2)$$

genähert werden. Die Masse m^* der Elektronen ist in diesem Fall umgekehrt proportional zur Krümmung der Bandstruktur und ergibt sich zu

$$m^* = \frac{\hbar^2}{\frac{\partial^2 E(k)}{\partial k^2}}. \quad (2.3)$$

Die Formel 2.3 drückt aus, dass bei stärkerer Krümmung des Bandes die effektive Masse abnimmt. Die Aufspaltung des Valenzbandes durch die Spin-Bahn-Kopplung und das Wurtzit-Kristallfeld erfolgt in Schwerloch (HH)-Band, Leichtloch (LL)-Band und Spin-Bahn abgespaltenes (SO)-Band (siehe auch Abbildung 2.2).

Im Drude-Modell ist die Beweglichkeit μ der Elektronen und Löcher indirekt proportional zur effektiven Masse, was mit der Gleichung

$$\mu = \frac{e}{m^*} \cdot \tau_s \quad (2.4)$$

beschrieben wird [Tipler1994]. Die Variable τ_s entspricht in Gleichung 2.4 der mittleren Zeit zwischen zwei Stößen und e der Elementarladung. Die höhere effektive Masse der Löcher führt somit zu einer geringeren Beweglichkeit der p-Ladungsträger im Vergleich zu den Elektronen. Eine Übersicht über die Elektronen- und Löcherbeweglichkeiten ist für verschiedene Dotierungen z.B. in [Mnatsakanov2002] angegeben.

2.1.2. Das ternäre Materialsystem InGaN

Ersetzt man in GaN das Element Gallium anteilig durch Indium, lässt sich theoretisch die Bandlücke zwischen den 3,51 eV von GaN und den 0,78 eV von InN lückenlos einstellen. Die daraus resultierende Bandlücke von $In_xGa_{1-x}N$ kann mit Hilfe der Formel

$$E_{g,In_xGa_{1-x}N} = (1 - x)E_{g,GaN} + xE_{g,InN} - x(1 - x)b \quad (2.5)$$

näherungsweise berechnet werden [Vurgaftman2003]. Der Parameter x steht hierbei für den Anteil von Indium und b beschreibt den Biegeparameter, um den Verlauf der Bandlückenänderung besser zu nähern. Der Parameter b schwankt in den Literaturangaben stark zwischen 1,0 eV und 4,5 eV, allerdings hat sich der Wert 1,5 eV als gute Näherung für die meisten Messungen etabliert [Vurgaftman2003]. Abbildung 2.3 zeigt den schematischen Verlauf des Bandabstandes mit Änderung des Indium-Gehaltes innerhalb des ternären Halbleiters. Somit kann - zumindest theoretisch - der gesamte Bereich des sichtbaren Lichtes mit InGaN abge-

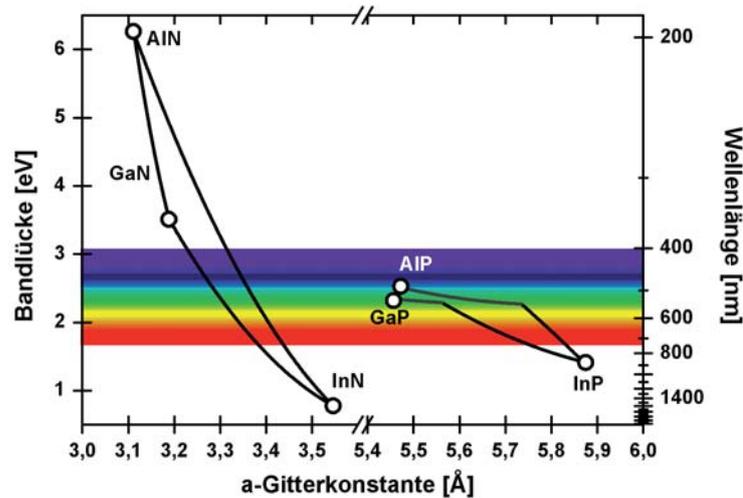


Abbildung 2.3.: Je nach Zusammensetzung der kristallinen Schicht ändert sich die Emissionswellenlänge bei AlInGaN. Durch die Veränderung der Komposition variiert allerdings auch die Gitterkonstante des Halbleiternischkristalls, wodurch Verspannungen auftreten. Zusätzlich ist das Materialsystem AlInGaP dargestellt, welches bei der Herstellung von hocheffizienten roten Leuchtdioden zum Einsatz kommt.

deckt werden. Allerdings ergeben sich bei höherer Indiumkonzentration Probleme mit der Materialqualität (siehe Abschnitt 2.3).

2.1.3. Piezoelektrische Felder

Durch die fehlende Inversionssymmetrie der hexagonalen Kristallstruktur entstehen Polarisationsladungen, welche ein elektrisches Feld erzeugen. Diese sogenannte spontane Polarisation entsteht durch Dipolmomente und hat aufgrund der ähnlichen Parameter von GaN und InN mit $-0,034 \text{ C/m}^2$ und $-0,042 \text{ C/m}^2$ [Vurgaftman2003] an den Grenzflächen der Heteroübergänge keinen so großen Einfluss wie die piezoelektrische Polarisation.

Bei InGaN basierten LEDs befinden sich in der aktiven Leuchtschicht Quantentröge, die aus einer Schicht InGaN mit niedriger Bandlücke eingebettet in GaN mit größerer Bandlücke bestehen (siehe Kapitel A.1). Aufgrund der größeren Gitterkonstante von InGaN gegenüber GaN entstehen durch die Verspannungen, die während der Epitaxie durch die Gitterfehlpassung aufgebaut werden, an den Grenzflächen zusätzliche Polarisationsladungen, welche ein elektrisches Feld in der Größenordnung von MV/cm erzeugen. Dieses durch die Polarisationsladungsträger hervorgerufene elektrische Feld verursacht eine Bandverbiegung und verändert

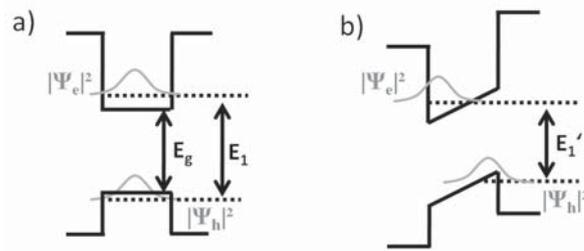


Abbildung 2.4.: Schematische Darstellung der Bandstruktur a) ohne und b) mit dem Einfluss von Polarisationsladung. Eingezeichnet ist die Bandlücke E_g , sowie der Abstand E_1 der Grundzustände von Elektronen und Löchern. Aufgrund ihrer niedrigeren effektiven Masse ist der Grundzustand der Elektronen weiter von der Bandkante entfernt als derjenige der Löcher. Zu sehen ist die Rotverschiebung des optischen Übergangs, sowie die Darstellung der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten $|\Psi_e|^2$ und $|\Psi_h|^2$, die durch eine Separation der Elektronen- und Lochwellenfunktion räumlich voneinander getrennt sind.

somit die optischen Eigenschaften des Materials (siehe Abbildung 2.4). Dieser sogenannte „Quantum confined Stark effect“ (QCSE) führt zum einen zu einer verkleinerten Bandlücke und somit zu einer Rotverschiebung des Emissionsspektrums. Zum anderen bewirkt er eine Separation der Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern. Dabei ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Ladungsträger durch die Wahrscheinlichkeitsdichte der Wellenfunktionen für Elektronen $|\Psi_e|^2$ und Löcher $|\Psi_h|^2$ bestimmt. Aufgrund der räumlichen Trennung der Ladungsträger nimmt das Überlappintegral

$$M_{e,h} = \int_{-\infty}^{+\infty} \Psi_e^*(z) \cdot \Psi_h(z) dz \quad (2.6)$$

der Wellenfunktionen und damit die Oszillatorstärke ab [Bastard1983]. Diese ist indirekt proportional zur strahlenden Zeitkonstante der Ladungsträger und beeinflusst wesentlich die Effizienz einer LED (siehe Gleichung A.25). Durch den verringerten Überlapp der Wellenfunktionen steigt somit die Lebensdauer der an der strahlenden Rekombination beteiligten Zustände an, was zu einer Effizienzverschlechterung führt (siehe Kapitel 2.2.3) [Im1998, Bernardini2001, Kim2007, Berkowicz2000].

Eine Möglichkeit, den QCSE abzuschwächen oder zu umgehen, ist das Wachstum auf semipolaren oder unpolaren Substraten (siehe Abbildung 2.5). Bei unpolarem Wachstum, zum Beispiel auf der m- oder a- Kristallebene (vergleiche auch Abbildung 2.1, Seite 14), tritt die piezoelektrische Polarisation in Wachstumsrichtung nicht auf und stört somit im Schichtverlauf der LED nicht [Feneberg2006, Schwarz2007, Kim2007b]. Die Vorteile sind eine geringere Wellenlängenverschiebung und ein höherer Überlapp der Wellenfunktionen.

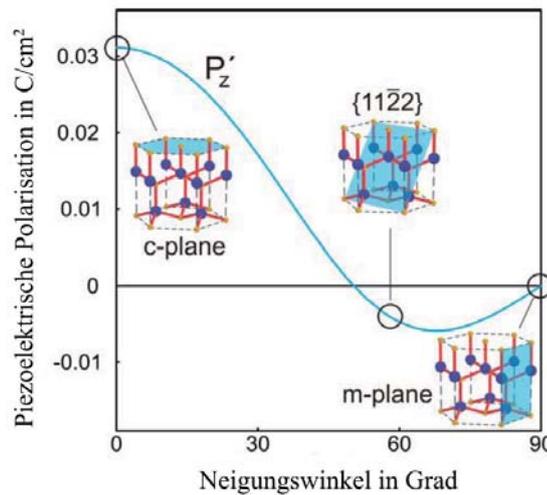


Abbildung 2.5.: Beispiele für eine polare, semipolare und unpolare Wachstumsfacette in Anlehnung an die Veröffentlichung [Schwarz2007]. Aufgetragen ist die piezoelektrische Polarisation P_z' senkrecht zur Wachstumsrichtung als Funktion über dem Neigungswinkel der Wachstumsebene zur c -Fläche.

Allerdings ist die Materialqualität und die Verfügbarkeit von semi- und unpolaren Substraten derzeit ein wesentlicher Nachteil gegenüber der gut beherrschbaren Epitaxie auf polaren Substraten.

Nanosäulen könnten diese Nachteile der bisher verfügbaren Substrate vermeiden. Bei hohen Aspektverhältnissen ist ein Großteil der Oberfläche der gewachsenen Nanostrukturen die unpolare m -Kristallebene. Überzieht man die gesamte Nanosäule mit der aktiven Schicht (siehe Core-Shell Ansatz in Kapitel 1 und TEM-Untersuchungen in 5.1.2), befindet sich der Hauptteil der Quantenfilme auf den defektfreien Seitenfacetten.

2.2. Licht emittierende Dioden (LED)

Als LEDs werden Halbleiterbauteile bezeichnet, welche beim Anlegen einer Vorwärtsspannung über den pn-Übergang Licht im sichtbaren, infraroten oder ultravioletten Wellenlängenspektrum emittieren. Die Emissionswellenlänge hängt dabei im Wesentlichen von der Materialkomposition ab. LEDs werden üblicherweise in einem Dünnschicht-Kristallwachstumsverfahren hergestellt. In der Praxis handelt es sich hierbei häufig um metallorganische Gasphasenepitaxie (siehe Abschnitt 2.3 Seite 26), bei der die einzelnen Schichten nacheinander bei hohen Temperaturen aus der Gasphase monokristallin und mit hoher Qualität abgeschieden werden. Zentraler Bestandteil einer jeden LED ist ein pn-Übergang, der durch Dotierung des

Basismaterials mit unterschiedlichen Fremdatomen erreicht wird (siehe auch Abschnitt 2.3.5). Eine nähere Beschreibung der wichtigsten Grundlagen einer LED ist im Anhang A.1 gegeben.

Um aus den in den vorangegangenen Kapiteln beschriebenen Materialien eine lichtemittierende Diode herzustellen, müssen bestimmte Voraussetzungen geschaffen werden. Der grundlegende Schichtaufbau einer LED und ein kurzer Einblick in die Dünnschichttechnologie werden in den ersten beiden Teilabschnitten vorgestellt. Die Effizienz von Leuchtdioden, hierbei insbesondere deren Definition und ihr entgegenwirkende Prozesse, werden im Anschluss daran behandelt. Die Grundlagen für die Erzeugung von weißem Licht mit Hilfe von Leuchtdioden bilden den Abschluss dieses Kapitels.

2.2.1. Der Schichtaufbau einer LED

Der Schichtaufbau einer heutzutage kommerziell verfügbaren LED besteht aus weit mehr als einem simplen pn-Übergang. Der prinzipielle Schichtaufbau und das dazugehörige schematische Bändermodell einer InGaN LED sind in Abbildung 2.6 dargestellt. Durch die verschiedenen Schichten werden die Qualität und die Eigenschaften des Lichtemitters bestimmt. Begonnen wird dieses Schichtsystem mit der GaN-Nukleationsschicht, welche für das quali-

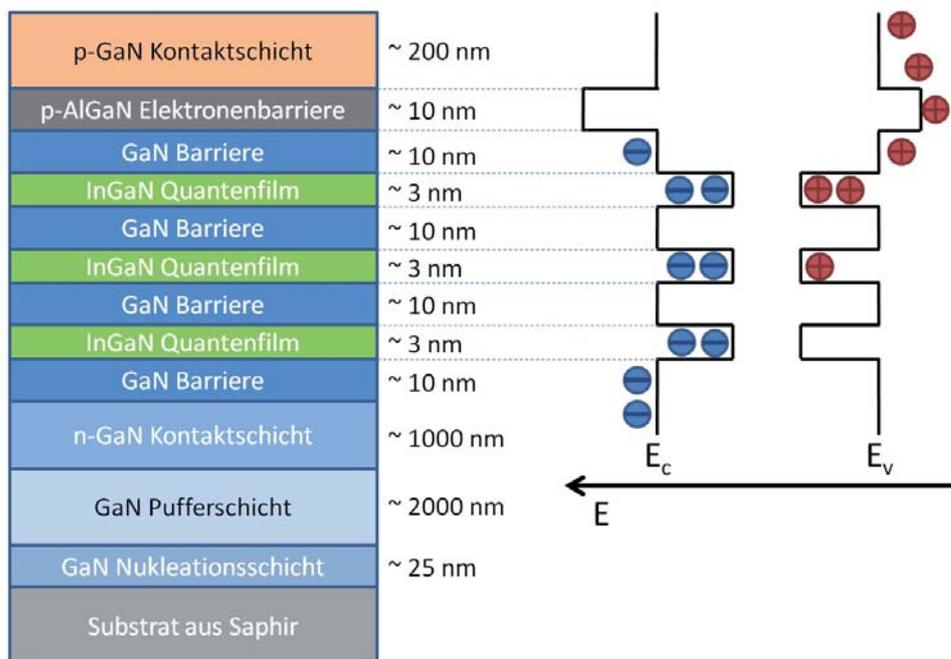


Abbildung 2.6.: Schematische Darstellung des Schichtverlaufes einer InGaN LED. Das dazugehörige vereinfachte Bändermodell ist rechts dargestellt.

tativ hochwertige Wachstum auf Saphir notwendig ist. Diese wird bei niedrigen Wachstumstemperaturen um die 500 °C abgeschieden, bei denen Nukleationskeime im Nanometerbereich entstehen [Amano1988] (siehe auch Kapitel 2.3). Beim darauf folgenden Wachstum der GaN-Pufferschicht wachsen die Keime der Nukleationsschicht zusammen und die Dichte der Defekte nimmt deutlich ab [Hiramatsu1991]. Im Anschluss hieran wird die n-Kontaktschicht gewachsen, die mit Hilfe von Silizium n-dotiert wird. Die aktive Schicht besteht aus einem oder mehreren Quantentrögen, eingebettet in GaN-Barrieren (siehe Kapitel A.1). Die Dicke und die Dotierung der Quantenfilme und Barrieren beeinflusst wesentlich die Eigenschaften und die interne Quanteneffizienz der Leuchtdiode. Am Ende der aktiven Schicht befindet sich eine mit Magnesium p-dotierte AlGaIn Schicht. Durch die höhere Bandlücke stellt sie eine zusätzliche Barriere für Elektronen dar. Abschließend folgt eine p-dotierte Kontaktschicht.

2.2.2. Die Dünnschicht LED

In diesem Abschnitt soll kurz der Aufbau einer Dünnschicht-LED und die daraus resultierenden Vorteile vorgestellt werden.

Bei herkömmlichen LEDs wird viel Licht zur Seite und in Richtung des Substrates abgestrahlt. Dadurch sinkt die Effizienz und insbesondere die Skalierbarkeit der Chipgröße ist problematisch. Aus diesem Grund wurde mit der Dünnschichttechnologie ein Verfahren entwickelt, mit dessen Hilfe das Licht gerichtet aus der LED extrahiert werden kann. Die erste kommerziell verfügbare LED mit diesen Eigenschaften wurde 2002 für den roten Spektralbereich produziert. In den Farben blau und grün sind die sogenannten ThinGaN[®]-LEDs [Haerle2004] seit 2004 bei OSRAM Opto Semiconductors GmbH in Produktion.

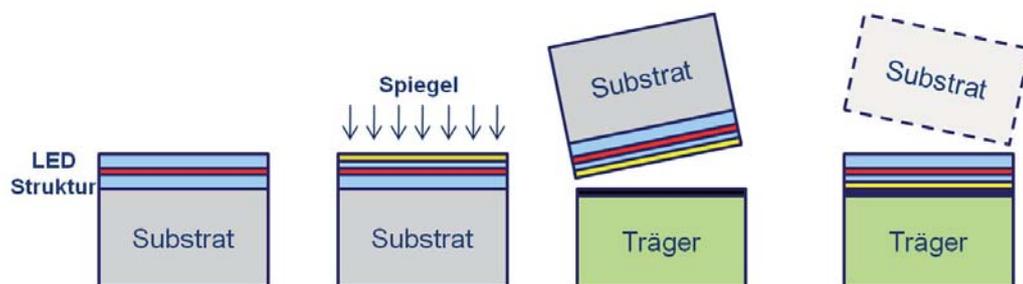


Abbildung 2.7.: Dargestellt ist der schematische Produktionsablauf einer ThinGaN[®] LED. Nach dem Aufwachsen der LED Schichten wird die Oberfläche strukturiert und mit einem Spiegel versehen. Nach dem anschließenden Waferbondprozess auf einen geeigneten Träger wird das Wachstumssubstrat entfernt.

Bei der Herstellung werden zunächst die Schichten auf einem herkömmlichen Substrat, zum Beispiel Saphir, aufgewachsen (siehe Abbildung 2.7). Anschließend wird bei blauen ThinGaN[®] LEDs die Oberfläche verspiegelt, um das Licht gerichtet aus der LED zu extrahieren. Das Licht hat somit später bei der fertig prozessierten LED keine Möglichkeit mehr, in eine absorbierende Schicht zu gelangen. Nun wird der Wafer auf einen geeigneten Träger transferiert; man spricht hierbei von einem Waferbondprozess. Jetzt kann das Wachstumssubstrat entfernt werden und es bleiben nur noch die im Epitaxieprozess aufgewachsenen Schichten als wenige μm dicker Film (Dünnschicht) zurück. Dieser wird darüber hinaus zur besseren Lichtauskopplung aufgeraut. Dieses Abtragen des Wachstumssubstrates erfolgt im Falle von Saphir über einen Laser Lift Off Prozess [Haerle2004].

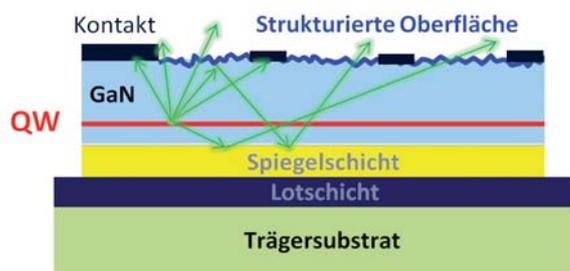


Abbildung 2.8.: Schematische Darstellung eines fertigen ThinGaN Chips in einem Schnittbild. Durch die strukturierte Oberfläche und die kleinflächigen Kontaktstege ist eine sehr gute Lichtauskopplung gewährleistet. Die Spiegelschicht verhindert eine Absorption im Trägersubstrat.

Durch den Metallreflektor im Inneren des Chips wird das Licht fast ausschließlich in Richtung Oberfläche abgestrahlt (siehe Abbildung 2.8). Dadurch können blaue LEDs heute interne Effizienzen von deutlich über 70% erreichen. Ein weiterer Vorteil dieser Chiptechnologie ist, dass die Effizienz weitestgehend unabhängig von der Chipgröße ist. So können diese leicht skaliert werden und große Leistungschips stehen für Anwendungen mit hohem Lichtbedarf zur Verfügung [Streubel2002, Illek2003].

2.2.3. Effizienz

Die Effizienz einer Leuchtdiode hängt von sehr vielen Parametern ab. Die Bestimmung der einzelnen Wirkungsgrade hilft aufzuzeigen, an welchen Punkten die LED verbessert werden kann.

Als Erstes ist hier der Stromwirkungsgrad η_I zu nennen. Es rekombinieren nicht alle Ladungsträger in der aktiven Zone und stehen somit nicht für die gewünschte Lumineszenz zur Verfügung. Folglich kann man mit

$$\eta_I := \frac{\text{Anzahl je Zeiteinheit in der aktiven Schicht rekombinierender Ladungstraeger}}{\text{Anzahl der je Zeiteinheit ueber den pn Uebergang fliessenden Ladungstraeger}}$$

den Stromwirkungsgrad - auch Injektionseffizienz genannt - beschreiben.

Die interne Quanteneffizienz (IQE) η_q gibt an, welcher Anteil der Ladungsträger strahlend und welcher nichtstrahlend rekombiniert. Die Wortgleichung

$$\eta_q := \frac{\text{Anzahl der je Zeiteinheit in der aktiven Schicht erzeugten Photonen}}{\text{Anzahl der je Zeiteinheit in der aktiven Schicht rekombinierenden Ladungstraeger}}$$

kann auch mit Hilfe von Gleichung A.25 als

$$\eta_q = \frac{\frac{1}{\tau_r}}{\frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{nr}}} = \frac{1}{1 + \frac{\tau_r}{\tau_{nr}}} \quad (2.7)$$

beschrieben werden.

Da nicht alle erzeugten Photonen anschließend außerhalb des Chips zur Verfügung stehen, spielt der optische Wirkungsgrad η_{opt} eine ebenso wichtige Rolle. Er beschreibt den Anteil der erzeugten Photonen, die aus dem Bauteil ausgekoppelt werden

$$\eta_{opt} := \frac{\text{Anzahl der je Zeiteinheit extern nachweisbaren Photonen}}{\text{Anzahl der je Zeiteinheit in der aktiven Schicht erzeugten Photonen}}.$$

Diese einzelnen Wirkungsgrade kann man nun zu einem Gesamtwirkungsgrad η_{ext} , der externen Quanteneffizienz (EQE) zusammenfassen

$$\eta_{ext} = \eta_{opt} \cdot \eta_q \cdot \eta_I. \quad (2.8)$$

Er beschreibt die das Bauteil verlassenden Photonen im Verhältnis zu den über den pn-Übergang fließenden Ladungsträgern

$$\eta_{ext} := \frac{\text{Anzahl der je Zeiteinheit extern nachweisbaren Photonen}}{\text{Anzahl der je Zeiteinheit ueber den pn Uebergang fliessenden Ladungstraeger}}.$$

Für eine messtechnische Bestimmung der EQE kann man folgenden Ansatz verwenden:

$$\eta_{ext} = \frac{\frac{N_{ph}}{\Delta t}}{\frac{N_Q}{\Delta t}} = \frac{\frac{P_{opt}}{h \cdot f}}{\frac{I}{q}} = \frac{q}{h \cdot f} \frac{P_{opt}}{I} = \frac{q}{h \cdot c} \cdot \lambda \cdot \frac{P_{opt}}{I}. \quad (2.9)$$

Die optische Leistung P_{opt} , sowie die Wellenlänge λ und der Strom I sind messbare Größen und können somit für eine Bestimmung von η_{ext} herangezogen werden. Zu beachten ist allerdings die hohe Halbwertsbreite des LED-Spektrums, weshalb für die Berechnung entweder über die Wellenlängen gemittelt wird, oder stellvertretend die Wellenlänge des Maximums oder der Schwerpunkt des Spektrums verwendet wird.

Bei LEDs wird neben der externen Quanteneffizienz oftmals auch die „Wall-plug efficiency“ (WPE) angegeben. Diese beschreibt das Verhältnis zwischen der optischen Leistung P_{opt} und der aufgebrauchten elektrischen Leistung P_{el} :

$$WPE = \frac{P_{opt}}{P_{el}} = \frac{P_{opt}}{U \cdot I}. \quad (2.10)$$

Neben der gerade beschriebenen radiometrischen Bestimmung der Effizienz dient bei der fotometrischen Betrachtung die menschliche Wahrnehmung als Grundlage für die Bewertung. Zur quantitativen Beschreibung unseres Helligkeits- und Farbempfindens dienen spektrale Empfindlichkeitskurven. Die Augenempfindlichkeitskurve $V(\lambda)$ gibt an, wie hell eine bestimmte Wellenlänge von einem Menschen wahrgenommen wird. Durch Gewichtung der spektralen Strahlungsleistung $\Phi_e(\lambda)$ einer Lichtquelle mit dieser Empfindlichkeitskurve ergibt sich der Lichtstrom Φ_v gemessen in Lumen (lm):

$$\Phi_v = 683 \frac{lm}{W} \int_0^\infty \frac{\partial \Phi_e(\lambda)}{\partial \lambda} \cdot V(\lambda) d\lambda \quad (2.11)$$

Auf die aufzuwendende elektrische Leistung P_{el} bezogen, ergibt sich aus dem Lichtstrom die Lichtausbeute

$$\eta_{lumen} = \Phi_v / P_{el}. \quad (2.12)$$

Dies beschreibt die Effizienz einer Lichtquelle im Bezug auf die menschliche Wahrnehmung, gemessen in Lumen pro Watt (lm/W). Eine Lichtquelle mit einem hohen Spektralanteil außerhalb des sichtbaren Bereiches (wie beispielsweise eine Glühlampe, die einen hohen Infrarotanteil aufweist) kann daher nur eine geringe Lichtausbeute erreichen und ist somit für das menschliche Auge ineffizient.

2.2.4. Weiße LEDs

Im menschlichen Auge sind verschiedene Fotorezeptoren für das Lichtempfinden verantwortlich. Diese ermöglichen uns die Wahrnehmung von Helligkeit und Farbe. Werden alle drei Farbrezeptoren ungefähr gleich angeregt, so empfinden wir dies als „weiß“. Die Emission einer LED zeigt verglichen zu anderen Leuchtmitteln ein sehr schmales Spektrum. Man benötigt somit eine Kombination von Leuchtdioden unterschiedlicher Spektralbereiche oder den Einsatz eines Konversionsstoffes, um weißes Licht zu erzeugen.

Durch die Mischung einer blauen, grünen und roten LED lassen sich neben kalt- und warmweißem Licht auch beliebige Mischfarben realisieren. Die Effizienz von grünen LEDs ist allerdings noch stark begrenzt (siehe Abschnitt 2.3.6). Die Verwendung von roten LEDs bedarf zudem den Einsatz des Materialsystems AlInGaP^1 , wodurch aufgrund des unterschiedlichen Temperatur- und Alterungsverhaltens eine aufwändige Regelung notwendig ist, um den Farbort stabil zu halten.

Die Mehrzahl der heutzutage kommerziell verfügbaren weißen LEDs enthalten einen (oder mehrere) Konversionsleuchtstoff(e), um die für Weißlicht benötigten Spektralbeiträge zu erzeugen. Der Leuchtstoff absorbiert einen Teil der kurzwelligen LED-Emission und reemittiert diesen im langwelligen Spektralbereich. Dabei entstehen Verluste durch die begrenzte Konversionseffizienz und dem sogenannten Stokes-Verlust. Die Konversionseffizienz beschreibt das Verhältnis der Anzahl konvertierter zu absorbierten Photonen und erreicht häufig mehr als 90%. Der Stokes-Verlust ist der Energieverlust, der immer mit der Konversion eines kurzwelligen (also höher-energetischen) in ein langwelligeres (also nieder-energetischeres) Photon einhergeht. Bei der Konversion von blauem in gelbes Licht beträgt dieser etwa 20%.

Der heute gängigste Ansatz besteht in der Kombination einer blauen LED mit einem ins Gelbe konvertierenden Leuchtstoff hoher Spektralbreite. Durch den fehlenden Rotanteil im Spektrum ergibt sich üblicherweise ein kaltweißer, bläulicher Farbeindruck. Um für den Heimgebrauch angenehmeres, warmweißes Licht, welches dem einer Glühlampe ähnlich ist, zu erzeugen, kann durch Beimischung eines zusätzlichen Konverters der Rotanteil des Spektrums erhöht werden. Dies wirkt sich zudem positiv auf den Farbwiedergabeindex der Lichtquelle aus. Aufgrund des zunehmenden Stokes-Verlustes bei der Rot-Konversion zeigt die höhere Lichtqualität verglichen mit Lösungen schlechterer Farbwiedergabe aber eine geringere Lichtausbeute.

¹ AlInGaP steht für die Materialmischung aus Aluminium, Indium, Gallium und Phosphor. Im roten Spektralbereich bei 630 nm erreicht man damit LEDs mit internen Effizienzen von mehr als 95%.

Der aktuell vielversprechendste Ansatz, warmweißes Licht guter Farbwiedergabe mit hoher Effizienz zu vereinen, besteht in der Kombination obiger Varianten: Ein teilweise gelbkonvertierter blauer LED-Chip wird durch einen roten LED-Chip ergänzt.

2.3. Grundlagen der Metallorganischen Gasphasen-Epitaxie

2.3.1. Reaktoreigenschaften

Für die Herstellung von kristallin hochwertigen AlInGaN-Halbleiterschichtstapeln haben sich vor allem drei Verfahren etabliert. Neben der in der LED-Produktion kaum verwendeten Molekularstrahl-Epitaxie (MBE²) und der Hydrid-Gasphasen-Epitaxie (HVPE³) dominiert die Metallorganische Gasphasen-Epitaxie (MOVPE⁴) die industrielle Fertigung.

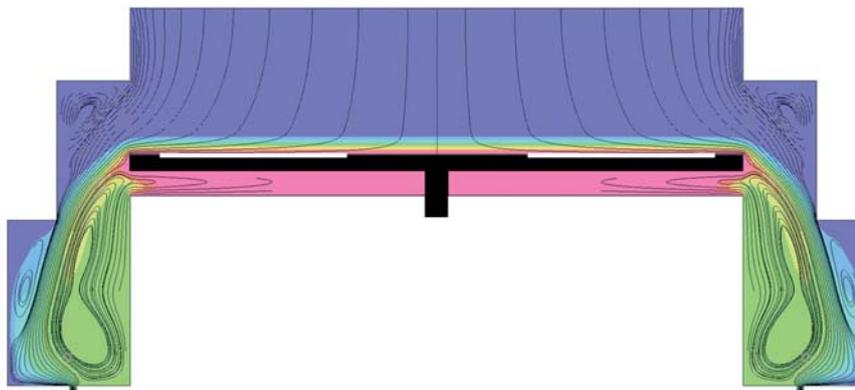


Abbildung 2.9.: Schematische Darstellung des Reaktordesigns mit einer realistischen, simulierten Temperaturverteilung (blau entspricht relativ niedrigen, magenta relativ hohen Temperaturen). Die Gase strömen vom Kopf des Reaktors auf den Carrier (schwarz dargestellt). Durch die hohe Rotationsgeschwindigkeit des Carriers wird ein laminarer Fluß der Gase über die Substrate (weiß hervorgehoben) ermöglicht.

Für die Experimente in dieser Arbeit wurde eine kommerziell verfügbare, großvolumige Produktionsanlage verwendet. Die Anlage besteht aus einem zylindrischen Reaktor, welcher vertikal mit einer jeweils genau definierten Gasmischung durchströmt wird (siehe Kapitel 2.3.2). Hierbei werden am Kopf des Reaktors die Hydride (Ammoniak und Trägergase) und die Metallorganyle (metallorganische Precursoren stark verdünnt mit Wasserstoff und Stick-

²MBE: Abkürzung für Molecular Beam Epitaxy

³HVPE: Abkürzung für Hydride Vapour Phase Epitaxy

⁴MOVPE: Metal Organic Vapour Phase Epitaxy. In der Literatur findet sich zudem oft die gleichwertige Bezeichnung MOCVD (Metal Organic Chemical Vapour Deposition).

stoff als Trägergas) getrennt eingeleitet (siehe Abbildung 2.9). Um die Homogenität der wachsenden Schichten beeinflussen zu können, ist der Einlass in verschiedene Zonen unterteilt.

Die verwendeten Substrate (siehe Abschnitt 2.3.3) befinden sich auf einem schnell rotierenden Träger (Carrier), welcher von unten beheizt wird. Die genaue Einstellung der Wachstumstemperatur erfolgt über drei unabhängig voneinander einstellbare Heizelemente. Übliche Temperaturen für das Wachstum von AlInGaN-Schichten liegen je nach gewünschter Materialkomposition im Bereich zwischen 700 °C und 1100 °C.

Der Reaktordruck kann zwischen ca. 70 mbar und 400 mbar variiert werden und ist neben der Rotationsgeschwindigkeit des Carriers ein wesentlicher Einflussparameter für die Homogenität und Qualität der abgeschiedenen Epitaxieschichten. Um einen laminaren Fluss der Materialien über die Substratoberfläche zu ermöglichen, müssen die Höhe des Gasflusses, die Rotationsgeschwindigkeit und der Druck genau aufeinander abgestimmt werden. Wird dies nicht beachtet, können Verwirbelungen entstehen, welche die Homogenität und Reproduzierbarkeit der Experimente stark beeinträchtigen.

2.3.2. Alkyle und Hydride

Als Stickstoffquelle für das Wachstum der III-Nitridhalbleiter wird Ammoniak (NH_3) verwendet. Dieser zerlegt sich durch Pyrolyse zum Teil in atomaren Stickstoff. Dieser Prozess ist stark temperaturabhängig, wobei die Zerlegungseffizienz zwischen 700 °C und 900 °C stark ansteigt [Liu1972, Baillargeon1991]. Bei hohen Temperaturen über 1000 °C desorbiert Stickstoff auf GaN-Oberflächen deutlich schneller als z.B. Gallium [Koleske1998]. Um so beim GaN-Wachstum ausreichend Stickstoff zur Verfügung zu haben, wird im Vergleich zu den Alkylen ein hoher Ammoniakfluss verwendet. Das eingestellte Verhältnis der Materialflüsse von Gruppe V zu Gruppe III Elementen beträgt im Normalfall zwischen 10^3 und 10^5 (siehe auch Formel 2.16, Seite 28).

Tabelle 2.2 zeigt die Materialeigenschaften der gängigsten Metallorganyle beim Wachstum von GaN. Als Precursor für Gallium wird bei hohen Temperaturen TMGa, bei niedrigen Temperaturen aufgrund der besseren Zerlegbarkeit TEGa verwendet. Für Aluminium und Indium dienen jeweils TMAI und TMIIn als Quelle. Diese Materialien befinden sich abhängig vom Aggregatzustand flüssig bzw. als Feststoff in sogenannten Verdampferflaschen (Bubbler). Diese werden mit einem Trägergas (Stickstoff oder Wasserstoff) durchspült, welches von den

Tabelle 2.2.: Materialparameter der für das AlInGaN-Wachstum gängigen Metallorganyle. Angegeben sind neben dem Materialnamen die chemische Formel, die atomare Masse m , die Schmelztemperatur T_S und die Dampfdruckparameter a und b [SAFC2010].

Material	chem. Formel	m in u	T_S in °C	a	b in K
Trimethylgallium (TMGa)	$(CH_3)_3 Ga$	114,83	-15,8	1703	8,07
Triethylgallium (TEGa)	$(C_2H_5)_3 Ga$	156,91	-82,3	2162	8,08
Trimethylaluminium (TMAI)	$(CH_3)_3 Al$	72,09	15,4	2134	8,22
Trimethylindium (TMIn)	$(CH_3)_3 In$	159,93	88	3014	10,52
Bis(cyclopentadienyl)Mg (Cp ₂ Mg)	$(C_5H_5)_2 Mg$	154,49	176	3372	10,00

Alkylen gesättigt in den Reaktor geleitet wird. Da der Dampfdruck der Alkyle und somit die vom Trägergas aufgenommene Menge an Material stark temperaturabhängig ist, befinden sich die Verdampferflaschen in exakt temperaturgeregelten Bädern. Möchte man das V/III-Verhältnis der in den Reaktor geleiteten Gase bestimmen, kann zunächst der Dampfdruck der Alkyle $p_d(T_{Bubbl\text{er}})$ in mbar berechnet werden. Dieser bestimmt sich zu

$$p_D(T_{Bubbl\text{er}}) = 1,33 \cdot 10^{a - \frac{b}{T_{Bubbl\text{er}}}}, \quad (2.13)$$

wobei a und b den Dampfdruckparametern in Tabelle 2.2 und $T_{Bubbl\text{er}}$ der Temperatur der Verdampferflaschen entsprechen. So kann nun einfach der Gasfluss des Metallorganyls Q_{MO} mit Hilfe des Trägergasflusses Q_{TG} , des Drucks innerhalb der Verdampferflasche $p_{Bubbl\text{er}}$ und des mit Gleichung 2.13 berechneten Dampfdruckes durch

$$Q_{MO} = Q_{TG} \cdot \frac{p_D(T_{Bubbl\text{er}})}{p_{Bubbl\text{er}} - p_D(T_{Bubbl\text{er}})} \quad (2.14)$$

in scm^5 berechnet werden. Der Molfluss berechnet sich unter Annahme eines idealen Gases, bei welchem 1 mol das Volumen von 22,4 l einnimmt, zu

$$q_{MO} = \frac{1 \text{ mol}}{22400 \text{ scm}} \cdot Q_{MO} \quad (2.15)$$

in mol/min . Der Quotient des Molflusses des Ammoniaks durch die Summe der Molflüsse der Alkyle ergibt das V/III-Verhältnis:

$$V/III = \frac{q_{NH_3}}{q_{MO}}. \quad (2.16)$$

⁵scm ist die Abkürzung für standard cubic centimeters per minute

Um die gewünschte Zusammensetzung der Gasmischung im Reaktor genau kontrollieren zu können, wird der Druck in den Verdampferflaschen $p_{Bubbl\text{er}}$ durch einen Druckregler exakt reguliert. Die Flussmengen der Gase können über Mass-Flow-Controller (MFC) eingestellt werden. Diese entnehmen dem durchströmenden Gas einen kleinen Teil und messen über die Kühlwirkung des Gases den Materialfluss, welcher bei einer Abweichung aktiv nachgeregelt wird.

2.3.3. Substrate

Die Verwendung von reinem GaN als Substrat ist aufgrund der hohen Kosten und der geringen Verfügbarkeit, sowohl in Stückzahl als auch Größe, in der LED-Herstellung nicht üblich. Der Vorteil der Homoepitaxie, verspannungsfrei und defektärmer aufwachsen zu können, wird somit kommerziell nicht genutzt. Deshalb ist in der LED-Produktion Heteroepitaxie auf Fremdsubstraten Standard geworden, wobei hier meist Saphir (Al_2O_3) und Siliziumcarbid (SiC) verwendet werden. Hier gilt es besonders die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten, Gitterkonstanten sowie Wärmeleitfähigkeiten zu beachten (siehe Tabelle 2.3).

Tabelle 2.3.: Die Gitterkonstante a , der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient α_a bei Raumtemperatur und die Wärmeleitfähigkeit λ für GaN, Saphir, SiC und Si [Kyocera2010, Leszczynski1994, Ambacher1998, Cree2010, Okaji1988, Glassbrenner1964].

Parameter	GaN	Saphir	SiC	Si
a in Å	3,189	4,763	3,081	5,43
α_a in $10^{-6}/K$ @ 25 °C	3,1	4,5	4,3	2,6
α_a in $10^{-6}/K$ @ 600 °C	5,2	8,2	5,0	4,2
λ in W/Km	163	42	490	148

Durch die unterschiedlichen Abmessungen der Einheitszelle der epitaxiierten Schicht a_E und des Substrates a_S ergibt sich eine Gitterfehlanpassung, welche durch

$$f_G = \frac{a_E - a_S}{a_S} \quad (2.17)$$

berechnet werden kann [Jain2000]. Bei einem negativen Wert der Gitterfehlanpassung f_G steht die aufgewachsene Schicht unter tensiler, bei einem positiven Wert unter kompressiver Verspannung. Unter der Berücksichtigung des um 30° verdrehten Wachstums von GaN auf Saphir, reduziert sich die virtuelle Gitterkonstante des Saphirs um den Faktor $\sqrt{3}$. Dar-

aus ergibt sich laut Gleichung 2.17 eine Gitterfehlانpassung f_G von -13,9% zwischen GaN und Saphir. Das GaN wächst somit zunächst tensil verspannt auf. Der thermische Ausdehnungskoeffizient von Saphir ist jedoch größer als der von GaN (siehe Tabelle 2.3). Durch die starke Temperaturabhängigkeit steigt die Differenz zusätzlich bei Erhöhung der Temperatur an. So beträgt α_a für GaN und Saphir bei 600 °C $5,2 \cdot 10^{-6}/K$ bzw. $8,2 \cdot 10^{-6}/K$ [Kyocera2010, Leszczynski1994]. Dadurch zieht sich der Saphir beim Abkühlen stärker als das abgeschiedene GaN zusammen und der Wafer steht bei Raumtemperatur unter kompressiver Verspannung. Ist diese zu hoch, können Risse in der epitaxierten Schicht entstehen, wodurch ein Teil dieser Verspannung wieder abgebaut wird. Generell ist eine kompressive Verspannung, also eine Druckspannung auf die epitaxierte Schicht, weniger anfällig für Risse als eine tensile, bei der eine Zugspannung ausgeübt wird. Dies ist zum Beispiel aufgrund des niedrigeren Temperatúrausdehnungskoeffizienten von SiC gegenüber GaN der Fall.

Ein aus Sicht der Kosten sehr attraktives Substratmaterial wäre Silizium (Si), da dies in der Halbleiterindustrie weit verbreitet und billig in der Herstellung ist. Bei den verschiedenen Orientierungen hat sich in Studien von Dadgar et al. herausgestellt, dass das Wachstum auf (111)-Si die bisher besten Ergebnisse ermöglicht [Dadgar2007]. Aufgrund der unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von GaN und Si ist die abgekühlte GaN-Schicht stark tensil verspannt, was zu Rissen in der Oberfläche führt. Um diese zu vermeiden, bedarf es eines ausgeklügelten Verspannungsmanagements, welches durch das Einfügen von AlN-Zwischenschichten während des Epitaxieprozesses möglich ist [Dadgar2000]. So bleibt die abgekühlte GaN-Schicht kompressiv verspannt und reißt nicht mehr. Eine Alternative, um die Kostenvorteile von Si nutzbar zu machen, wäre das Wachstum von GaN-Nanosäulen (siehe Kapitel 3). Der kleine Wirkungsquerschnitt jeder einzelnen Säule mit dem Substrat resultiert in nur geringer Verspannung.

2.3.4. Wachstumsprozesse

Die Temperaturabhängigkeit des Wachstums von GaN kann in drei Bereiche aufgeteilt werden. Bei einer Erhöhung der Temperatur steigt die Effizienz der Oberflächenreaktionen und somit des Kristallwachstums exponentiell an. Man spricht hier von einer kinetischen Begrenzung des Wachstums. Mit einer weiteren Erhöhung sättigt dieser Einfluss und man befindet sich in einem relativ temperaturunabhängigen Bereich. Hier wird die Wachstumsrate durch die Diffusion der Materialien zur Oberfläche des Substrates bestimmt. Dieser vom Materi-

altransport abhängige Temperaturrahmen ist aufgrund der besseren Kontrollierbarkeit der gewünschte Betriebsbereich einer MOVPE-Anlage. Bei sehr hohen Temperaturen sinkt die Wachstumsrate wiederum exponentiell ab. Die hauptsächlich mit dem Wachstum konkurrierenden Prozesse sind parasitäre Vorreaktionen und die Zerlegung und Desorption des GaN [Stringfellow1989].

Befindet man sich mit der Temperatur im transportlimitierten Bereich, kann mit Hilfe eines Grenzschichtmodelles das Wachstum beschrieben werden [Stringfellow1989]. Aufgrund der Reibung des Gases mit der Substratoberfläche reduziert sich die Flussgeschwindigkeit der Gase über dem Substrat. Die Dicke dieser Grenzschicht⁶ δ_h hängt beim vertikalen Reaktordesign wesentlich von der Rotationsgeschwindigkeit des Carriers ab. Die Abhängigkeit kann mit

$$\delta_h \sim \sqrt{\frac{\nu r}{v_r}} \quad v_r \approx \omega r \quad \delta_h \sim \sqrt{\frac{\nu}{\omega}} \quad (2.18)$$

beschrieben werden, wobei r dem radialen Abstand zur Carriermitte, ν der kinetischen Viskosität und ω der Winkelgeschwindigkeit entspricht [Shibata1987, Stringfellow1989].

Bei der vereinfachten Annahme, dass der Materialtransport der Wachstumsspezies beim Grenzschichtmodell ausschließlich über Diffusion stattfindet, kann der Materialtransport J durch

$$J = \frac{D \left(p^{(\delta_h)} - p^{(0)} \right)}{RT \delta_h} \quad (2.19)$$

approximiert werden. Neben der empirisch bestimmten Diffusionskonstanten D geben weiterhin $p^{(\delta_h)}$ und $p^{(0)}$ die Partialdrücke des Gruppe III Elements an der Grenzschichtoberseite und direkt auf dem Substrat an. R und T entsprechen der allgemeinen Gaskonstante und der Temperatur. Nimmt man ein hohes V/III-Verhältnis an, ist das Wachstum unabhängig vom Ammoniakfluss.

Die morphologische Form des abgeschiedenen GaN ist abhängig von Parametern wie der Verspannung, der stöchiometrischen Zusammensetzung des Gases in der Grenzschicht, dem Druck und der Temperatur. Es wird dabei von drei grundlegenden Wachstumsarten ausgegangen. Bei optimierten Einstellungen kann auf einem gitterangepassten Substrat eine geschlossene zweidimensionale Schicht aufgewachsen werden. Man spricht vom Frank-van der Merwe Wachstum [Frank1949]. Bildet sich hingegen nach einer kritischen zweidimensionalen Schichtdicke, der sogenannten Benetzungsschicht, dreidimensionales Wachstum aus, wird dies

⁶Oft wird für Grenzschicht die englische Übersetzung Boundary Layer verwendet.

als Stranski-Krastanov Wachstum bezeichnet [Stranski1939]. Das erstmals von Volmer und Weber beschriebene direkte dreidimensionale Wachstum ohne Benetzungsschicht findet häufig bei stark fehlangepassten Schichten statt [Volmer1926]. Abbildung 2.10 zeigt schematisch die verschiedenen Wachstumsmodi.

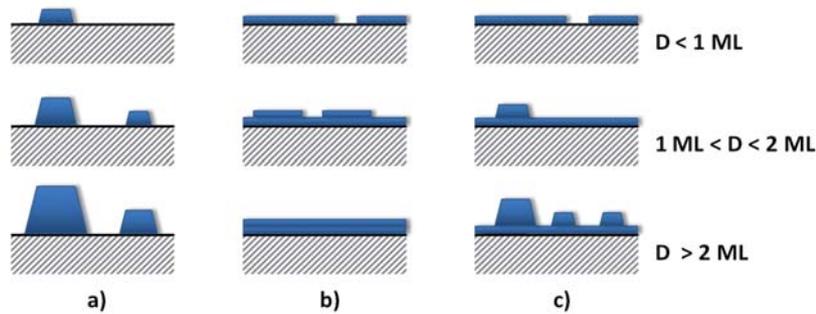


Abbildung 2.10.: Schematische Darstellung von a) Volmer-Weber, b) Frank-van der Merwe und c) Stranski-Krastanov Wachstum.

Ein Beispiel für das Stranski-Krastanov Wachstum stellt die für die Epitaxie von GaN auf Saphir übliche Nukleationsschicht bei tiefen GaN-Wachstumstemperaturen dar [Sitar1994]. Durch die hohe Gitterfehlangepassung und die eingeschränkte Mobilität der Adatome auf der Oberfläche aufgrund der niedrigen Temperatur beträgt die kritische Schichtdicke nur wenige Monolagen und es bilden sich dreidimensionale Inseln. Degave et al. stellten bei TEM-Untersuchungen der Nukleationsschicht Inselwachstum ohne Benetzungsschicht im Volmer-Weber Wachstum fest [Degave2002]. Bei der Nukleation von GaN auf nitridiertem Saphir zeigt sich bei hohen Nukleationstemperaturen reines Inselwachstum [Dwikusuma2003]. Sogar beim Abscheiden von GaN bei hohen Temperaturen auf einem Tieftemperatur GaN-Buffer wird das dreidimensionale Volmer-Weber Wachstum beobachtet [Wu1996].

2.3.5. Dotierung

Die Dotierung von GaN erfolgt für n-leitendes Material mit Silizium und für p-leitendes mit Magnesium. Für die Siliziumdotierung wird das Gas Silan (SiH_4) verwendet. Die Ionisierungsenergie der Siliziumdonatoren liegt im Bereich zwischen 0,02 eV und 0,12 eV [Bougrov2001]. Aufgrund dieser niedrigen Aktivierungsenergie und der von Natur aus intrinsischen n-Leitfähigkeit von GaN entspricht die Anzahl der Donatoren in erster Näherung der Menge der eingebauten Si-Atome.

Der Feststoff Bis(cyclopentadienyl)Mg (Cp_2Mg) dient als Magnesiumquelle für die p-Dotierung (siehe auch Tabelle 2.2). Die Eigenschaften des Mg-Akzeptors, wie die hohe Ioni-

sierungsenergie zwischen 0,14 eV und 0,21 eV [Morkoc1994] sowie die hohe natürliche n-Hintergrunddotierung erschweren die p-Dotierung von GaN. Bei Raumtemperatur ist so nur ein Bruchteil der Akzeptoren aktiv. Zusätzlich wird während des Wachstums Wasserstoff, welcher in ausreichender Menge über das Trägergas oder als Reaktionsprodukt bei der Zerlegung von Ammoniak vorhanden ist, in die Schichten mit eingebaut. Dieser Wasserstoff wirkt als Donator und es können sich Mg-H Komplexe bilden, wodurch der Akzeptor passiviert wird [Walle2004]. Erstmals konnte Amano 1989 p-Leitfähigkeit in GaN zeigen, nachdem er die Probe mit LEEBI (Low Energy Electron Beam Irradiation) behandelte [Amano1989]. Durch diese Behandlung wird der elektrisch neutrale Mg-H Komplex aufgespalten und das Magnesium als Akzeptor aktiviert.

Die Rolle von Wasserstoff beim Wachstum von GaN:Mg als auch die individuellen Defekttypen hängen zudem stark von der Mg Dotierstoffkonzentration ab. Bei typischen Mg-Konzentrationen von mehr als $4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ dominiert die Bildung von Stickstoffvakanz und Stickstoffvakanz-assoziierten Defektkomplexen.

Neben der Dotierung beeinflussen sowohl Silizium als auch Magnesium durch eine veränderte Oberflächenkinetik die Morphologie des gewachsenen GaN. So fördert ein hoher Silanfluss das dreidimensionale Wachstum und kann im Extremfall sogar das Säulenwachstum unterstützen [Koester2010]. Magnesium hingegen fördert stark das laterale Wachstum und wird in der MBE sogar zur Koaleszenz von GaN-Nanosäulen verwendet [Beaumont1998, Kikuchi2004]. Der Einfluss der Dotierung auf das Nanosäulenwachstum in einer Produktionsanlage wird in Abschnitt 5.2 untersucht.

2.3.6. Wachstum von InGaN

Der Einbau von Indium in die aktive Schicht, um die gewünschte Emissionswellenlänge einzustellen (siehe Kapitel 2.1.2), funktioniert in der Realität leider nicht so stufenförmig und homogen wie in der Theorie. Vielmehr ergeben sich aufgrund der hohen Gitterfehlpassung und einer daraus resultierenden Verspannung starke Schwankungen des Indiumgehalts in der aktiven Schicht (siehe auch Abschnitt 2.3.4) [Engl2005]. Zusätzlich zu den Fluktuationen des Indiumgehaltes schwankt auch die Dicke der Quantentröge [Laak2007]. Abbildung 2.11 zeigt eine HRTEM⁷-Aufnahme eines Quantentroges und die dazugehörige Auswertung

⁷HRTEM steht für High Resolution Transmission Electron Microscopy

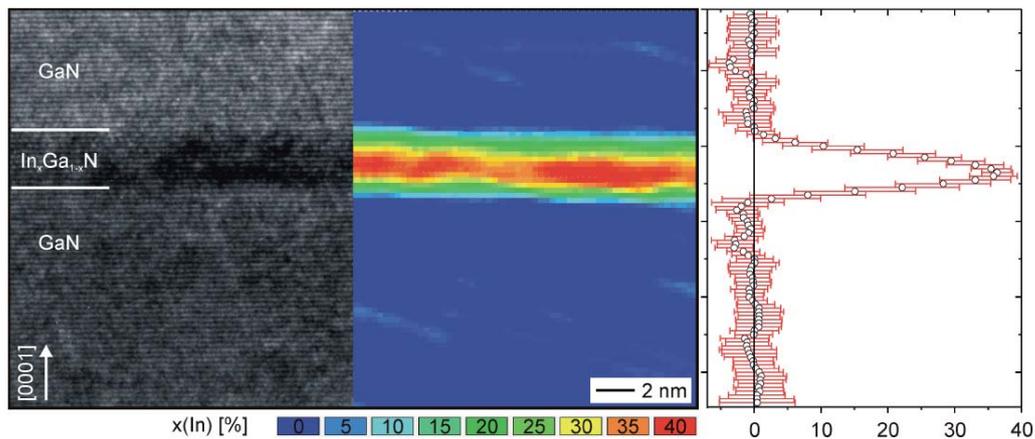


Abbildung 2.11.: HRTEM-Aufnahme im Bereich einer InGaN-Schicht (links), die farbcoodierte In-Konzentrationskarte (Mitte) und über den Bildbereich gemittelter Verlauf der In-Konzentration (rechts) [Engl2005].

des Indiumgehaltes. Es handelt sich hierbei um die DALI⁸-Methode, bei der man aus einer Transmissionselektronenmikroskopaufnahme (TEM) und aus dem linearen Zusammenhang der Gitterabstände

$$d_{In_xGa_{1-x}N} = d_{GaN} + x \cdot (d_{InN} - d_{GaN}) \quad (2.20)$$

Rückschlüsse auf den Indiumgehalt der analysierten Schicht ziehen kann [Rosenauer1996]. Die Mittelwertbildung über die Verteilung ergibt einen gaußförmigen Verlauf und zeigt, dass der Indiumgehalt und die Quantenfilmdicke über der Fläche variieren.

Erhöht man den Indiumgehalt weiter, nehmen Kristalldefekte, Inhomogenitäten und Materialentmischungen zu [Singh1997]. Dies wirkt sich drastisch auf die Materialqualität aus. Während blaue LEDs mit ca. 10% - 18% In-Gehalt heute interne Effizienzen von deutlich über 70% erreichen, fällt dieser Wert im grünen Spektralbereich bei etwa 30% Indium auf weniger als die Hälfte.

Nanostrukturen haben das Potential, qualitativ hochwertige Schichten mit hohem In-Gehalt zu realisieren. Durch die reduzierte Anzahl von Defekten und die Möglichkeit eines lateralen Spannungsabbaus aufgrund der geringen Abmessungen wurde bereits Emission im roten Spektralbereich erreicht (siehe Kapitel 3).

⁸DALI steht für digital analysis of lattice images [Rosenauer1996]

Kapitel 3.

GaN-Nanosäulen - Stand der Technik

Seit Ende der 90er Jahre zum ersten Mal von Sanchez-Garcia et al. und Yoshizawa et al. in einer MBE das Wachstum von GaN-Nanosäulen gezeigt werden konnte, steigt die Anzahl der Veröffentlichungen darüber kontinuierlich an [Yoshizawa1998, Garcia1998, Waag2010].

Die Vorteile, die GaN gewachsen in Säulenform mit sich bringt, sind weit gefächert. Zum einen erhält man durch den geringen Durchmesser der Nanosäulen und dem damit verbundenen geringen Wirkungsquerschnitt mit dem Substrat die Möglichkeit, auf stark gitterfehlangepassten Substraten wie Saphir oder Silizium verspannungsfrei aufzuwachsen [Calleja2000, Mamutin2000] (siehe auch Abschnitt 2.3.3). Auch unterschiedliche thermische Ausdehnungskoeffizienten können so zumindest zum Teil kompensiert werden. Des Weiteren konnte ein Abbiegen von Liniendefekten zur Oberfläche der Nanosäulen und eine damit verbundene Verbesserung der Materialqualität beobachtet werden (siehe auch Abschnitt 4.3) [Hersee2006, Colby2010, Bergbauer2010]. Darüber hinaus existieren noch eine Vielzahl an weiteren Vorteilen, wie zum Beispiel die Möglichkeit, durch die geschickte Auswahl der Position der Nanosäulen photonische Effekte auszunutzen oder defektreduzierte, zweidimensionale Templates herzustellen, wobei für die Herstellung von Templates auch geätzte Nanosäulen verwendet wurden [Koelper2010, Chen2009, Tang2008, Shields2010]. Ein weiterer Vorteil der Nanogeometrie ist der verbesserte Einbau von Indium. Durch die kleinen Abmessungen der Nanosäulen kann ein Teil der Verspannung, die durch den Einbau von Indium in jedem InGaN/GaN-System induziert wird, über eine Verformung der Geometrie relaxiert werden [Sacconi2010]. Dieser interessante Punkt wird gesondert in Abschnitt 3.2 diskutiert.

Trotz all dieser intensiven Forschungsanstrengungen lässt die Anwendung von Nanosäulen in einem kommerziellen Produkt noch auf sich warten. In diesem Kapitel soll nach einer kurz-

en geschichtlichen Betrachtung des GaN-Nanosäulenwachstums mit verschiedenen Methoden und auf unterschiedlichen Reaktortypen der aktuelle Stand der Wachstumstechniken beschrieben werden. Im Anschluss daran folgt die Erörterung der Besonderheiten beim Einbau von InGaN in Nanosäulen. Den Abschluss des Kapitels bildet der Überblick über Versuche, GaN-Nanostrukturen elektrisch zu betreiben und einen Chipprozess zu entwerfen.

3.1. Wachstum von GaN-Nanosäulen

Grundsätzlich muss bei der Synthese von GaN-Nanosäulen zwischen zwei verschiedenen Ansatzpunkten unterschieden werden. Auf der einen Seite stehen Verfahren, bei welchen ein Katalysator für das Wachstum hinzugezogen wird. Die zweite Methode verzichtet auf die Verwendung eines zusätzlichen Materials und erreicht durch gezielte Veränderung der Wachstumsparameter eine Veränderung der sich ausbildenden Kristallform.

Bei der Benutzung von Katalysatoren für das Wachstum von GaN-Nanosäulen dienen oft die Metalle Nickel (Ni) und Gold (Au) als Wachstumskeim. Dabei spielt stets der VLS-Mechanismus¹ die tragende Rolle [Wagner1965]. Ein Metalltropfen dient hierbei als Katalysator. Das Material aus der Gasphase diffundiert in den Metalltropfen, was zu einer Übersättigung und Schmelzpunktreduzierung führt. An der Grenzfläche zwischen Flüssigkeit und Feststoff scheidet sich dann das Material ab. Diese Methode konnte für GaN-Nanosäulen bereits mit den drei gängigsten Epitaxietechnologien, in der MBE [Geelhaar2007], mittels MOVPE [Qian2004, Kuykendall2003, Kuykendall2004] und mittels HVPE [Seryogin2005] gezeigt werden. Der Vorteil dieser Methode liegt in der Einfachheit, Säulenwachstum zu erreichen. Die Wachstumsparameter ähneln dabei denen herkömmlichen Schichtenwachstums. In der Regel resultieren aus diesen Wachstumsexperimenten selbstorganisierte GaN-Nanosäulen. Durch eine exakte Positionierung der Metalltröpfchen ist hier eine Kontrolle der Verteilung der Nanosäulen denkbar. Ein großer Nachteil dieser Methode besteht allerdings darin, dass die Inkorporation der verwendeten Katalysatoren in den Kristall der Nanosäule nicht vermieden werden kann. Diese Fremdatome können nichtstrahlende Zentren bilden und somit die optische Qualität und damit die Effizienz nachhaltig beeinträchtigen. In einer vergleichenden Studie von Cheze et al. waren bei Nanosäulen, die mit Ni als Katalysator gewachsen wurden, in TEM-Aufnahmen deutlich mehr Stapelfehler sichtbar und bei optischen Untersuchungen wurde ein um den Faktor 25 schwächeres PL-Signal gemessen [Cheze2010].

¹VLS steht für Vapour-Liquid-Solid

Ohne Zuhilfenahme von Katalysatoren war das Wachstum von GaN-Nanosäulen lange Zeit auf MBE beschränkt [Yoshizawa1998, Garcia1998] (siehe Abbildung 3.1 a)). Dort konnte mit Hilfe von sehr stickstoffreichen Wachstumsbedingungen das dreidimensionale Wachstum von GaN realisiert werden. Aufgrund der sehr kleinen Durchmesser der Nanosäulen im Bereich weniger 10 nm wurden Aspektverhältnisse weit über 10 möglich. Erst 2002 demonstrierten Kim et al. das Wachstum von selbstorganisierten GaN-Nanosäulen in einer HVPE-Anlage, in diesem Fall direkt auf Saphir [Kim2002] (siehe Abbildung 3.1 b)).

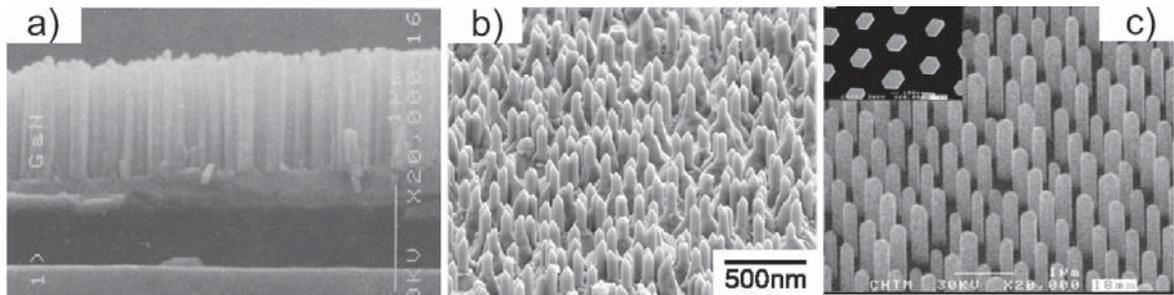


Abbildung 3.1.: Abbildung der ersten GaN-Nanosäulen ohne Katalysator synthetisiert in der a) MBE [Garcia1998], b) HVPE [Kim2002] und c) MOVPE [Hersee2006].

Zwei wichtige Schritte in einem gelangen schließlich Stephen D. Hersee 2006, der als Erster GaN-Nanosäulen in einer MOVPE wachsen und deren Position durch die Verwendung einer dielektrischen Maske kontrollieren konnte [Hersee2006]. Durch das Pulsen der Gallium- (TMGa) und Stickstoffquelle (NH_3) realisiert er ein für MOVPE-Verhältnisse außergewöhnlich geringes V/III-Verhältnis, welches das vertikale Wachstum ermöglicht. Dies steht in starkem Kontrast zu den Erfahrungen in der MBE, bei der ein sehr stickstoffreiches Wachstum für die Bildung von Nanosäulen benötigt wird. Die Positionierung der Säulen wurde mit Hilfe einer SiN_x Maske auf einer GaN-Schicht realisiert, wobei die Maskierschicht mit Hilfe von Interferenzlithographie vorstrukturiert wurde. Abbildung 3.1 c) zeigt die hexagonale Grundform der GaN-Nanosäulen, welche sich trotz runder Maskenöffnungen ausbildet. Obwohl bei diesem Verfahren TMGa und NH_3 abwechselnd zugegeben werden, ergaben sich Wachstumsraten von $2 \mu\text{m/h}$. Bei seinem Vortrag auf der IWN 2008 in Montreux, Schweiz, gab er Höhen von $20 \mu\text{m}$ und Durchmesser der Nanosäulen zwischen 90 nm und 700 nm an. Auch die Temperaturkontrolle wurde hier als wichtiger Punkt bei seinen Ausführungen angegeben, detaillierte Werte und Abhängigkeiten fehlten allerdings. Das gepulste Wachstum wurde dabei in einem für Laboranforderungen designten P75 Turbodisk-Reaktor durchgeführt und konnte

bis dato nur von einer Gruppe in Taiwan auf dem gleichen Reaktortyp reproduziert werden [Tang2008]. Der Transfer dieser Methode auf großvolumige Produktionsanlagen ist aufgrund der wesentlich erhöhten Menge an Gas, welches pro Puls ausgetauscht werden müsste, nicht nur kompliziert in der Ausführung, sondern auch hinsichtlich des Betriebes (Reproduzierbarkeit und Kontrolle des Prozessfensters, Stabilität der laminaren Strömungsbedingungen, Kontrolle der Temperatur in der Grenzschicht) nicht erstrebenswert.

Im Jahr 2008 stellten Kishino et al. das selektive und somit positionskontrollierte Wachstum von GaN-Nanosäulen in einer MBE vor [Kishino2008]. Die Nutzung einer Titan-Maske resultierte in Kombination mit hohen Wachstumstemperaturen in einer ausgezeichneten Selektivität [Kishino2009]. In Abbildung 3.2 sind diese geordneten Nanosäulen dargestellt. Im Vergleich zum konventionellen GaN-Wachstum in der MBE musste auch hier wieder ein sehr stickstoffreiches Regime gewählt werden, um ein kolumnares Wachstum zu gewährleisten.

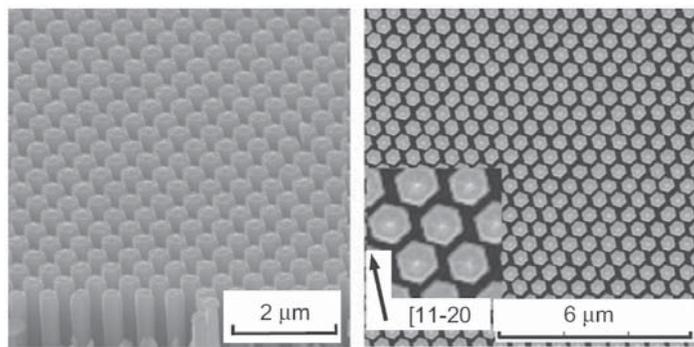


Abbildung 3.2.: REM-Bild von geordneten GaN-Nanosäulen gewachsen in einer MBE mit Hilfe einer Ti-Maske [Kishino2009].

Aschenbrenner et al. veröffentlichten das Wachstum von selbstorganisierten GaN-Nanosäulen auf Saphirsubstrat, welches entlang der r-Ebene poliert wurde (siehe auch Abbildung 2.1) [Aschenbrenner2009]. Dazu wurde zunächst das Saphirsubstrat in einer MOVPE-Anlage nitridiert und kleine Ga-Nukleationskeime auf der Oberfläche abgeschieden. Die eigentlichen Nanosäulen wachsen dann anschließend in einer MBE unter einem Winkel von etwa 62° zur Substratoberfläche, eingebettet in einer geschlossenen GaN-Schicht. Die verkippte Wachstumsrichtung entspricht einem Wachstum parallel zur c-Orientierung.

GaN-Nanosäulen ohne gepulste Flüsse auf einem konventionellen c-orientierten Saphirsubstrat in einer MOVPE konnten neben den im Rahmen dieser Arbeit erzielten Ergebnissen erst 2010 von Koester et al. erreicht werden [Koester2010]. Nach dem Abscheiden einer dünnen SiN_x -Schicht direkt auf Saphir wurde das kolumnare Wachstum durch eine hohe Si-

Dotierung und ein extrem kleines V/III-Verhältnis induziert und stabilisiert. Die optimalen Einstellungen für das selbstorganisierte Wachstum von GaN-Nanosäulen waren hier bei einem V/III-Verhältnis zwischen 10 und 20, einer sehr hohen Si-Dotierung, welche nominell einen Wert von $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ beim Wachstum auf zweidimensionalen Templates entspricht und bei Temperaturen von über 1000 °C.

Das Wachstum von GaN-Nanosäulen mit kontrollierter Position der Nukleation einzelner Säulen ohne die Notwendigkeit eines gepulsten Prozesses wurde erstmals im Laufe dieser Dissertation erreicht (siehe Kapitel 4) [Bergbauer2009, Bergbauer2010, Bergbauer2010b, SFLi2010, SFLi2010b, Waag2010].

3.2. Einbau von Indium

Der homogene Einbau von Indium, insbesondere höhere Konzentrationen in InGaN/GaN-Quantenfilmstrukturen, ist Grundvoraussetzung für optoelektronische Applikationen von Nanosäulen. Dieser gestaltet sich allerdings in der Praxis alles andere als trivial (siehe auch Abschnitt 2.3.6). Aufgrund der hohen Verspannung segregiert das Indium und die Homogenität verschlechtert sich auf dem Weg zu höheren Wellenlängen. Die interne Quanteneffizienz sinkt deutlich. Durch die kleinen Abmessungen der Nanosäulen kann theoretisch ein Teil der hohen Verspannung durch eine Verformung der Geometrie relaxiert werden [Sacconi2010]. Zudem sind die Nanosäulen zu einem großen Teil defektfrei (siehe Abschnitt 3.1), wodurch sich keine zusätzlichen Indium-Inhomogenitäten an Versetzungen bilden können.

Erste Berichte über den Einbau von optisch aktiven InGaN/GaN-Heterostrukturen in gewachsene Nanosäulen wurde 2004 fast zeitgleich für die MBE, HVPE und MOCVD veröffentlicht [Kikuchi2004, Kim2004, Qian2004].

Kikuchi et al. konnten in den vertikalen Verlauf der Nanosäulen InGaN/GaN-Quantendisks einbauen, die bei einer Wellenlänge zwischen 530 nm und 645 nm Elektrolumineszenz emittierten. Abbildung 3.3 illustriert die Leuchtbilder von blauer bis roter Emission [Kishino2007]. Durch die Dotierung der p-Seite der Nanosäulen mit Magnesium verstärkte sich das laterale Wachstum deutlich und die Säulen ähneln der Form eines Champagnerglases. Durch die daraus folgende Koaleszenz besteht die Möglichkeit, ohne ein weiteres Verfüllen der Nanosäulen Kontakte auf der Oberfläche abzuscheiden und somit Elektrolumineszenzmessungen durchzuführen. Bei weitergehenden Untersuchungen an den gewachsenen Nanosäulen konnte bei

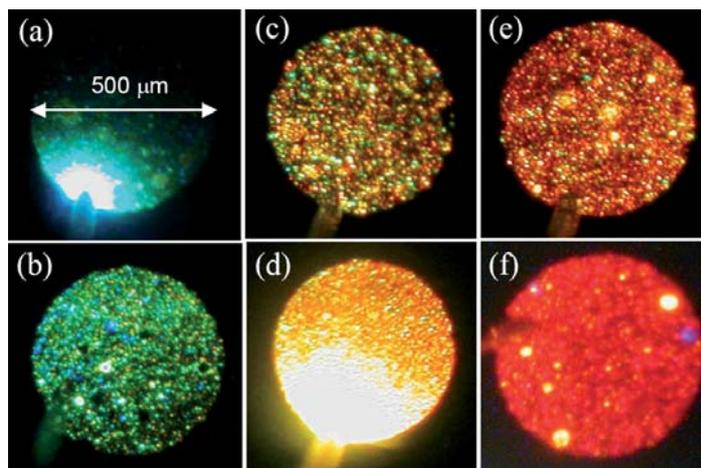


Abbildung 3.3.: Leuchtbilder InGaN/GaN-Nanosäulen bei verschiedenen Wellenlängen [Kishino2007].

EL-Messungen keine signifikante Blauverschiebung der Emissionswellenlänge detektiert werden [Kishino2007]. Als mögliche Erklärung wurde ein verminderter piezoelektrischer Effekt aufgrund einer geringeren Verspannung in den Nanosäulen herangezogen. Durch die geringen Durchmesser im Bereich von 50–150 nm erscheint dies realistisch. In der aktuellsten Veröffentlichung von Sekiguchi et al. wird die Möglichkeit demonstriert, durch die Positionskontrolle der Nanosäulen den Indiumeinbau zu beeinflussen und somit die Emissionswellenlänge zu bestimmen [Sekiguchi2010]. Dies wird durch die sehr kleinen Indiumdiffusionslängen auf der Oberfläche erklärt, die in der MBE im Gegensatz zur MOVPE auftreten. Dadurch wird die Menge des verbauten Indiums durch die Abschattung der Nachbarsäulen beeinflusst. Je dichter die Nanosäulen gepackt sind, desto weniger Indium erreicht die Spitze der Nanosäule und wird eingebaut. Die Emissionswellenlänge sinkt. Ein anderer Ansatz zur Erzeugung weißen Lichtes, wurde von Lin et al. [Lin2010] vorgestellt. Diese Forschergruppe stapelt Quantenfilme mit verschiedenen Indiumkonzentrationen übereinander und erreicht so weiße Emission. Allerdings scheint im Elektrolumineszenzbild die Farbmischung mehr aus einem unterschiedlichen Einbau von Indium in einzelne Nanosäulen, als durch die gestapelten Quantenfilme zu resultieren. Das heißt, einzelne Säulen leuchten rot, grün oder blau und erst die Mischung der Lumineszenz eines Nanosäulenensembles ergibt weiß.

Die in der HVPE gewachsenen Nanosäulen von Kim et al. zeigten bei Querschnitts-TEM Aufnahmen ähnliche Quantendisks wie die mittels MBE gewachsenen Strukturen [Kim2004]. Die Durchmesser dieser Nanosäulen liegen ebenfalls bei sehr geringen 70 – 90 nm. Bei Elektrolumineszenzmessungen wurde hier im Gegensatz zu den Ergebnissen von Kishino et al.

eine signifikante Blauverschiebung mit zunehmender Stromdichte detektiert. Da allerdings hier ein komplettes Bauteil vermessen wurde (im Gegensatz eines nur sehr kleinen Spots bei Kishino et al.), kann diese Blauverschiebung bei einer inhomogenen Indiumverteilung von Nanosäule zu Nanosäule mit einem Auffüllen der energetisch niedrigsten Zustände bei hohem Indiumgehalt erklärt werden. Die NanoLED zeigte verglichen zu einer konventionellen LED eine bis zu viermal höhere Ausgangsleistung. Allerdings ist dieser Vergleich zu einer unaufgerauten Epitaxieschicht nicht aussagekräftig.

Die Vergrößerung der aktiven Oberfläche durch das Überziehen von GaN-Nanosäulen mit einer InGaN/GaN-Heterostruktur (Core-Shell-Ansatz) konnte erstmals in einer MOVPE-Anlage erreicht werden [Qian2004]. Die mit Hilfe eines Ni-Katalysators gewachsenen GaN-Nanosäulen zeigen einen dreieckigen Grundriss. Diese dreieckigen Nanosäulen mit einem Aspektverhältnis von über 20 wurden komplett von einer InGaN-Schicht überzogen. 2005 präsentierten Qian et al. Elektrolumineszenz von Nanosäulen, welche mit einem Quantenfilm, einer AlGaN-Elektronenblockierschicht und p-GaN überzogen waren. Auch hier konnte, wie im Falle der MBE, die Emissionswellenlänge variiert werden [Qian2005]. Die EL-Emissionsspektren liegen zwischen 367 nm und 577 nm. Nanosäulen mit einem Überzug von 26 Multiquantenfilmen waren ein Highlight in einer Nature-Veröffentlichung 2008 [Qian2008]. Durch optisches Pumpen konnte stimulierte Emission nachgewiesen werden.

Das Wachstum von selbstorganisierten, reinen InGaN-Nanosäulen mit Hilfe eines HCVD²-Verfahrens wurde 2007 von Kuykendall veröffentlicht [Kuykendall2007]. Durch relativ niedrige Prozesstemperaturen und fast vollständiger Abwesenheit von Wasserstoff während des Wachstums wurde die Möglichkeit geschaffen, die Emissionswellenlänge von UV bis Infrarot über die Veränderung des Indiumgehaltes einzustellen. Durch das Fehlen des Kohlenstoffs in der Gasphase konnte die Materialqualität auf hohem Niveau gehalten werden (vergleiche auch Abschnitt 4.3).

Eine Veränderung der Emissionswellenlänge, verursacht durch unterschiedliche Kristallorientierungen, wurde an pyramidalen Strukturen untersucht [Fuendling2009, Wunderer2010]. Das Wachstum von Core-Shell Nanosäulen und die Abhängigkeit der Emission von den verschiedenen Facetten wird im Laufe dieser Arbeit vorgestellt (siehe Kapitel 5 und in den Veröffentlichungen [Bergbauer2010, Waag2010]).

²HCVD steht für Halide Chemical Vapour Deposition

3.3. Chiptechnologie

Neben dem Wachstum der Nanosäulen ist die Entwicklung eines geeigneten Chipdesigns für dreidimensionale Strukturen notwendig. Herkömmliche, für zweidimensionale Epitaxieschichten etablierte Produktionsdurchläufe, lassen sich nicht ohne weiteres auf NanoLEDs übertragen. In diesem Abschnitt werden veröffentlichte Chipkonzepte für InGaN/GaN-Nanosäulen vorgestellt, ungeachtet ob die Nanosäulen epitaxiert oder aus einer zweidimensionalen Schicht geätzt wurden. Auf Kontaktierungsmethoden, die einzig auf der Ansteuerung von einzelnen Nanosäulen mittels Nanonadeln oder Einzelkontakten beruhen, wird an dieser Stelle allerdings nicht eingegangen.

Der einfachste Ansatz für ein elektrisch betriebenes Bauteil bietet die Koaleszenz der p-Schicht, wie es von Kikuchi et al. vorgestellt [Kikuchi2004] und 2010 von einer Forschergruppe des LETI reproduziert wurde [Bavencove2010]. Dabei ist ein Verfüllen der Nanosäulen nicht notwendig und die Kontaktierung ist durch ein einfaches Aufdampfen eines p-Kontaktes realisierbar. Abbildung 3.4 ist die schematische Darstellung dieses möglichen Chipkonzeptes. Lin

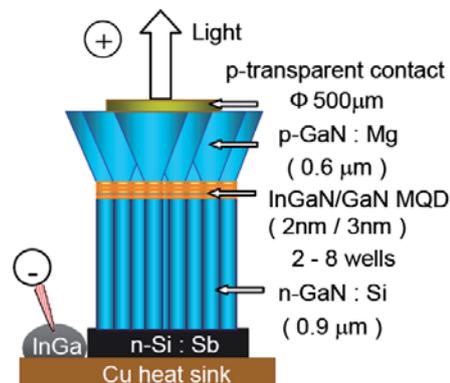


Abbildung 3.4.: Schematische Darstellung der Kontaktierung der Nanosäulen [Kishino2007]. Die p-Seite wird durch die Zugabe von Mg als Dotiermaterial koalesziert und bietet somit die Möglichkeit der direkten p-Kontaktierung.

et al. konnten mit diesem Ansatz die erste weiß emittierende, phosphorfreie NanoLED demonstrieren [Lin2010] (siehe auch Abschnitt 3.2). Der dabei erreichte Weißpunkt liegt relativ nahe der Planck'schen Kurve bei einer Farbtemperatur von 6000 K. Zur Ausgangsleistung, der Vorwärtsspannung oder der Effizienz wurden hier leider keine Angaben gemacht.

Eine Möglichkeit, Nanosäulen ohne Koaleszenz und ohne ein Verfüllen zu kontaktieren, wurde von Lee et al. vorgestellt [Lee2009b]. Hierbei wurde Indiumzinnoxid (ITO) unter sehr flachem Winkel (5°) auf die geätzten NanoLEDs aufgedampft und somit ein Kurzschluss des

pn-Überganges vermieden. Das Durchhängen der Strom-Spannungskennlinie deutet jedoch auf einen größeren Leckpfad hin, der erst bei einem Strom von etwa 5 mA abgesättigt ist.

Die vorgestellten, unverfüllten Bauteile besitzen allerdings gravierende Nachteile. Der offene pn-Übergang birgt die Gefahr eines Kurzschlusses beim Trennen der einzelnen Chips. Des Weiteren besteht die Gefahr einer beschleunigten Alterung, da sich Feuchtigkeit sehr einfach im Chip ausbreiten kann. Für erste Funktionstests ist dieses Chipkonzept jedoch sicher ausreichend. Bei einem kommerziell verfügbaren Produkt müssten die freien Zwischenräume allerdings mit einem geeigneten Material verfüllt oder die Säulen anderweitig passiviert werden.

Die Passivierung von geätzten Nanosäulen mit einer etwa 100 nm dicken CVD-SiO₂-Schicht wurde von Chen et al. zum Schutz der aktiven Schicht gegen parasitäre Leckströme vorgeschlagen [Chen2010]. Das SiO₂ zieht sich komplett über die n- und p-Seite. Der Kontakt zur n-Seite erfolgt über die verbleibende leitende GaN-Schicht zwischen dem Saphir und den Säulen, wie bereits in anderen Chipkonzepten seit Jahren etabliert. Um die p-Seite kontaktieren zu können, wurde die CVD-SiO₂-Schicht selektiv durch chemisches, mechanisches Polieren (CMP) mit Al₂O₃-Partikeln an der Spitze der Nanosäulen entfernt. Durch den unterschiedlichen Härtegrad von GaN und SiO₂ sollte eine Schädigung des GaN bei einer vollständigen Entfernung des SiO₂ vermieden werden. Für den p-Kontakt wurde eine dünne, semitransparente Au/Ni-Schicht aufgedampft (jeweils 5 nm). Messungen der Vorwärtsspannung zeigten einen starken Anstieg mit steigender Stromdichte und deuten entgegen der Behauptung dennoch auf eine Schädigung hin.

Ein mögliches Chipdesign mit verfüllten Nanosäulen stellten Kim et al. 2004 für mittels HVPE gewachsene Nanosäulen vor (siehe Abbildung 3.5) [Kim2004]. Um die Nanosäulen elektrisch voneinander zu isolieren, wurden diese mit einem Spin-On-Glas (SOG) verfüllt. Dabei mussten die Nanosäulen einen Abstand von mindestens 80 nm voneinander aufweisen, um ein vollständiges Verfüllen zu ermöglichen (siehe hierzu auch Verfüllexperimente in Abschnitt 6.2). Vor der Kontaktierung der p-Seite wurde mit Hilfe eines trockenchemischen Ätzschrittes die n-Seite freigelegt und dort ein tiefergelegter Ti/Al n-Kontakt abgeschieden. Als p-Kontakt wurde ein Kontakt aus Ni/Au verwendet. Diese Materialkomposition wurde sehr dünn (20/40 nm) auf die gesamte p-Seite aufgedampft, um eine gewisse Transparenz bei noch akzeptabler Stromaufweitung zu gewährleisten. Für hocheffiziente Bauteile ist diese Methode somit jedoch nicht geeignet, da die Lichtabsorption des halbtransparenten Metall-

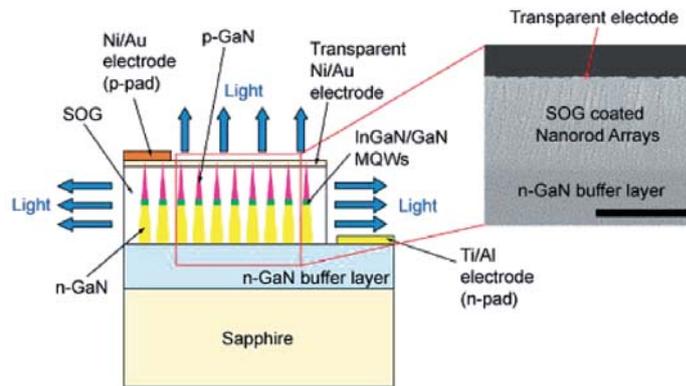


Abbildung 3.5.: Schematische Darstellung des Chipdesigns von Kim et al. [Kim2004]. Die Nanosäulen sind mit einem Spin-On-Glas verfüllt. Der n-Kontakt wird über den hochleitfähigen Buffer realisiert. Als p-seitige Stromaufweitung findet ein transparenter Ni/Au-Kontakt Verwendung.

kontaktes zu groß ist. Darüber hinaus sind Spin-On-Gläser in der Handhabung gerade bei produktionsüblichen Prozessierungsschritten kritisch zu sehen, da z.B. bei Plasmaprozessen flüchtige Stoffe ausgasen können. Sehr ähnliche Vorgehensweisen für gewachsene sowie geätzte NanoLEDs (siehe auch Abschnitt 6.1) sind in weiteren Veröffentlichungen zu finden [Wang2008, Hersee2009, Cheng2009]. Stets wird ein Spin-On-Glas als Matrix für die Nanosäulen verwendet. Der p-seitige Top-Kontakt wird allerdings bei Wang et al. und bei Cheng et al. über ein transparentes ITO realisiert, wodurch die Absorption im Vergleich zu Metallkontakten signifikant verringert ist.

Viele bereits veröffentlichte Ansätze für ein mögliches Chipdesign sind vielversprechend. Allerdings ist bis dato keine für eine LED-Fertigung sinnvolle Prozessabfolge publiziert. Aus diesem Grund wurden in dieser Arbeit neue Prozessschritte entwickelt, welche die oben erwähnten Nachteile (z.B. Ausgasen von Verfüllmaterialien, Feuchtedegradation etc.) einschränken (siehe Kapitel 6).

Kapitel 4.

Das Wachstum von geordneten Nanosäulen

Das kontrollierte Wachstum von Nanosäulen ist die Grundlage, um die von der Theorie vorhergesagten Vorteile dieser nanoskopisch kleinen Strukturen technologisch nutzbar zu machen. Hier gilt es zunächst, die Positionierung der einzelnen Säulen mit Hilfe einer geeigneten Vorstrukturierung des Substrates zu ermöglichen. Die dazu notwendigen Schritte, von der Bereitstellung des Substrates über die Wahl eines geeigneten Maskenmaterials bis hin zur Öffnung dessen, werden im ersten Abschnitt 4.1 thematisiert.

Die gezielte morphologische Veränderung von Nanostrukturen durch die Steuerung konventioneller MOVPE Wachstumsparameter und der Vorgabe des Maskendesigns bildet den zentralen zweiten Abschnitt dieses Kapitels. Die Ergebnisse der Experimente zum Einfluss der Trägergaskomposition, der Temperatur, der Wachstumsdauer sowie des Abstandes zwischen den Säulen beziehen sich auf das GaN-Wachstum in $[000\bar{1}]$ Richtung. Die Auswirkung der Kristallorientierung auf das 3-dimensionale Wachstum wird gesondert behandelt. Die Verknüpfung dieser Erkenntnisse zu einem Wachstumsmodell schließt diesen Abschnitt ab.

Punkt 4.3 behandelt die Evaluation der strukturellen und optischen Eigenschaften der gewachsenen Nanosäulen. Die Beschreibung der Defektgeneration bei der Nukleation sowie die Auswirkung der Wachstumsparameter auf den Einbau von Defekten bilden dann den Abschluss des Kapitels.

4.1. Positionskontrolle des Nanosäulenwachstums: Templateherstellung

Um die Eigenschaften eines späteren Bauteiles kontrollieren zu können, ist es von hoher Notwendigkeit, die Anordnung der wachsenden Nanosäulen gezielt beeinflussen zu können. Das selektive Wachstum von GaN auf den Templaten wird ermöglicht, indem diese mit einer dielektrischen Wachstumsmaske versehen werden, die an den gewünschten Positionen der Nanostrukturen gezielt geöffnet wird [Kato1994]. Je höher die Selektivität, desto weniger parasitäre Nukleationen entstehen auf der Maskenoberfläche. Als Maskenmaterial findet oft SiO₂ seine Anwendung, welches mittels plasmaunterstützter chemischer Gasphasenabscheidung (PECVD) als dünne Passivierschicht aufgedampft wird. Die Dicke variiert je nach anschließender Strukturierungsart zwischen 30 nm und 100 nm. Neben SiO₂ bietet auch SiN_x eine ausgezeichnete Selektivität und wird bei Wachstumsexperimenten in der MOVPE als Maskierschicht verwendet.

Bereits mit der Wahl des Templateaufbaus kann entscheidender Einfluss auf die späteren Eigenschaften der gewachsenen Strukturen genommen werden. Dabei hat besonders die Orientierung des Substrates einen wesentlichen Einfluss auf die Morphologie der gewachsenen Nanosäulen (siehe Abschnitt 4.2.4). Für die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente wurden zwei verschiedene Grundstrukturen gewählt: Die Verwendung von Saphir als Wachstumsgrundlage ermöglicht durch gezielte Nitridierung (siehe Kapitel 4.2) ein Wachstum in die Kristallrichtung $[000\bar{1}]$. Im Gegensatz dazu kann bei Verwendung einer konventionellen GaN-Schicht auf einem Saphirsubstrat die Kristallrichtung $[0001]$ vorgegeben werden. Während unbehandelte Saphirsubstrate wegen ihrer glatten Oberfläche ausgezeichnet als Grundlage für die Vorstrukturierung geeignet sind, muss bei Templaten mit GaN-Zwischenschicht die Morphologie bei der Wahl einer geeigneten Methode zum Strukturübertrag bedacht werden.

4.1.1. Verwendete Lithographieverfahren

Für die Übertragung der gewünschten Anordnung der Nanosäulen stehen je nach Strukturgröße verschiedene Verfahren zur Verfügung.

Werden Strukturen über 500 nm benötigt, bietet die optische Lithographie (OL) die kostengünstigste und die am weitesten verbreitete Möglichkeit. An der Technischen Universität Braunschweig steht für die Belichtung ein Suess MJB4 Mask Aligner zur Verfügung. Bei

der Templatestrukturierung wird zunächst durch einen Spin-on Prozess ein Photolack auf den Wafer aufgebracht und bei hoher Rotationsgeschwindigkeit auf die gewünschte Dicke geschleudert. Die Photomaske wird anschließend in Kontakt mit dem Template gebracht und der Lack mit 365 nm kurzwelliger UV-Bestrahlung (I-Line) durch die Maske hindurch belichtet. Nach dem Entwickeln wird durch plasmaunterstütztes Ätzen (RIE) die Wachstumsmaske an der gewünschten Position geöffnet.

Eine Möglichkeit, kleinere Strukturgrößen im Bereich von 500 nm bis hinab zu wenigen 10 nm zu realisieren, bietet die Nanoimprint Lithographie (NIL). Hierbei wird die Struktur mit Hilfe eines Stempels auf das Template übertragen. Weltweit führend in dieser Technologie sind die beiden Firmen Molecular Imprints Inc. und Obducat AB. Im Folgenden soll nun am Beispiel der Prozessschritte der Firma Obducat dieses Verfahren näher erläutert werden.

Die Strukturierung des initialen Stempels, dem sogenannten Masterstempel, findet in der Regel mit Hilfe von Elektronenstrahlolithographie (E-BEAM) statt. Hierbei verwendet man meist einen mit Photolack beschichteten Si-Wafer, der dann auf die gewünschte Strukturtiefe geätzt wird. Dieser zeitaufwändige Prozessschritt ermöglicht die Realisierung von kleinsten Strukturen, verursacht allerdings einen Großteil der Kosten, die bei diesem Verfahren auftreten.

Mittels Nickel-Galvanik wird dieser Masterstempel vervielfältigt und mit einer Anti-Haft-Beschichtung versehen (siehe Abbildung 4.1). Diese Replikationen können so als Grundlage für den Strukturübertrag verwendet werden, während der Masterstempel unbeschädigt bleibt. Für den eigentlichen Imprintprozess wird nun diese Replikation wiederum mit einem im UV-Spektrum transparenten Polymerstempel (IPS^{®1}) abgeformt, welcher dann in Kontakt mit dem zu strukturierenden Template kommt.

Der IPS[®] wird unter Druck auf das mit einem Imprint-Resist (STU[®]-Polymer²) versehene Template gepresst. Die Menge des Imprint-Resistes wird so gewählt, dass die Erhebungen des Stempels den Resist weitgehend verdrängen und die Kavitäten möglichst vollständig gefüllt werden können. Dabei verbleibt auch unter den Erhebungen des Stempels eine gewisse Restschichtdicke, auch Residual Layer genannt, die möglichst gering sein sollte. Das STU[®]-Polymer wird dann bei erhöhter Temperatur und unter UV-Exposition ausgehärtet.

¹IPS[®] ist die Abkürzung für Intermediate Polymer Stamp

²STU[®] ist die Abkürzung für Simultaneous Thermal and UV

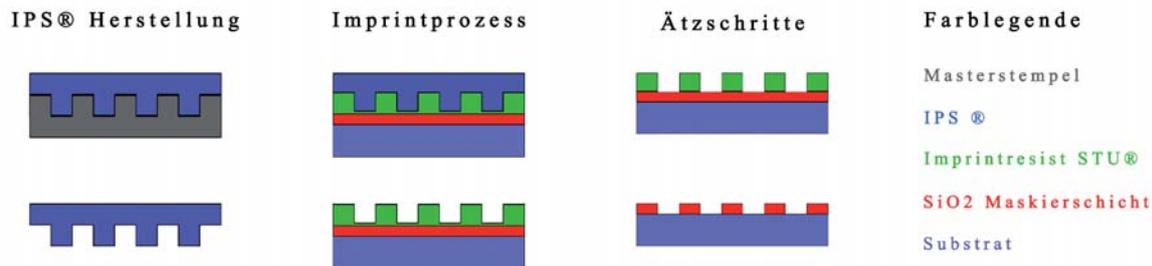


Abbildung 4.1.: Die schematische Darstellung der einzelnen Imprint- und Ätzschritte bis zum finalen Template des NIL Verfahrens der Firma Obducat.

Nach dem Aushärten folgt ein Ätzschritt, der die Restschichtdicke des Imprintresistes entfernt und das Maskenmaterial an den gewünschten Stellen freilegt. Nach einem RIE-Ätzschritt für die Öffnung der SiO₂ Maske kann der restliche Imprintresist entfernt werden und nach einer Grundreinigung ist das Template für den Epitaxieprozess geeignet.

Durch die Verwendung eines flexiblen Polymerstempels unter hohem Druck können morphologische Unebenheiten auf dem Substrat im Vergleich zu einem harten Stempel besser ausgeglichen werden. Dies ist insbesondere bei der Strukturierung von gewachsenen GaN-Oberflächen von Vorteil. Abbildung 4.2 zeigt eine REM-Aufnahme eines typischen Imprintfehlers, verursacht durch die Verwendung eines harten Stempels. Bei Verwendung leicht fehlorientierter Saphirsubstrate entstehen die für das GaN-Wachstum charakteristischen Stufen in Form von Terrassen. Diese verhindern aufgrund der fehlenden Flexibilität eines harten Stempels den Strukturübertrag in den Vertiefungen, wodurch hier größere passivierte Be-

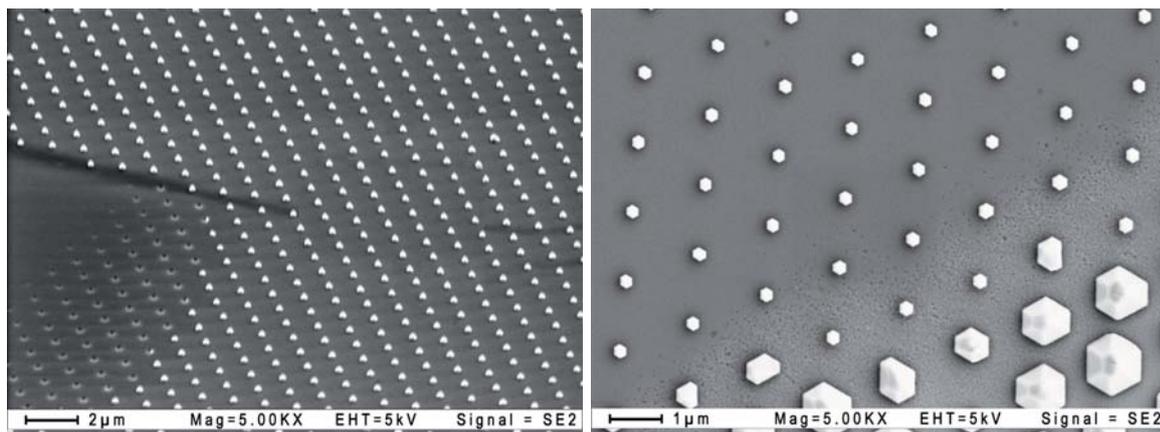


Abbildung 4.2.: REM-Aufnahmen von Imprintfehlern, verursacht durch die typische GaN-Morphologie resultierend aus dem Wachstum auf leicht fehlorientierten Saphirsubstraten. Durch die Morphologie des Stufenwachstums reicht der harte Stempel nicht bis in die Vertiefungen und es fehlen Maskenöffnungen (links). An Erhöhungen wird zuviel Imprintresist verdrängt, wodurch die Maske angegriffen und aufgrund dessen das GaN-Wachstum durch die damit entstandene Rauigkeit beeinträchtigt wird.

reiche entstehen. Ist hingegen der Imprintresist zu dünn, oft verursacht durch Erhöhungen in der Morphologie, wird das Maskenmaterial durch den zur Maskenöffnung verwendeten Ätzschritt angegriffen und aufgeraut. Die erzeugte Rauigkeit führt zu einer Akkumulation von Wachstumsmaterialien und einer erhöhten Wachstumsrate in diesem Bereich (siehe Abbildung 4.2 rechts). Neben der besseren Überformung von morphologischen Besonderheiten bietet die einmalige Verwendung eines Stempels einen weiteren wichtigen Vorteil. Potentiell auf dem Template vorhandene Partikel schädigen ausschließlich den IPS[®], während der in der Anfertigung aufwändige Masterstempel in seiner Qualität nicht beeinträchtigt wird.

4.1.2. Masken- und Stempeldesign

Um den Einfluss der Anordnung der Nanostrukturen auf deren Geometrie exakt untersuchen zu können, benötigt man zu Beginn möglichst breitbandige Designs, mit denen ein großer Bereich von Abständen und Strukturdurchmessern abgedeckt werden kann. Für die Experimente in Abschnitt 4.2 wurden zwei verschiedene Imprintstempel verwendet.

Für die Untersuchung des Einflusses der Abstände zwischen den Nanostrukturen stand der im Folgenden als MII bezeichnete Imprintstempel zur Verfügung. Der Durchmesser der runden Maskenöffnungen wurde über dem gesamten 2“ Wafer konstant bei ca. 210 nm belassen. Die Abstände des hexagonal angeordneten Musters erhöhten sich radialsymmetrisch von 380 nm nahe der Wafermitte auf 1,8 μm im Randgebiet (siehe Abbildung 4.3).

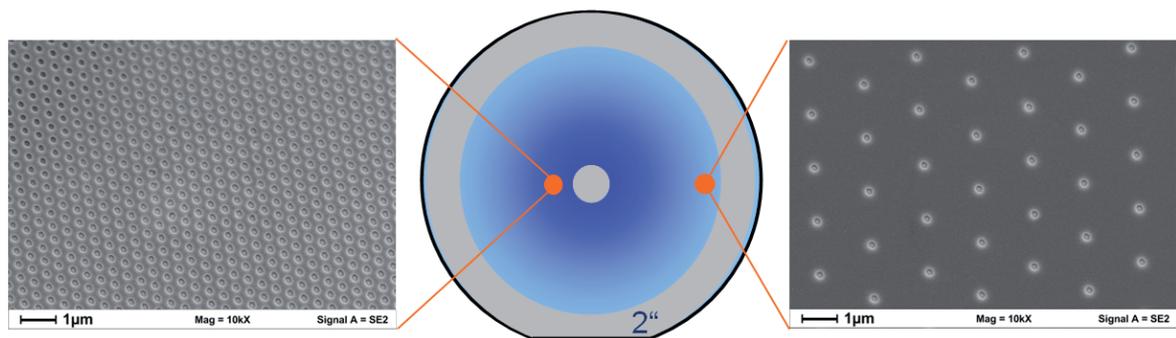


Abbildung 4.3.: Schematische Darstellung des Imprintlayouts MII. Blaue Bereiche markieren den strukturierten Bereich, hellgraue maskierte Oberfläche ohne Maskenöffnungen. Die REM-Aufnahmen zeigen das Muster mit dichter und spärlicher Löcherstruktur nahe der Wafermitte, respektive dem Waferrand.

Neben dem Abstand zwischen den geordneten Nanosäulen ist auch der Durchmesser der Maskenöffnungen ein zu berücksichtigender Parameter. Der Stempel OBDU stellt hier Quadrate mit vier verschiedenen Kantenlängen und jeweils drei Abstandsvarianten zur Verfügung

(siehe Tabelle 4.1). Die Größe der quadratisch strukturierten Felder für die Varianten von 50 nm und 100 nm beträgt $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$. Für die Felder mit Strukturgrößen von 200 nm und 400 nm erhöht sich diese auf $1 \text{mm} \times 1 \text{mm}$. Insgesamt verteilen sich 16 Blöcke mit den in Tabelle 4.1 dargestellten Varianten auf dem 2“ Wafer.

Tabelle 4.1.: Verteilung der Durchmesser- und Abstandsvarianten beim Stempeldesign OBDU.

D in nm	A1 = 1,5 x D in nm	A2 = 2 x D in nm	A3 = 3 x D in nm
50	–	100	150
100	150	200	300
200	300	400	600
400	600	800	1200

Das Design der in Braunschweig verwendeten Photomaske BS1 schließt nahtlos an die Strukturgrößen der Imprintmaske OBDU an (siehe Tabelle 4.2). Die für 2“ Wafer konzipierte Photomaske ist in vier Quadranten aufgeteilt, in welchen jeweils alle Varianten abgebildet sind. Die Kantengröße der strukturierten Felder beträgt $3\text{mm} \times 3\text{mm}$.

Tabelle 4.2.: Verteilung der Durchmesser- und Abstandsvarianten der Photomaske BS1.

D in nm	A1 in nm	A2 in nm	A3 in nm	A4 in nm	A5 in nm	A6 in nm
400	400	500	700	1000	2000	5000
500	400	500	700	1000	2000	5000
700	400	500	700	1000	2000	5000
1000	400	500	700	1000	2000	5000
2000	400	500	700	1000	2000	5000
5000	400	500	700	1000	2000	5000

Beim Übertragen der Strukturvarianten und bei der Planung neuer Maskendesigns muss neben den gewünschten Durchmesser- und Abstandsvarianten unbedingt die Substratorientierung beachtet werden. Abbildung 4.4 zeigt deutlich den Einfluss des Winkels des hexagonalen Gitters gegenüber der Substratorientierung bei dem radialsymmetrischen Maskendesign MII. Ist das hexagonale Grundgitter der Maske gegenüber der hexagonalen Orientierung der gewachsenen GaN-Strukturen verkippt, verringert sich der theoretisch maximale Füllfaktor deutlich. Reproduzierbare Versuche verlangen somit eine gleichbleibende Orientierung der Maske zum Flat des Substrates.

Neben der Anordnung der Säulen auf dem Substrat ist die Größe des strukturierten Bereiches ein weiterer wichtiger Parameter für die Reproduzierbarkeit und Aussagekraft der Experimente. Aufgrund der großen Diffusionslängen der Wachstumsmaterialien auf der Ober-

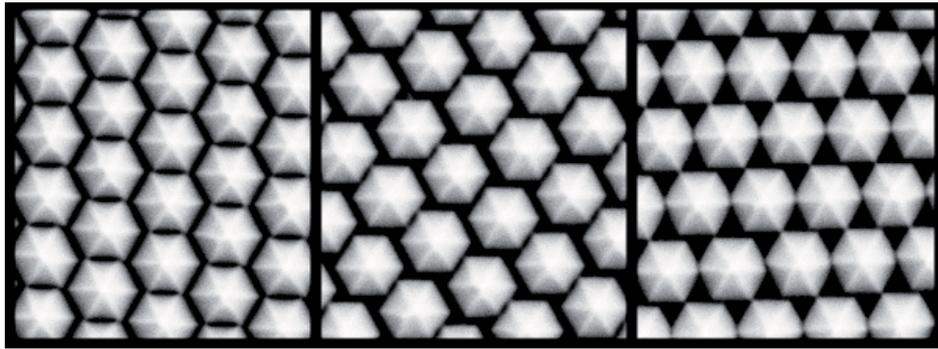


Abbildung 4.4.: GaN-Nanostrukturen gewachsen auf einem mit dem Imprintdesign MII vorstrukturierten Substrat. Durch das radialsymmetrische Maskendesign ergibt sich in Abhängigkeit des Winkels zur Saphirorientierung ein unterschiedliches Füllverhalten. Die Bilder zeigen das Wachstum bei einem hexagonalen Gitter senkrecht (links), 45° (mitte) und parallel zum Flat (rechts).

fläche (vergleiche Abschnitt 4.2.3), beeinflusst der großflächig maskierte Bereich außerhalb der Strukturierung das Wachstum innerhalb des Feldes und verändert die lokalen Wachstumsparameter. Für die Bestimmung der Reichweite der gestörten Wachstumsbedingungen wurden REM-Aufnahmen mit linear steigendem Abstand von der Feldgrenze evaluiert (Abbildung 4.5 links). Die Messpunkte wurden entlang einer Spur in der Mitte des Imprintfeldes D400 P1200 des Imprintdesigns OBDU aufgenommen. Die drei Vergrößerungen in Abbildung 4.5 verdeutlichen den Unterschied der Durchmesser. Die Auftragung des Füllfaktors über dem örtlichen Abstand zur Grenze des strukturierten Feldes im rechten Teil der Abbildung 4.5

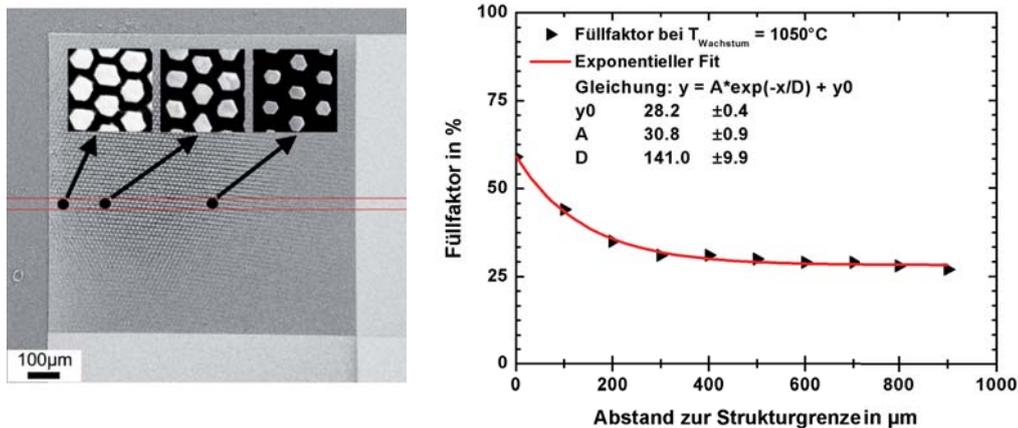


Abbildung 4.5.: REM-Aufnahme des Imprintfeldes D400 P1200 des Imprintdesigns OBDU nach dem Wachstum von GaN-Nanostrukturen (links). Die roten Linien markieren die Spur der 10 äquidistanten Messpunkte zur Bestimmung des Füllfaktors. Die drei kleinen Bilder unterstreichen exemplarisch den Unterschied im Füllfaktor. Die Werte des Füllfaktors fallen exponentiell mit dem Abstand zur Feldgrenze ab (rechts). Dabei ergibt der exponentielle Fit eine Abklingkonstante von etwa 140 µm.

zeigt, dass dieser Einfluss bei Standardwachstumsbedingungen (siehe Abschnitt 4.2) mehrere 100 μm beträgt. Ein exponentieller Fit des Füllfaktors ergibt eine örtliche Abklingkonstante von etwa 140 μm , bei dem der Einfluss auf den Wert $1/e$ abgefallen ist.

Um den realen Einfluss des Musters des Imprintstempels auf die Eigenschaften der Nanostrukturen untersuchen zu können, sind für Experimente in der MOVPE Bereiche größer als $2\text{mm} \times 2\text{mm}$ zwingend notwendig. Im idealen Fall verwendet man ein groß- oder vollflächiges Maskendesign (siehe Maskendesign MII).

4.2. Prozesssteuerung: MOVPE-Wachstum

Die industrielle Fertigung von epitaktisch gewachsenen GaN-Nanostrukturen setzt die Übertragbarkeit der Prozesssteuerung auf Produktionsanlagen voraus. Aus diesem Grund wurden sämtliche in den folgenden Kapiteln dargestellten Experimente zum Wachstum von GaN-Nanosäulen auf einem Großvolumenreaktor für die Produktion von LEDs durchgeführt. Im Vorfeld dieser Arbeit wurden alle veröffentlichten Ergebnisse über das positionskontrollierte Wachstum von GaN-Nanosäulen in MOVPE Anlagen ausschließlich mit Hilfe der abwechselnd gepulsten Zugabe von NH_3 und TMGa realisiert. Aufgrund des im Vergleich zu universitären Versuchsanlagen größeren Reaktorvolumens gilt es allerdings, gepulste Prozessschritte zu vermeiden. Für die Bestimmung der exakten Oberflächentemperatur sowie zum Vergleich der Wachstumsrate auf konventionellen, zweidimensionalen Schichten wurde bei jeder Epitaxiefahrt zusätzlich ein unstrukturierter Wafer (Saphirsubstrat mit ca. 3 μm dickem GaN) beigelegt.

In den nächsten Abschnitten werden Möglichkeiten aufgezeigt, die Form, die Höhe und den Durchmesser von GaN-Nanosäulen durch die Änderung konventioneller Prozesssteuerungsparameter zu beeinflussen.

Falls nicht explizit erwähnt, gelten für sämtliche Experimente in den folgenden Abschnitten die in Tabelle 4.3 aufgeführten Wachstumsparameter. Als Substrat diente im Regelfall ein mit SiO_2 vorstrukturierter Saphir-Wafer. Die Vorbehandlung der Templates in der MOVPE Anlage bis zum Beginn des GaN-Wachstums war für sämtliche Versuche identisch. Um die Wachstumsrichtung der direkt auf Saphir abgeschiedenen Strukturen in $[000\bar{1}]$ -Orientierung zu ermöglichen, wurde nach dem Aufheizen ein 600 s langer Nitridierungsschritt durchgeführt. In Abschnitt 4.2.4 wird die Orientierung und der Einfluss der Wachstumsrichtung

Tabelle 4.3.: MOVPE Grundparameter für das Wachstum von GaN-Nanosäulen.

Parameter	Standardwert
Temperatur	1080 °C
Trägergasmischung	$H_2/N_2 = 2$
Ga-Quelle	TMGa
Stickstoffquelle	NH_3
V/III-Verhältnis	100
Reaktordruck	70 mbar
Wachstumszeit	300 s
Dotierung	undotiert

detailliert beschrieben. Dabei wird in etwa ein Viertel des Trägergasgemisches durch NH_3 ersetzt, wodurch die Al_2O_3 Oberfläche zu AlN transformiert wird. Im Anschluss daran beginnt unmittelbar das selektive Wachstum der GaN-Nanostrukturen innerhalb der Maskenöffnungen durch das Umschalten der TMGa-Quelle.

4.2.1. Trägergaskomposition

Die Zugabe von H_2 zum Trägergas zeigt einen deutlichen Einfluss auf die Morphologie von gewachsenen GaN-Kristallen [Venegues1997, Bergbauer2010, Bergbauer2010b]. Um den Einfluss des Verhältnisses von Wasserstoff zu Stickstoff im Trägergasgemisch auf die Form von GaN-Nanostrukturen zu untersuchen, wurde in einer Probenserie das Verhältnis von H_2/N_2 schrittweise von 0 auf 5 erhöht. Abbildung 4.6 zeigt exemplarische REM-Aufnahmen für H_2/N_2 von 0, 0,5 und 2.

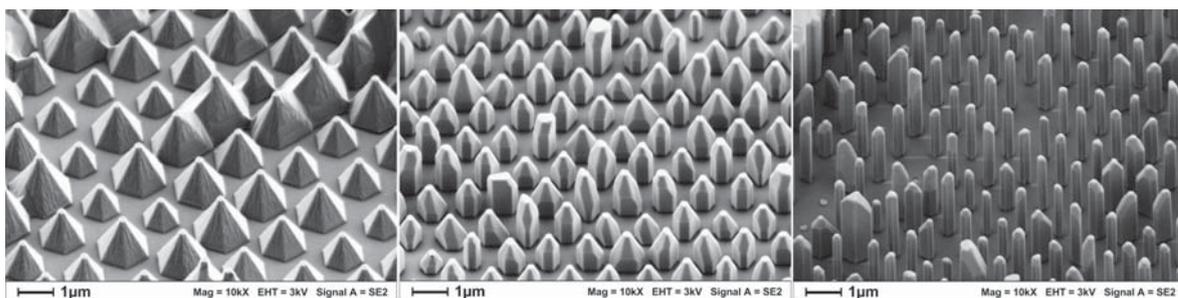


Abbildung 4.6.: REM-Aufnahmen von GaN-Nanostrukturen bei einem H_2/N_2 Trägergasgemisch von 0, 0,5 und 2. Mit zunehmendem H_2 -Gehalt im Trägergas ändert sich die pyramidale Form der Nanostrukturen hin zu Nanosäulen. Die Verkipfung der Proben im REM beträgt 45° .

Die Morphologie der Nanostrukturen wird durch die Zugabe von H_2 signifikant verändert. Während bei reinem N_2 als Trägergas ausschließlich die semipolaren Facetten $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ und die polare $(000\bar{1})$ auftreten, beginnen sich mit zunehmendem H_2 -Gehalt senkrecht zur Substrat-

oberfläche glatte, unpolare Seitenfacetten $\{10\bar{1}0\}$ auszubilden. Bei H_2/N_2 -Quotienten über 1 ergibt sich eine klare Säulenform und es dominieren die unpolaren Seitenfacetten.

Die Selektivität zwischen der Wachstumsmaske und der nitridierten Saphiroberfläche ist auch bei der Zugabe von Wasserstoff gewährleistet und die Nukleation im vorstrukturierten Bereich findet ausschließlich in den Maskenöffnungen statt. Die Draufsicht der GaN-Säulen im REM zeigt deutlich die hexagonale Grundform, ungeachtet der runden Form der Maskenöffnung (siehe Abbildung 4.7 links). Bei geeigneter Wahl des Kontrastes eignen sich diese Aufnahmen für eine digitale Bildanalyse, bei welcher die Durchmesser der Säulen statistisch bestimmt werden können (siehe Abbildung 4.7 rechts). Die in Matlab 7.8.0 erstellte Aus-

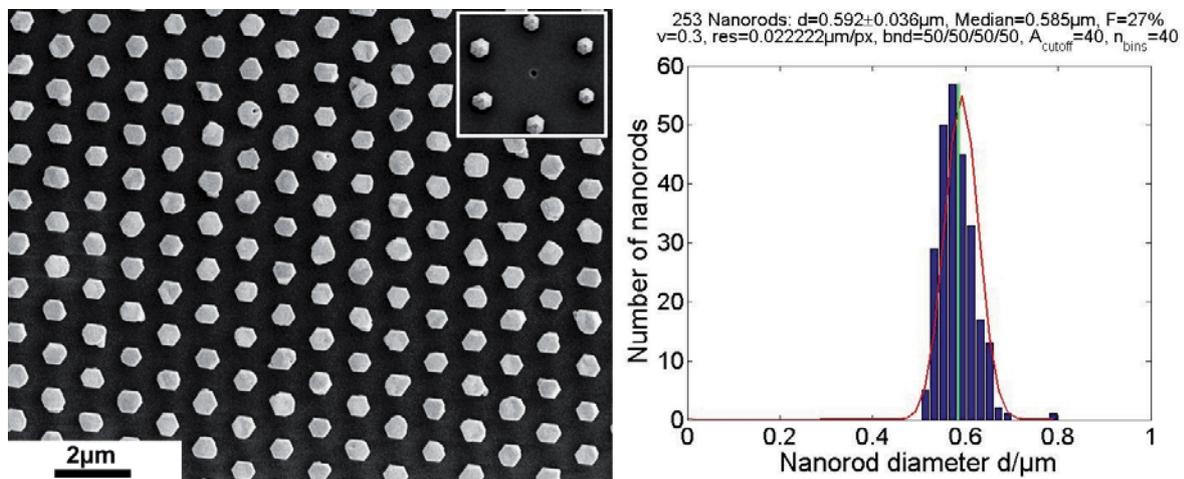


Abbildung 4.7.: REM-Draufsicht von GaN-Nanostrukturen (links). Ungeachtet der Form der Maskenöffnung bildet sich stets eine hexagonale Grundform aus. Der Inset zeigt die runde Form der Maskenöffnung und die hexagonale der Nanostruktur. Bei geeignetem Kontrast des Bildes kann mit Hilfe digitaler Bildbearbeitung eine statistische Aussage über den Durchmesser der Nanostrukturen getroffen werden (rechts).

wertung liefert den Mittelwert und die Standardabweichung der Durchmesser, die in erster Näherung durch eine Gaußverteilung beschrieben werden können. Des Weiteren wird der Median der Verteilung und der Füllfaktor der Nanosäulen eines Bildes bestimmt. Bei allen folgenden Auswertungen wird für den charakteristischen Durchmesser stets der Median verwendet, da dieser wesentlich robuster gegenüber Ausreißern ist. So wird ein zu großer Einfluss von parasitären Nukleationen oder Maskenfehlern, die GaN-Kristalle mit wesentlich größeren Abmessungen erzeugen können, verhindert.

Die Abhängigkeit des Durchmessers von der Trägergaskomposition ist in Abbildung 4.8 links dargestellt. Dieser nimmt mit steigendem Wasserstoffgehalt bis zu einem Verhältnis von $H_2/N_2 \approx 1$ deutlich ab. Die Abnahme ist über dem kompletten Bereich der Abstände

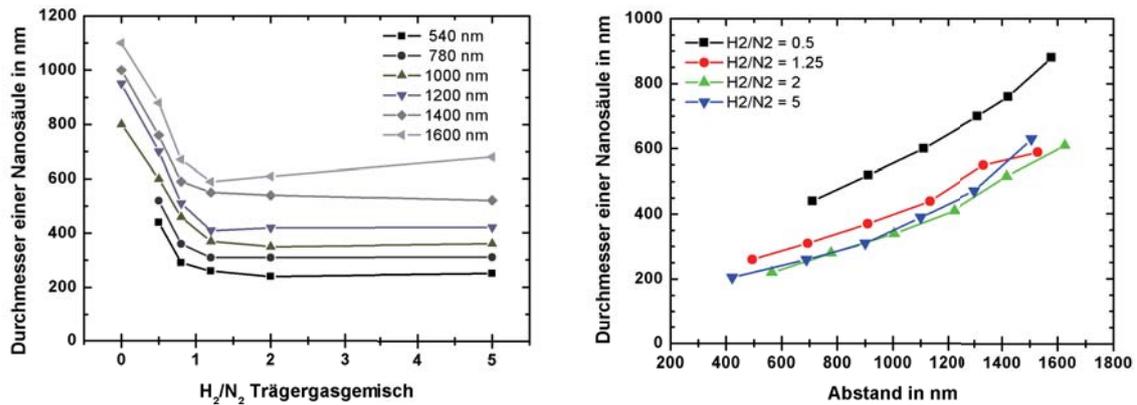


Abbildung 4.8.: Auftragung des durchschnittlichen Durchmessers der Nanosäulen über dem H_2/N_2 -Quotienten des Trägergasgemisches für verschiedene Abstände (links) und Auftragung des durchschnittlichen Durchmessers über dem Abstand für unterschiedliche H_2/N_2 -Trägergasgemische (rechts).

von 540 nm bis 1800 nm zwischen den Nanosäulen monoton. Bei einer weiteren Erhöhung des Wasserstoffgehaltes $H_2/N_2 > 1$ bleibt der Durchmesser konstant. Betrachtet man die Daten in Abhängigkeit vom Abstand der Nanosäulen ergibt sich ein deutlicher Einfluss (siehe Abbildung 4.8 rechts): Mit zunehmendem Abstand zeigt sich unabhängig vom Wasserstoffgehalt eine monotone Steigerung der Durchmesser um mehr als den Faktor 2. Der identische Verlauf der Veränderung des Durchmessers bei $H_2/N_2 = 2$ und $H_2/N_2 = 5$ verdeutlicht nochmals die Sättigung des Einflusses des Wasserstoffes. Somit bildet sich für $H_2/N_2 > 2$ ein sehr stabiles Wachstumsregime aus, in dem der Durchmesser mit Hilfe des Abstandes der Maskenöffnungen sehr genau eingestellt werden kann.

Unter der Annahme, dass die Diffusionslängen der Wachstumsmaterialien auf der Maskenoberfläche den Abstand zwischen den Säulen übersteigen (siehe Abschnitt 4.2.3), bestimmt der Abstand zwischen den Nanostrukturen die Menge des zur Verfügung stehenden Materials. Bei einem hexagonalen Grundgitter kann die Maskenfläche pro Nanostruktur MpN geometrisch berechnet werden zu

$$MpN = \frac{1}{2}A^2\sqrt{3} - \left(\frac{D}{2}\right)^2\pi. \quad (4.1)$$

Hierbei entspricht A dem Abstand zwischen zwei Mittelpunkten der Maskenöffnungen im hexagonalen Grundgitter und D dem Durchmesser einer Maskenöffnung. Trägt man den durchschnittlichen Durchmesser der Nanosäulen über der MpN auf, zeigt sich ein lineares Verhalten (siehe Abbildung 4.9). Die Steigung der linearen Fits ist ein Maß für das laterale

Wachstum der Nanosäulen in Abhängigkeit von deren Dichte. Diese ist für die Trägergasgemische relativ konstant, wodurch sich der Abstand der Maskenöffnungen als gute Steuerungsmöglichkeit für den Durchmesser auszeichnet. Auch bei den auf der Maske vorhandenen größeren Distanzen zwischen den Nanosäulen zeichnet sich keine Sättigung ab und die Steigung verbleibt konstant. Dies ist wiederum eine Bestätigung der Annahme ausreichend großer Diffusionslängen der Wachstumsmaterialien. Die lineare Extrapolation des Durchmessers für eine verfügbare Maskenfläche von $0 \mu\text{m}^2$ ist ein Hinweis auf das laterale Wachstum ohne Einfluss des Abstandes. Der Achsenabschnitt der linearen Näherungen zeigt somit das laterale Wachstum in Abhängigkeit von der Trägergaskomposition während des 300 s langen Prozesses. Für Trägergasgemische $H_2/N_2 \geq 1,25$ ist der Achsenabschnitt im Bereich des Durchmessers der Maskenöffnung. Da die Differenz zwischen dem Achsenabschnitt und der Größe der Maskenöffnung ein Maß für das laterale Wachstum ohne Einfluss des Abstandes zwischen den Maskenöffnungen ist, kann hier die Beeinflussung der lateralen Wachstumsrate in Abhängigkeit des Trägergasgemisches vernachlässigt werden.

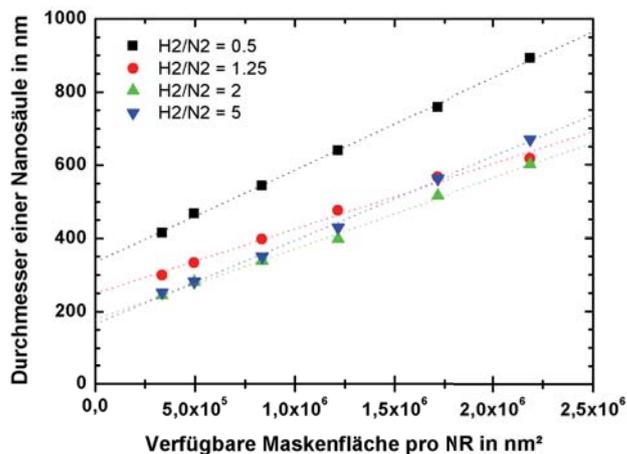


Abbildung 4.9.: Auftragung des durchschnittlichen Durchmessers einer Nanosäule über der pro Nanosäule verfügbaren Maskenoberfläche MpN , welche direkt proportional zu A^2 ist. Es zeigt sich deutlich ein linearer Verlauf für verschiedene Trägergaskompositionen.

Neben dem Durchmesser stellt die Höhe der Nanostrukturen einen sehr wichtigen Parameter dar, insbesondere bei dem Ziel einer vergrößerten Oberfläche (siehe Gleichung 1.1 Seite 8). Eine Möglichkeit, die Höhe der gewachsenen Nanosäulen in Abhängigkeit des Abstandes zu bestimmen, ist die Analyse eines 90° Querschnittes der Proben im REM. Um den Verlauf für alle auf der Probe vorhandenen Abstände evaluieren zu können, werden die Proben senkrecht zum Flat gebrochen.

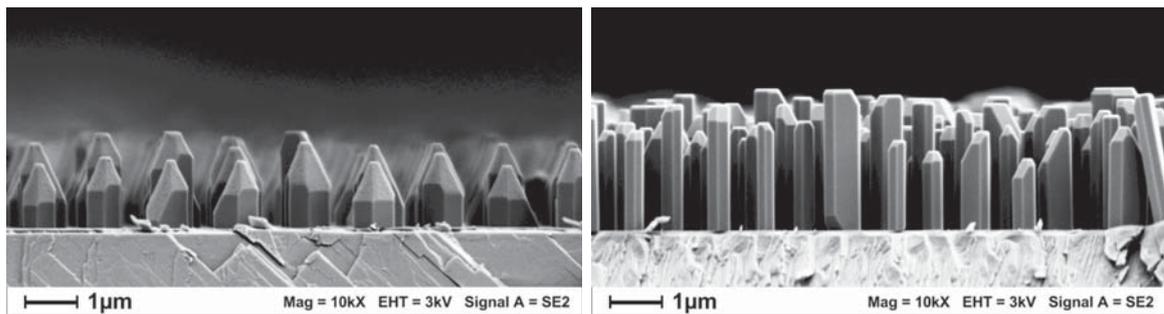


Abbildung 4.10.: REM-Aufnahme eines Querschnittes der Proben mit einem H_2/N_2 -Quotienten von 0,5 (links) und 2 (rechts). Die Zunahme der Höhe mit steigendem Wasserstoffgehalt ist deutlich zu sehen.

Abbildung 4.10 zeigt die REM-Aufnahme eines Querschnittes für die H_2/N_2 -Quotienten von 0,5 und 2 im Vergleich. Bei geringerem Wasserstoffgehalt $H_2/N_2 = 0,5$ dominieren die semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ Ebenen, die in etwa bei der Hälfte der Säulenhöhe beginnen. Die Form dieser Nanosäulen wird in der Literatur auch als „pencil-shaped“, also der Form eines Bleistiftes ähnelnd, beschrieben. Bei erhöhtem Wasserstoffgehalt $H_2/N_2 = 2$ hingegen treten diese nur sehr selten und mit wesentlich geringerer Prägnanz auf. Hier dominieren die unpolaren Ebenen $\{10\bar{1}0\}$ den Großteil der Oberfläche.

Neben der in Abbildung 4.8 dargestellten Verringerung des Durchmessers mit steigendem Wasserstoffgehalt zeigt sich bei der Seitenansicht der Nanosäulen zudem eine deutliche Zunahme in der Höhe. Die Darstellung der Höhen für verschiedene Abstände und Wasserstoffgehalte findet sich in Abbildung 4.11 links. Für sämtliche analysierte Abstände zeigt sich ein signifikant gesteigertes vertikales Wachstum mit zunehmendem Wasserstoffanteil im Trägergas. So ändert sich die Höhe von etwa $1,4 \mu\text{m}$ auf $2,3 \mu\text{m}$ bei einer Erhöhung des Wasserstoffanteiles von 0,5 auf 2. Wie schon bei der Charakterisierung der Durchmesser festgestellt, kann auch hier eine Sättigung für $H_2/N_2 > 2$ beobachtet werden. Die Höhe nimmt nicht weiter zu und bleibt in etwa konstant. Bei der Variation des Abstandes zeigt sich allerdings verglichen zum Durchmesser ein deutlich anderes Verhalten. Die durchschnittliche Höhe steigt hier zwischen 400 nm und etwa 900 nm Abstand um mehr als 40% an. Für Abstände über 900 nm sättigt die Zunahme und die Höhe bleibt konstant.

Aus den ermittelten Werten für Durchmesser und Höhe kann nun das Aspektverhältnis der Nanosäulen für die verwendeten Trägergaskompositionen und Säulenabstände bestimmt werden (siehe Abbildung 4.11 rechts). Hieraus ergibt sich ein Bereich maximaler Aspektverhältnisse von ca. 8 für Abstände von 500 nm bis 800 nm . Bei größerer Distanz zwischen

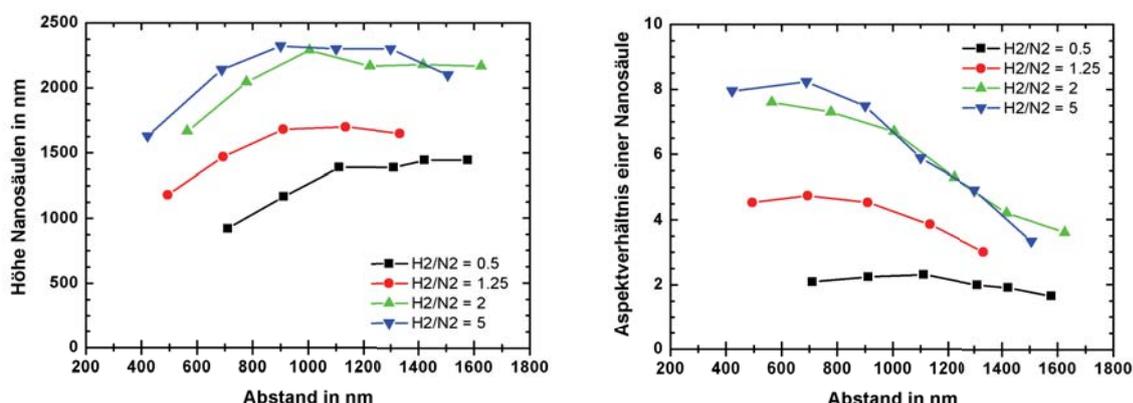


Abbildung 4.11.: Auftragung der Höhe über dem Abstand der Nanosäulen für H_2/N_2 von 0,5, 1,25, 2 und 5 (links) und die entsprechenden aus Durchmesser und Höhe errechneten Aspektverhältnisse (rechts).

den Säulen nimmt das Aspektverhältnis wieder ab, da das vertikale Wachstum sättigt, der Durchmesser jedoch aufgrund der größeren Maskenfläche pro Nanorod zunimmt. Zu beachten ist, dass dieser Effekt bei hohen Wasserstoffanteilen deutlich ausgeprägter ist. Für kleinere Abstände ist die Abnahme des Aspektverhältnisses durch den starken Abfall des vertikalen Wachstums begründet.

Das durchschnittliche Volumen einer Nanosäule kann aus den gewonnenen Daten ebenfalls bestimmt werden. Da die Säulen in erster Näherung hexagonal geformten Prismen entsprechen, errechnet sich das Volumen V_{NS}

$$V_{NS} = \frac{1}{2}d^2\sqrt{3}h, \quad (4.2)$$

wobei der Durchmesser d dem Abstand zweier paralleler Seitenebenen entspricht und h der Höhe. Um die pyramidale Form der oberen Hälfte der Nanostrukturen bei einem Trägergasquotienten von 0,5 zu berücksichtigen, wird hier die Volumenberechnung in zwei Schritten durchgeführt: Der erste Teil des Volumens ergibt sich aus $\frac{1}{2}V_{NS}$ und beschreibt die substratnahe Hälfte. Die Geometrie der oberen Hälfte wird als Pyramide genähert und beinhaltet somit ein Volumen von $\frac{1}{3} \cdot \frac{1}{2}V_{NS}$. Somit beträgt hier der Korrekturvorfaktor für das Volumen der Nanosäulen $\frac{2}{3}$.

Die Auftragung des Volumens über dem Abstand zeigt für die verwendeten Trägergasgemische einen identischen Anstieg (siehe Abbildung 4.12 links). Das Volumen scheint sich, trotz drastischer Veränderung der Geometrie der Nanosäulen, durch die Zugabe von Wasserstoff nicht zu verändern. Die zur Verfügung stehenden Wachstumsspezies werden demnach auf

der Oberfläche der GaN-Nanostruktur umgeordnet und nicht durch den Wasserstoff entfernt (siehe auch Diskussion zum Wachstumsprozess in Abschnitt 4.2.5). Der quadratische Verlauf des Volumens über dem Abstand ähnelt der nach Formel 4.1 auf Seite 55 berechneten verfügbaren Maskenfläche M_{pN} . Trägt man nun das Volumen in Abhängigkeit der M_{pN} auf, ergibt sich das in Abbildung 4.12 rechts dargestellte Verhalten. In der doppelt logarithmischen Auftragung wird der lineare Zusammenhang zwischen verfügbarer Maskenoberfläche und dem Volumen der Nanosäulen deutlich. Nur bei sehr kleinen Abständen wird diese lineare Abhängigkeit durch den zunehmenden Beitrag der Fläche der Maskenöffnung gestört. Dies bedeutet, dass bei größeren Abständen der dominierende Anteil des zum Wachstum beitragenden Materials über die Maske zur Nanosäule diffundiert. Der Anteil der Reaktionspartner, welcher direkt von der Oberfläche der Nanostruktur eingefangen wird, spielt in diesem Bereich also zunächst nur noch eine untergeordnete Rolle. Zusätzlich wird die Annahme bestätigt, dass das auf der Maskenoberfläche diffundierende Material die Nanosäule erreicht und nicht vorher desorbiert.

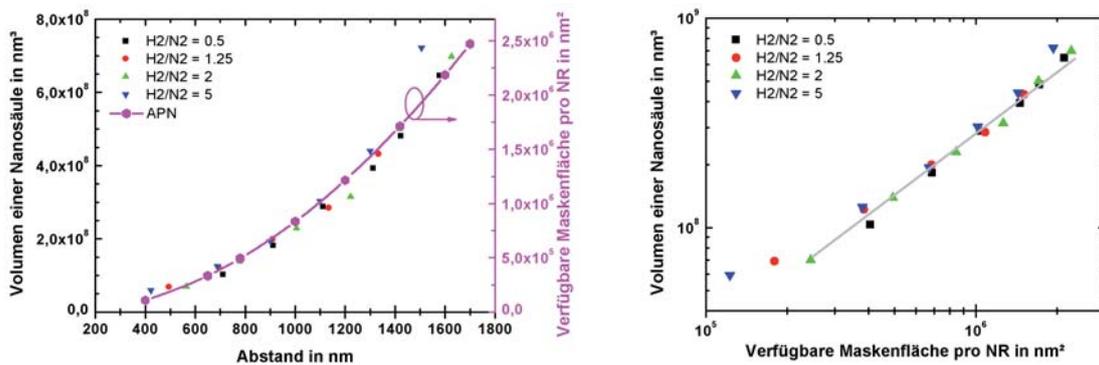


Abbildung 4.12.: Die Auftragung des Volumens einer durchschnittlichen Nanosäule über dem Abstand für H_2/N_2 von $0,5$, $1,25$, 2 und 5 und der verfügbaren Maskenfläche pro Nanorod über dem Abstand (links). Die doppelt logarithmische Auftragung des Volumens über der verfügbaren Maskenfläche zeigt für größere Abstände ein lineares Verhalten, das durch die graue Hilfslinie hervorgehoben wird (rechts).

In diesem Abschnitt konnte erstmals gezeigt werden, wie mit Hilfe der Kontrolle des Wasserstoffgehaltes im Trägergas die Morphologie von geordneten Nanosäulen gezielt beeinflusst werden kann [Bergbauer2010, Bergbauer2010b]. Im Gegensatz zu bisherigen Veröffentlichungen wurden kontinuierliche Flusseinstellungen verwendet; ein Pulsen der Gase [Hersee2006] oder die Verwendung eines Katalysators [Qian2004, Kuykendall2003] ist hier für das Wachstum von Nanosäulen nicht mehr notwendig. Dies ermöglicht die Verwendung großvolumiger Produktionsanlagen. Im Vergleich zu den von Koester et al. vorgestellten Prozesseinstellungen

gen [Koester2010] erlauben die hier beschriebenen Parameter eine genaue Positionskontrolle der Nanosäulen.

4.2.2. Wachstumszeit

Neben der Trägergaskomposition bietet auch die Dauer des Wachstumsprozesses eine weitere Möglichkeit, Einfluss auf die Höhe sowie den Durchmesser der Nanostrukturen zu nehmen [Koelper2010]. Die Untersuchungen in diesem Kapitel wurden unter den auf Seite 53 in Tabelle 4.3 angegebenen Standardbedingungen durchgeführt. Wie in Abschnitt 4.2.1 beschrieben, sinkt der Durchmesser mit steigendem Wasserstoffgehalt im Trägergasgemisch. Dieser Effekt sättigt bei einem Verhältnis H_2/N_2 von etwa 2, so dass für die Evaluation des Einflusses der Wachstumszeit H_2/N_2 gleich 5 gewählt wurde, bei dem mögliche Schwankungen im Trägergasgemisch keinen signifikanten Einfluss zeigen sollten. Die Dauer des GaN-Wachstums der

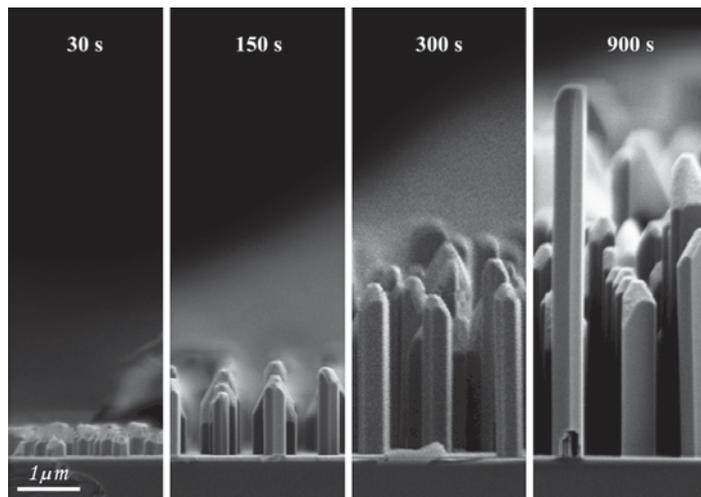


Abbildung 4.13.: REM-Seitenansichten der Nanosäulen nach einer Wachstumszeit von 30 s, 150 s, 300 s und 900 s. Die Höhe nimmt mit dem zeitlichen Verlauf zu. Allerdings steigt auch die Inhomogenität der Verteilung.

durchgeführten Experimente lag bei 30 s, 150 s, 300 s und 900 s. Abbildung 4.13 zeigt die um 90° gekippten Seitenansichten für die genannten Wachstumszeiten. Bereits bei einer Wachstumszeit von 30 s zeigen die Nanostrukturen eine ausgeprägte pyramidale Form des oberen Bereiches. Dieser pyramidale Bereich bleibt während des zeitlichen Verlaufes vergleichsweise konstant, ausschließlich die unpolaren Facetten $\{10\bar{1}0\}$ nehmen zu und dominieren den Anteil der Oberfläche mit zunehmender Wachstumszeit. Die Auswertung der Höhen der Nanosäulen ergibt einen monotonen Anstieg über dem zeitlichen Verlauf (siehe Abbildung 4.14).

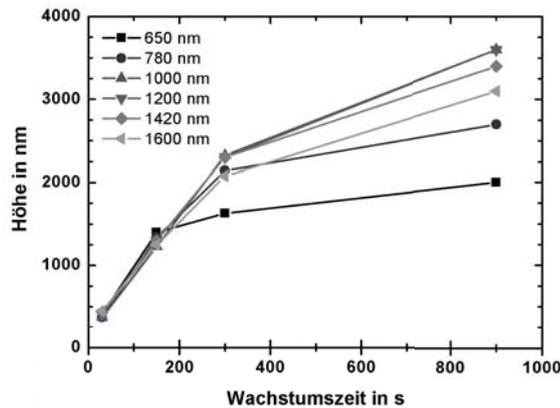


Abbildung 4.14.: Auftragung der Höhe der Nanosäulen für Abstände zwischen 650 nm und 1600 nm. Die Höhe der Nanosäulen steigt für alle Abstände monoton mit der Zeit (links). In der Zeitspanne zwischen 30 s und 300 s nimmt die Höhe näherungsweise linear zu. Die Steigung zwischen den Punkten 300 s und 900 s zeigt eine deutlich flachere Steigung.

Innerhalb des Zeitintervalls von 30 s bis 150 s ist diese Zunahme der Höhe in erster Näherung linear. Die Steigung, berechnet aus der linearen Approximation, ergibt die Wachstumsrate in vertikaler Richtung. Die Werte für verschiedene Abstände zwischen den Nanosäulen in Tabelle 4.4 zeigen Wachstumsraten bis zu 26 $\mu\text{m}/\text{h}$. Zu bemerken gilt, dass für Abstände zwischen 780 nm und 1400 nm ein konstant hohes Niveau zu beobachten ist. Diese enormen Wachstumsgeschwindigkeiten entsprechen einem Vielfachen der normal üblichen Werte im Bereich von 2 $\mu\text{m}/\text{h}$ bis 4 $\mu\text{m}/\text{h}$. Nach dem steilen linearen Anstieg flacht der Verlauf zwischen 300 s

Tabelle 4.4.: Vertikale Wachstumsrate (WR) und die Standardabweichung σ berechnet aus der linearen Approximation der Werte für die Höhe zwischen 30 s und 300 s für verschiedene Abstände zwischen den Nanosäulen.

Abstand	WR in $\mu\text{m}/\text{h}$	σ in $\mu\text{m}/\text{h}$
650	15,8	6,8
780	23,4	2,8
1000	26,0	0,1
1200	25,2	0,8
1400	24,8	0,5
1600	21,6	1,2

und 900 s ab. Dies deutet auf eine Reduktion der vertikalen Wachstumsgeschwindigkeit mit zunehmender Höhe der Nanosäulen hin. Der Transport der Wachstumsspezies über die immer höher werdenden unpolaren Seitenfacetten kann zu einer erhöhten Desorption führen. Die Diffusionslängen auf diesen Facetten sind noch unbekannt und für eine genauere Abschätzung sind somit noch weiterführende Wachstumsexperimente notwendig.

Neben dem Verlauf der Höhe über der Wachstumszeit ist der Durchmesser der zweite wichtige morphologische Parameter. Aufgrund des hohen Wasserstoffanteils im Trägergasgemisch sollten möglichst geringe und konstant verbleibende Durchmesser erreicht werden (siehe Abbildung 4.8 auf Seite 55). Über dem zeitlichen Verlauf zeigt sich zunächst eine leichte Zunahme des Durchmessers, der dann zwischen 300 s und 900 s konstant bleibt (Abbildung 4.15). Das Experiment mit einer Dauer von 150 s zeigt in der REM-Draufsicht ein nicht optimales Füllverhalten der Maskenöffnungen, was in einer unbeabsichtigten virtuellen Erhöhung der Abstände zwischen den Säulen resultiert. Dies spiegelt sich in den bestimmten Durchmessern bei 150 s wider. Betrachtet man den Durchmesser für die Wachstumszeiten über dem Verlauf der Abstände, zeigt sich der bereits in Abschnitt 4.2.1 beschriebene charakteristische Anstieg (siehe Abbildung 4.15 rechts). Auch hier bestätigt sich nach dem Anstieg zwischen

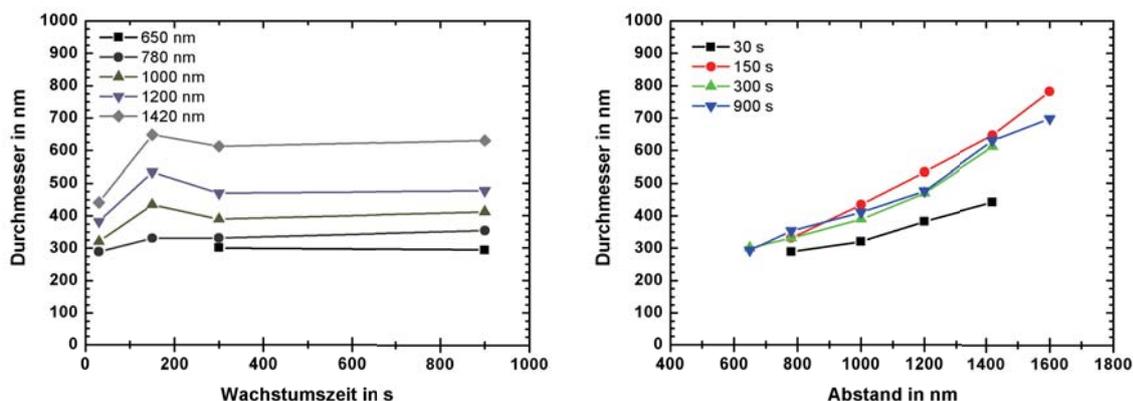


Abbildung 4.15.: Der Durchmesser der Nanosäulen steigt zu Beginn für alle Abstände zwischen den Nanostrukturen an, zeigt dann im weiteren zeitlichen Verlauf keine zusätzliche signifikante Zunahme (links). Bei der Auftragung der Durchmesser über dem Abstand zeigt sich eine vergleichbare monotone Zunahme des Durchmessers für alle zeitlichen Stützpunkte.

30 s und 150 s eine gute Übereinstimmung der Durchmesser für 300 s und 900 s, was in einer vernachlässigbaren lateralen Wachstumsrate resultiert.

Bei einer geeigneten Wahl der Trägergaskomposition kann mit Hilfe der exakten Einstellung der Wachstumszeit die Höhe der Nanosäulen bestimmt werden, ohne den Durchmesser wesentlich zu verändern. Das Aspektverhältnis folgt somit im Wesentlichen der Höhe und steigt mit dem zeitlichen Verlauf im Versuchsintervall monoton an.

4.2.3. Temperatur

Die Morphologie von GaN-Oberflächen wird stark von der Temperatur beeinflusst. Speziell bei selektivem Wachstum von GaN hat die Temperatur einen signifikanten Einfluss auf

die laterale Wachstumsrate sowie auf die Ausbildung verschiedener Facetten [Miller2005, Nam1998]. Die Möglichkeit, mit Hilfe der Wachstumstemperatur gezielt Einfluss auf das laterale Wachstum und die Homogenität der Verteilung der Durchmesser zu nehmen, wird in diesem Abschnitt aufgezeigt. Die Experimente wurden auf vorstrukturierten Saphir-Substraten mit dem OBDU Design (siehe Abschnitt 4.1.2) durchgeführt. Die Wachstumsparameter entsprechen den in Tabelle 4.3 vorgestellten Werten bei einer Wachstumszeit von 90 s, ausschließlich die Temperatur wurde zwischen 940 °C und 1100 °C schrittweise verändert. Abbildung 4.16 zeigt die Morphologie der Nanostrukturen für verschiedene Temperaturen in REM-Draufsichten. Bei den für GaN sehr niedrigen Wachstumstemperaturen von 940 °C und

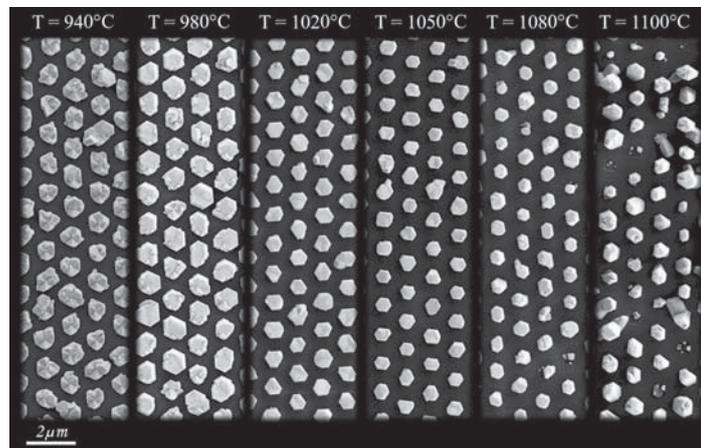


Abbildung 4.16.: REM-Draufsichten auf in der MOVPE gewachsene Nanostrukturen in der Mitte des Imprintfeldes D400 P1200 des Designs OBDU bei 940 °C, 980 °C, 1020 °C, 1050 °C, 1080 °C und 1100 °C.

980 °C zeigt sich kein homogenes, einkristallines Wachstum. Deutlich bilden sich verschiedene Kristallorientierungen aus und die typisch hexagonale Form eines Prismas ist gestört. Durch das Wachstum bei sehr kleinen V/III-Verhältnissen ist die Reduktion der Temperatur ein weiterer Schritt zu metallreichem Wachstum, da das Ammoniak bei niedrigeren Temperaturen schlechter zerlegt wird [Stringfellow1989]. Die Materialqualität sinkt und es tritt polykristallines Wachstum auf. Im Intervall zwischen 1020 °C und 1080 °C ist der optische Eindruck durchaus homogen. Die höchste Wachstumstemperatur von 1100 °C zeigt hingegen deutliche Inhomogenitäten, die Größe der Nanostrukturen variiert und teilweise findet in den Maskenöffnungen kein Wachstum statt. In diesem sehr hohen Temperaturbereich spielt die Desorption der Wachstumsmaterialien bereits eine signifikante Rolle. Teile der abgeschiedenen Kristalle beginnen wieder abzukondensieren und es treten vermehrt parasitäre Vorreaktionen auf.

Im Zusammenspiel mit sehr hohen Diffusionslängen der Wachstumsspezies auf der Oberfläche steigt die Inhomogenität der Verteilung der Nanostrukturen an.

Aufgrund des hier verwendeten Maskendesigns besteht die Möglichkeit, den Verlauf des Durchmessers in Abhängigkeit von der Distanz zum Rand des strukturierten Bereiches zu bestimmen (vergleiche Abbildung 4.5, Seite 51). Für sämtliche Temperaturen wurde in 100 μm -Schritten der Median des Durchmessers bestimmt (siehe Abbildung 4.17 links). Der Durch-

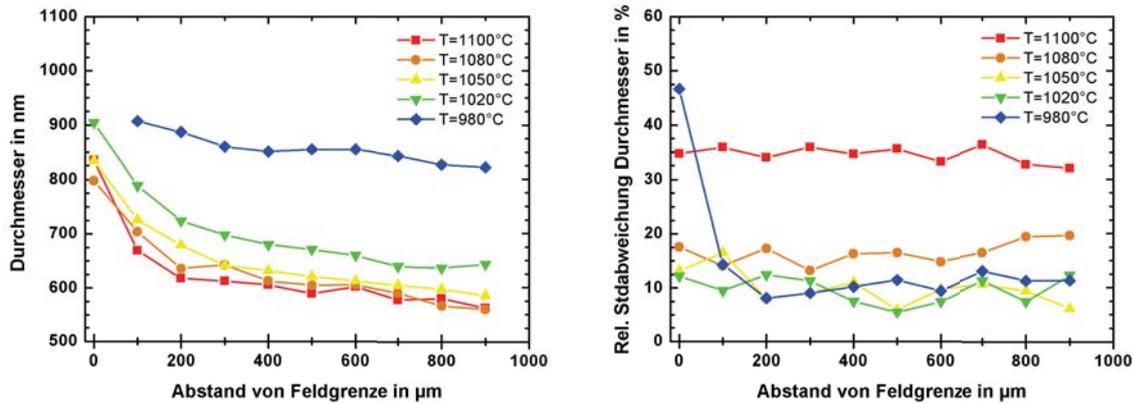


Abbildung 4.17.: Auftragung des Medians der Durchmesser der Nanostrukturen über der räumlichen Distanz zur Grenze des strukturierten Feldes (links). Die Durchmesser sinken für alle Temperaturen in Richtung Feldmitte ab und sättigen in etwa im Zentrum des Feldes. Die Standardabweichung der Durchmesser (rechts) zeigt eine deutliche Temperaturabhängigkeit und steigt bei hohen Temperaturen an.

messer der Nanosäulen sinkt mit zunehmendem Abstand von der Grenze des strukturierten Bereiches. Diese Abnahme sättigt mit zunehmendem Abstand zum Rand und ist in der Mitte des Feldes vernachlässigbar gering; der Durchmesser bleibt also in einiger Entfernung vom Rand konstant. Ein genauerer Blick auf diese Abhängigkeit und die daraus resultierende Abschätzung von Diffusionskonstanten bei verschiedenen Temperaturen wird in Abschnitt 4.2.5 geworfen. Der Durchmesser der Nanostrukturen verkleinert sich mit zunehmender Temperatur. Dies ist im Wesentlichen durch die erhöhte Wachstumsrate der semipolaren Flächen bei für GaN-Verhältnisse niedrigen Wachstumstemperaturen bedingt [Theije1998]. Bei höheren Temperaturen ist das Wachstum auf der polaren Oberfläche gegenüber dem lateralen verstärkt und der Durchmesser sinkt. Während die relative Abnahme bei einer Erhöhung von 980 $^{\circ}\text{C}$ auf 1020 $^{\circ}\text{C}$ in etwa 25% beträgt, verringert sich die Differenz zwischen 1020 $^{\circ}\text{C}$ und 1050 $^{\circ}\text{C}$ auf etwa 10% und bleibt bei weiterer Steigerung unter 5%. Die Auswertung der Standardabweichungen für die Durchmesser spiegelt den optischen Eindruck einer steigenden Inhomogenität mit Erhöhung der Temperatur wider (siehe Abbildung 4.17 rechts). Die relati-

ve Standardabweichung bleibt bei Vernachlässigung der teilweise koaleszierten Randbereiche über den verschiedenen örtlichen Positionen innerhalb des strukturierten Feldes konstant. Sie steigt allerdings von etwa 10% bei moderaten GaN Wachstumstemperaturen auf über 30% bei 1100 °C an.

Liu et al. und Dwikusuma et al. zeigen sowohl beim Wachstum auf vorstrukturierten Substraten als auch beim selbstorganisierten Abscheiden von GaN auf nitridiertem Saphir eine starke Abhängigkeit der Inselgröße und Homogenität von der Temperatur [Liu2004, Dwikusuma2003]. Bei beiden steigt die Inhomogenität bei hohen GaN Wachstumstemperaturen. Durch die vergrößerte Adatom-Diffusionslänge bei hohen Temperaturen ist die Wahrscheinlichkeit bei der Nukleation höher einen bereits mit GaN bedeckten Bereich zu erreichen. Vergrößert sich dieser GaN-Kristall entsteht eine Materialsenke, zu der sich die Diffusion verstärkt. Dieser Prozess nimmt mit steigender Inhomogenität zu. Bei den hohen Wachstumstemperaturen und durch das sehr geringe V/III-Verhältnis (siehe Abschnitt 4.2.4) könnte der Dampfdruck des durch den dissoziierten Ammoniak präsenten Stickstoffs nicht ausreichen, um die Kristalloberfläche zu stabilisieren. Ist dies der Fall, kann wieder Material vom Kristall abdampfen. Dieser statistische Prozess erhöht zusätzlich die Unterschiede in den Dimensionen der einzelnen Nanostrukturen.

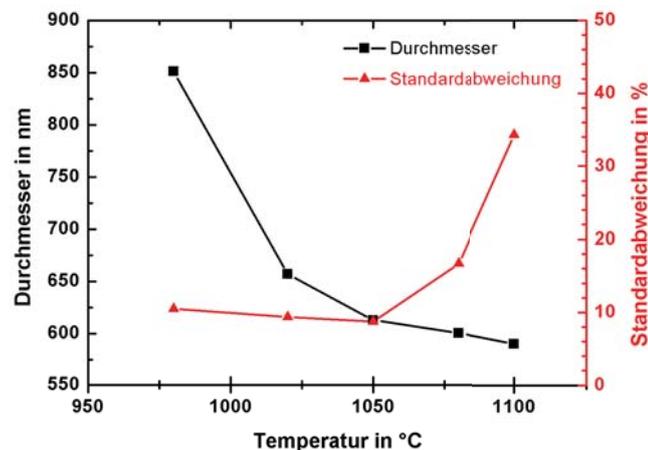


Abbildung 4.18.: Der Median und die Standardabweichung zeigen über der Temperatur ein gegenläufiges Verhalten. Die aufgetragenen Daten zeigen die Mittelwerte zwischen 500 μm und 700 μm Abstand zur Feldgrenze.

Um die Durchmesser der Nanosäulen mit der jeweiligen Standardabweichung besser vergleichen zu können, wurde eine Mittelwertbildung der bestimmten Größen im gesättigten Messbereich zwischen 500 μm und 700 μm durchgeführt (siehe Abbildung 4.18). Die Stan-

Standardabweichung und der Durchmesser zeigen aufgetragen über der Temperatur ein entgegengesetztes Verhalten. Die gewünschte Abnahme des Durchmessers mit steigender Temperatur ist mit einer vergrößerten Standardabweichung verbunden, so dass Temperaturen zwischen 1050 °C und 1080 °C einen optimalen Bereich für das Wachstum auf den OBDU-Templates darstellen.

4.2.4. Kristallorientierung

Vergleich des Wachstums in $[0001]$ und $[000\bar{1}]$ Richtung (Ga-polar und N-polar)

Die Orientierung der Wachstumsrichtung hat einen wesentlichen Einfluss auf die Oberflächenmorphologie von GaN. Das Wachstum in $[0001]$ -Richtung findet auf der c-Ebene der Oberfläche, welche Ga-determiniert ist, statt. Im Gegensatz dazu steht die $[000\bar{1}]$ -Richtung mit Wachstum auf der N-determinierten -c-Ebene. Tabelle 4.5 gibt eine Übersicht über äquivalente Bezeichnungen für die beiden Wachstumsrichtungen.

Tabelle 4.5.: Gleichbedeutende Bezeichnungen für das Wachstum von GaN in $[0001]$ - und $[000\bar{1}]$ -Richtung.

$[0001]$	$[000\bar{1}]$
Ga-polar	N-polar
Ga-face	N-face
+ c	- c
$[0001]$	$[000 - 1]$

Die Vorgabe der Wachstumsrichtung in die Kristallrichtung $[000\bar{1}]$ kann im Wesentlichen über zwei verschiedene Methoden realisiert werden. Durch die erhöhte Zugabe von Magnesium mit einer Einbaurrate von 10^{20} cm^{-3} und darüber hinaus entsteht eine Inversionsschicht, welche die Wachstumsfront von Ga-determiniert zu N-determiniert ändert [Tavernier2004, Ramachandran1999]. Eine zweite Möglichkeit ist die geeignete Nitridierung des Saphirsubstrates vor dem Wachstum der GaN-Nanostrukturen. Bei diesem Prozess wird bei Temperaturen im Bereich der GaN-Wachstumstemperatur NH_3 in den Reaktor geleitet. Dadurch bildet sich auf der Al_2O_3 -Oberfläche AlN , welches in $[000\bar{1}]$ Richtung orientiert ist [Venegues1999].

Der Nachweis der Kristallorientierung kann über verschiedene Methoden erfolgen. Die einfachste Art der Überprüfung bietet das Ätzen von GaN mit Kaliumhydroxid (KOH) [Li2001]. Die Ga-polare Ebene von GaN ist gegenüber KOH chemisch inert und zeigt keine morphologische Veränderung. Die N-polare Ebene hingegen wird angegriffen und es bildet sich eine für

diesen Ätzprozess typische, aus Pyramiden bestehende Morphologie [Zhuang2005]. Abbildung 4.19 links zeigt die REM-Aufnahme von GaN-Nanostrukturen mit einer Wachstumsrichtung entlang der $[000\bar{1}]$. Das Wachstum dieser Nanosäulen wurde unter den Standardwachstumsbedingungen aus Abschnitt 4.2 durchgeführt. Behandelt man die Nanostrukturen mit einer KOH-Lösung, werden diese angegriffen und zeigen als Ätzmorphologie die typischen pyramidalen Seitenfacetten. Vereinzelt bleiben kleine, senkrechte Säulen stehen, welche durch Inversionsdomänen verursacht werden. Die Orientierung der in den Abschnitten 4.2.1 bis 4.2.3 vorgestellten Säulen ist also stets in $[000\bar{1}]$ -Richtung.

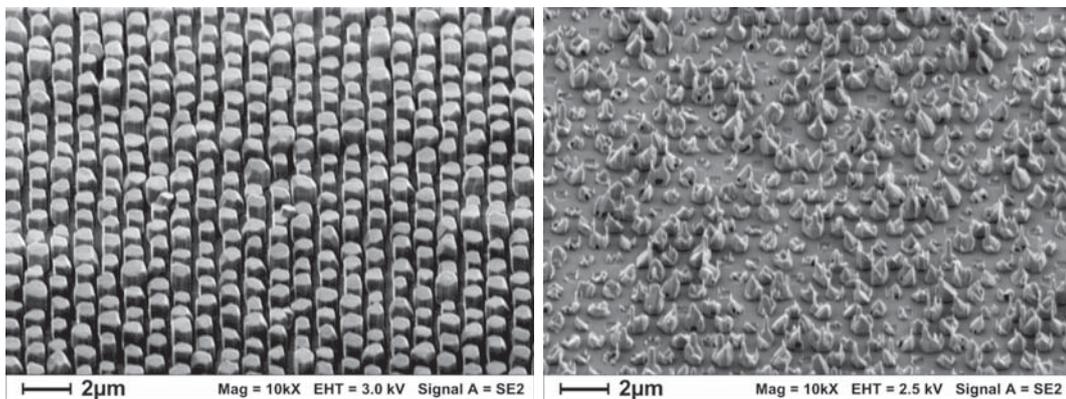


Abbildung 4.19.: REM-Aufnahmen von GaN-Nanostrukturen gewachsen auf vorstrukturiertem Saphirsubstrat vor (links) und nach (rechts) der Behandlung mit KOH. Die für N-determinierte Oberflächen charakteristische pyramidale Morphologie durch das Ätzen weist die Wachstumsrichtung $[000\bar{1}]$ nach. Einzelne senkrechte Säulen sind Hinweise auf Inversionsdomänen innerhalb der GaN-Nanostrukturen.

Neben der Bestimmung der Kristallorientierung durch selektives Ätzen können auch mit Hilfe von Kelvin Probe Force Microscopy (KPFM) Rückschlüsse auf die Wachstumsrichtung gewonnen werden. Mit KPFM kann das Oberflächenpotential einer Probe bestimmt werden [Nonnenmacher1991]. Dieses Oberflächenpotential ist bei GaN stark von der Polarität der Oberfläche abhängig. Die Richtung der spontanen Polarisierung (siehe Abschnitt 2.1.3, Seite 17) ist abhängig von der Kristallorientierung. Bei Ga-polarem GaN ist sie negativ und bei N-polarem GaN positiv und verursacht somit unterschiedliche Oberflächenladungen. Das darauf begründete unterschiedliche Verhalten kann dazu genutzt werden, die Polarität zu bestimmen [Wei2010]. Diese Analysemethode steht am IHT der TU Braunschweig zur Verfügung und bestätigte auch hier das Wachstum in -c-Richtung.

Mit Hilfe von konvergenter Elektronenbeugung (CBED³) besteht ebenfalls die Möglichkeit,

³CBED steht für Convergent Beam Electron Diffraction

die Orientierung von Kristallen zu bestimmen [Ponce1996]. Hierbei werden berechnete und gemessene Beugungsmuster miteinander verglichen und anhand des Verlaufes bestimmten Kristallorientierungen zugeordnet. Aufgrund des hohen Aufwandes findet diese Methode im Gegensatz zur Bestimmung mit KOH oder KPFM allerdings nur selten Anwendung.

Die richtige Steuerung der Parameter für das Wachstum qualitativ sehr hochwertiger 2D GaN-Schichten in $[0001]$ -Richtung ist gegenwärtiger Stand der Technik. Aufgrund dessen basieren heute sämtliche kommerziell verfügbaren $Al_yIn_xGa_{1-x-y}N$ Leuchtdioden auf Ga-polarem GaN. Das Wachstum in $[000\bar{1}]$ -Richtung zeigt bei vergleichbaren Wachstumsparametern eine deutlich rauere Oberfläche, wächst also tendentiell morphologisch schlechter und leichter dreidimensional [Daudin1997, Sumiya2000, Fichtenbaum2007].

Das verstärkt dreidimensionale Wachstum in $[000\bar{1}]$ -Richtung kann gezielt für die Formgebung und Herstellung von gewachsenen Nanosäulen genutzt werden. Experimente von Li et al. auf vorstrukturierten Substraten unterschiedlicher Oberflächenorientierung verdeutlichen die wesentlichen Unterschiede in der Form der Nanostrukturen [SFLi2010]. Abbildung 4.20 a) zeigt GaN-Nanostrukturen, gewachsen auf der N-polaren Seite eines polierten GaN-Substrates. Im Vergleich dazu sind in Teilabbildung b) die Nanostrukturen bei gleichen Wachstumsbedingungen auf Ga-polarem GaN auf Saphirtemplates dargestellt. Das Wachstum in $[000\bar{1}]$ -Richtung weist neben der polaren $(000\bar{1})$ und den semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ Ebenen die zur Substratoberfläche senkrechten, unpolaren $\{10\bar{1}0\}$ Ebenen auf, welche für das Wachstum von GaN-Säulen essentiell sind. Im Gegensatz dazu zeigen die Strukturen auf Ga-polarer Oberfläche ausschließlich die semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ Ebenen, welche die typische pyramidale Form ergeben. Bei kleineren Strukturen ist dieser Effekt noch deutlicher. Die Abbildungen 4.20 c) und d) verdeutlichen das Wachstum der GaN-Nanostrukturen auf einer nitridierten Saphiroberfläche in $-c$ -Richtung und auf einem Saphirsubstrat mit GaN-Zwischenschicht in c -Richtung. Beide Experimente wurden mit den gleichen Wachstumsbedingungen (siehe Tabelle 4.3 Seite 53) bei einem Trägergasgemisch von $H_2/N_2 = 0,8$ durchgeführt. Die Wachstumsmaske wurde bei beiden Scheiben mit dem Imprintdesign vorstrukturiert. Der Unterschied in der Orientierung beeinflusst auch hier wesentlich die Form. Beim Wachstum in $[000\bar{1}]$ -Richtung dominieren die unpolaren m -Flächen als senkrechte Seitenflächen und die Nanostrukturen zeigen die bevorzugte Säulenform mit Aspektverhältnissen größer 3. Die Vorgabe der Wachstumsrichtung $[0001]$ hingegen führt zum Wachstum von Nanopyramiden ohne unpolare Seitenflächen.

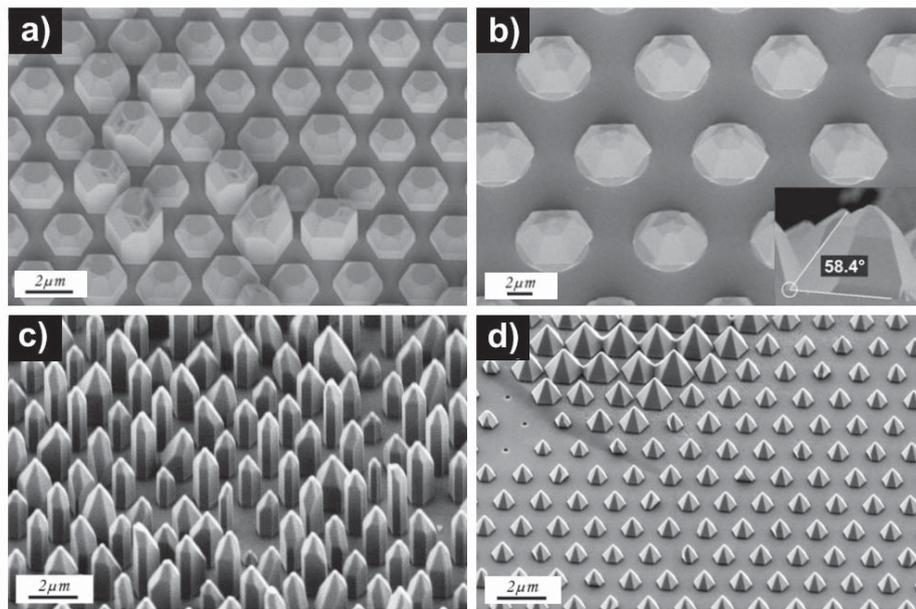


Abbildung 4.20.: a) Beim Wachstum auf $[000\bar{1}]$ orientierter GaN-Oberfläche treten vermehrt unpolare $\{10\bar{1}0\}$ Seitenflächen auf, b) bei gleichen Wachstumsbedingungen auf $[0001]$ orientierter GaN-Oberfläche sind diese nicht zu beobachten [SFLi2010]. Der Inset der Teilabbildung b) zeigt den für die semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ Ebenen charakteristischen Winkel von $58,4^\circ$. Bei kleineren Strukturgrößen zeigen die Nanostrukturen auf nitrierter Saphiroberfläche (Wachstumsrichtung $[000\bar{1}]$) die gewünschte Säulenform c), während beim Wachstum auf äquivalent strukturiertem GaN die pyramidale Form dominiert d).

Wachstumsexperimente in $[0001]$ -Orientierung

Aufgrund der im vorherigen Abschnitt beschriebenen Unterschiede in der Form der Nanostrukturen je nach Wachstumsrichtung, bedarf es für das Wachstum von Nanosäulen auf konventionellen GaN-Templates einer gesonderten Betrachtung. In einer zusätzlichen Versuchsreihe konnte herausgefunden werden, dass die Ausbildung von unpolaren Seitenflächen ausschließlich bei hohen Temperaturen und einem möglichst geringen V/III-Verhältnis stattfindet. Eine Abschwächung des lateralen Wachstums bei kleinen NH_3 -Flüssen konnte auch von Kapolnek et al. beobachtet werden [Kapolnek1997]. Neben einer hohen Wachstumstemperatur zeigten Akasaka et al. einen niedrigen Partialdruck von Ammoniak als vorteilhaft für die Ausbildung von glatten, unpolaren Seitenflächen [Akasaka1997]. Durch die Erhöhung des Anteils von Ga in der Gasphase zeigten Nam et al. ein Verhältnis kleiner 1 von lateralem zu vertikalem Wachstum [Nam1998]. Das gepulste Wachstum von GaN-Säulen, wie es von Stephen D. Hersee erstmals vorgestellt wurde, ermöglicht durch sein sehr metallreiches Regime homogene Nanosäulen und hohe Aspektverhältnisse [Hersee2006]. Abbildung 4.21 zeigt

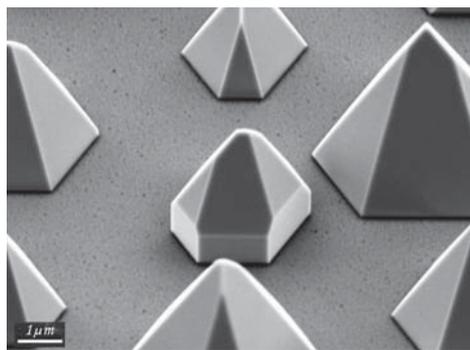


Abbildung 4.21.: REM-Aufnahme von Nanostrukturen auf einer GaN-Zwischenschicht bei einer Wachstumstemperatur von 1080 °C und einem V/III-Verhältnis von etwa 100. Erst bei diesen sehr niedrigen Werten für das V/III-Verhältnis treten hier unpolare Seitenebenen senkrecht zur Substratoberfläche auf.

eine REM-Aufnahme einer GaN-Nanostruktur gewachsen bei einer Temperatur von 1080 °C, einem V/III-Verhältnis von etwa 100 und einem Druck von 150 mbar. Die unpolaren Seitenflächen stellen bei der im Zentrum der Abbildung stehenden Nanostruktur einen signifikanten Anteil der Oberfläche.

Dieses sehr metallreiche Wachstum liegt deutlich außerhalb der konventionellen Wachstumseinstellungen. In Abbildung 4.22 ist die Wachstumsrate einer zweidimensionalen GaN-Schicht über dem logarithmischen V/III-Verhältnis aufgetragen. Das Verhältnis der Gruppe V zu Gruppe III Materialien wurde mit Hilfe der in Abschnitt 2.3 beschriebenen Formeln berechnet. Die Bestimmung der Wachstumsrate wurde mittels der Auswertung der Reflektionssignale auf den beigelegten Standardtemplatens mit ca. 3 µm dicker GaN-Schicht auf Saphir vorgenommen. Zum Vergleich der Raten wurden diese mit dem entsprechenden Faktor auf einen TMGa-Fluss von 160 sccm skaliert. Mit sinkendem Anteil an NH_3 beginnt die Wachstumsrate des GaN abzunehmen und bei einem V/III-Verhältnis von 100 ist diese bereits um etwa 30% verringert. Die kontinuierliche Verringerung des V/III-Verhältnisses führt zu einem Wachstumsregime, in welchem die Pyrolyse von NH_3 die Wachstumsrate bestimmt. Das limitierende Wachstumsmaterial ist in diesem Fall nicht mehr, wie beim konventionellen GaN-Wachstum in der MOVPE, das zur Verfügung stehende atomare Gallium auf der Oberfläche, sondern der Stickstoff. Stellt man an der Produktionsanlage den für TMGa maximal und für NH_3 minimal möglichen Fluß ein, ergibt sich für den gegebenen Reaktor ein V/III-Verhältnis von ca. 85. Dieser Wert ist in Abbildung 4.22 als rote Linie gekennzeichnet. Der Betrieb der Anlage bei solch extremen Einstellungen wirkt sich negativ auf die Reproduzierbarkeit der Versuche aus, da die Durchflussregler bei ihren Grenzwerten betrieben werden

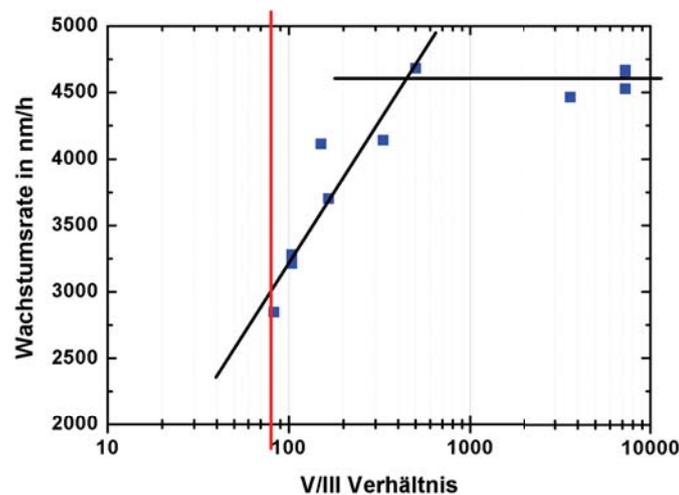


Abbildung 4.22.: Auftragung der Wachstumsrate der GaN-Schicht auf Standardtemplaten über dem logarithmischen V/III-Verhältnis. Bei V/III-Verhältnissen unter 300 beginnt die Wachstumsrate deutlich abzunehmen und ist somit ein Hinweis auf ein durch Stickstoff limitiertes Wachstum. Die senkrechte rote Linie zeigt das mit den gegebenen Anlagenbedingungen minimal einstellbare V/III - Verhältnis von 85.

und die Fehleranfälligkeit dadurch sehr hoch ist. Zudem erreicht man durch den hohen Galliumfluss sehr hohe Wachstumsgeschwindigkeiten bei den Nanostrukturen, was sich neben den sehr stickstoffarmen Bedingungen zusätzlich negativ auf die Materialqualität auswirken kann (siehe Abschnitt 4.2.5).

Wendet man die in den Abschnitten 4.2.1 bis 4.2.3 gewonnenen Erkenntnisse auf das Wachstum von Nanostrukturen auf GaN-Templates an, kann auch hier bei Verwendung von sehr hohen Wasserstoffflüssen ($H_2/N_2 > 5$) ein Wachstum in Säulenform mit Aspektverhältnissen im Bereich von 3 erreicht werden (siehe Abbildung 4.23). Der Großteil der an der Oberfläche auftretenden Kristallfacetten wird von den unpolaren $\{10\bar{1}0\}$ Ebenen bestimmt. An der Spitze der Nanosäulen treten die semipolaren Seitenfacetten $\{10\bar{1}1\}$ und $\{10\bar{1}2\}$ auf. Im Gegensatz zu den auf Saphir gewachsenen Nanosäulen zeigt die Spitze hier meist eine rein pyramidale Form, die polare Facette an der Spitze ist meist nicht ausgebildet.

Die Verteilung der Nanostrukturen über dem Wafer ist in großen Bereichen sehr inhomogen. Dies ist zu einem wesentlichen Teil durch die Schwierigkeit des Imprintprozesses auf der GaN-Morphologie bedingt (siehe Abschnitt 4.1.1). Weiterhin ist auffällig, dass die höchsten Aspektverhältnisse im Bereich großer Senken für das Wachstumsmaterial zu finden sind. Treten durch Partikel oder Imprintfehler größere geschlossene GaN-Flächen auf, wirkt sich dies positiv auf die Homogenität und das Aspektverhältnis der Nanostrukturen aus. Aufgrund

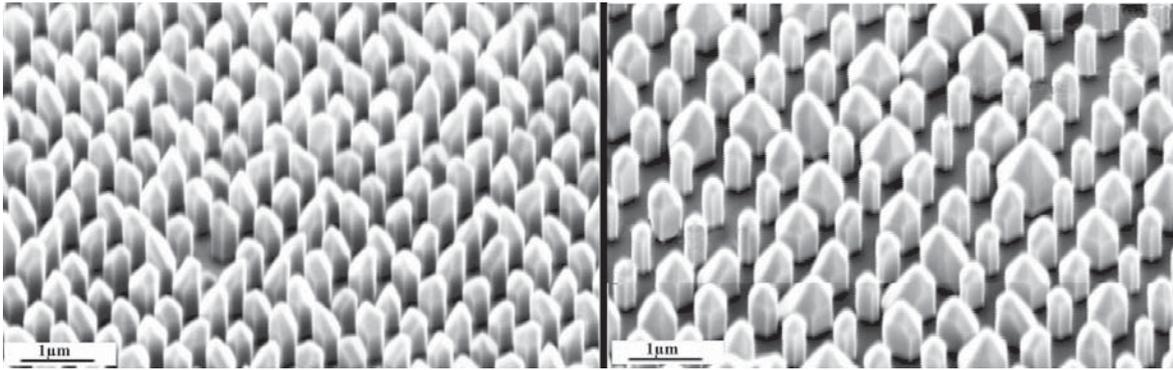


Abbildung 4.23.: REM-Aufnahme von GaN-Nanosäulen gewachsen auf einer GaN-Zwischenschicht. Links: Nanosäulen im Imprintfeld D200P600 der OBDU-Maske. Rechts: Nanosäulen auf der MIII-Maske

der großen Diffusionslängen (siehe Abschnitt 4.2.5) ist dies ein weiteres Indiz, dass eine Verringerung des limitierenden Wachstumsmaterials, in diesem Fall Stickstoff, von Vorteil ist. Bei gleichbleibenden V/III-Verhältnissen könnte durch eine weitere Verringerung des Ammoniakflusses ebenfalls die Wachstumsrate gesenkt werden. Eine Absenkung dieser relativ hohen Raten (siehe Tabelle 4.4 Seite 61) sollte die Materialqualität und die Homogenität des Wachstums verbessern.

4.2.5. Wachstumprozess

Das Wachstum von GaN-Nanosäulen bedingt die Einhaltung eines engen Parameterraumes und konnte erst in der jüngsten Vergangenheit in der MOVPE gezeigt werden (siehe Kapitel 3). In den vergangenen Abschnitten wurde darüber hinaus herausgearbeitet, welche Hebel für die Steuerung bestehen. Die Eigenschaften der Säulen können durch eine geringe Variation der MOVPE-Parameter und durch die Orientierung des Substrates wesentlich beeinflusst werden. In dem nun folgenden Teil sollen diese Erkenntnisse zusammengeführt werden, um daraus ein besseres Verständnis der Wachstumsprozesse zu generieren.

Ein wesentlicher Einflussparameter auf das Wachstum ist die Diffusionslänge der Materialien auf der Maskenoberfläche. Wie durch die lineare Abhängigkeit des Volumens über der verfügbaren Maskenoberfläche bereits indiziert (siehe Abbildung 4.12 Seite 59), ist die Diffusionslänge wesentlich größer als der maximal verfügbare Abstand zwischen den Säulen. Dieser beträgt beim Maskendesign MIII nahe des Waferrandes $1,8 \mu\text{m}$.

Eine weitere Möglichkeit zu überprüfen, ob Material bereits vor dem Erreichen einer Maskenöffnung desorbiert, ist der Vergleich der Schichtdicke des auf einer zweidimensionalen GaN-

Fläche abgeschiedenen Materials mit dem errechneten Äquivalent der Schichtdicke aus dem Volumen der Nanostrukturen. Die Auswertung der Reflektrometriemessungen auf den beigelegten zweidimensionalen GaN-Templaten ergibt eine Wachstumsrate von $3250 (\pm 214)$ nm/h. Dies resultiert bei einer Wachstumsdauer von 300 s in einer Schichtdicke von $270 (\pm 20)$ nm. Teilt man das berechnete Volumen der Nanosäulen (siehe Abbildung 4.12 Seite 59) durch die Fläche des hexagonalen Grundgitters für die jeweilige Nanosäule, erhält man die äquivalente zweidimensionale Schichtdicke. Diese beträgt ca. 280 nm. Die vergleichbare Größenordnung dieser beiden Werte deutet darauf hin, dass das auf der Maske auftreffende Material bei den vorstrukturierten Öffnungen eingebaut wird und nicht unmittelbar von der Oberfläche der SiO₂ Maskierschicht desorbiert.

Befindet sich ein großflächig maskierter Bereich neben einem strukturierten Feld, bietet dies die Möglichkeit, den Einflussbereich - und somit die Diffusionslänge - des limitierenden Wachstumsmaterials zu bestimmen. Das Maskendesign OBDU (siehe Tabelle 4.1 Seite 50), bei dem sich 16 kleine, vorstrukturierte Bereiche über dem Wafer verteilt befinden, bietet beste Voraussetzungen, diesen Parameter zu bestimmen. Unter der Annahme einer konstanten Gasströmung über der Substratoberfläche (siehe Abschnitt 2.3.4), stellt der Übergang zwischen maskierter und vorstrukturierter Fläche einen Sprung im Materialverbrauch über dem örtlichen Verlauf dar.

Da in den Randbereichen der Feldgrenze die Nanostrukturen meist zum Teil koalesziert sind, kann eine Bestimmung der Durchmesser nicht sinnvoll erfolgen. Eine Alternative ist durch die Auswertung des Füllfaktors (FF) gegeben. Hierbei wird über den Kontrast in den REM-Aufnahmen die mit GaN belegte Fläche gegenüber der noch sichtbaren Maskenoberfläche bestimmt. Der Randmesspunkt zeigt stets den höchsten Wert für den Füllfaktor. Nach etwa 600 μm ist die Abnahme des Füllfaktors weitestgehend gesättigt. Der Einflussbereich des benachbarten Feldes, welches durch einen geringeren Abstand der Maskenöffnungen eine vergrößerte Materialsenke darstellt, beginnt bereits bei etwa 700 μm . Um nun den Verlauf bei verschiedenen Temperaturen graphisch besser vergleichen zu können, wurde der Füllfaktor auf die Differenz zwischen dem Füllfaktor des Randpunktes und dem gesättigten Wert bei 600 μm normiert

$$FF_{normiert}(x) = \frac{FF(x) - FF(600 \mu\text{m})}{FF(0 \mu\text{m}) - FF(600 \mu\text{m})} \quad (4.3)$$

und in Abbildung 4.24 links aufgetragen.

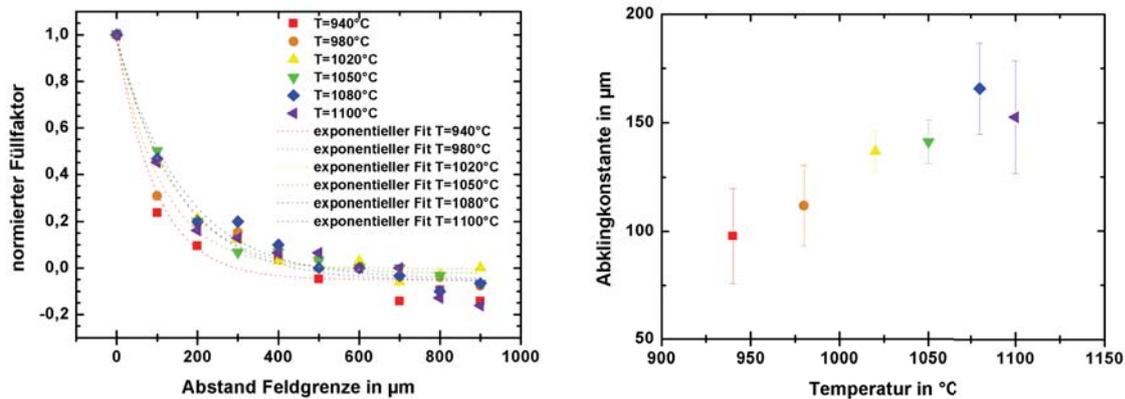


Abbildung 4.24.: Links: Auftragung des auf die Differenz zwischen dem Randmesspunkt und dem Messpunkt bei 600 µm normierten Füllfaktors für die Temperaturen 940 °C, 980 °C, 1020 °C, 1050 °C, 1080 °C und 1100 °C über dem Abstand zur Grenze des strukturierten Feldes. Die gepunkteten Linien zeigen den Fit der Messwerte mittels einer einfachen exponentiellen Abklingfunktion. Rechts: Auftragung der Abklingkonstanten der Exponentialfunktionen.

Die Diffusionskonstante soll nun im Folgenden durch eine einfache Modellbildung bestimmt werden. Eine sehr gute Möglichkeit, das Verhalten eines Systems auf bestimmte Veränderungen zu bestimmen, ist die Betrachtung der Problemstellung im Laplace-Raum [Firsching2006]. Bei der Laplace-Transformation wird die Originalfunktion f einer reellen Veränderlichen auf die Bildfunktion F einer komplexen Veränderlichen durch das Integral

$$F(s) = \mathcal{L}\{f\}(s) = \int_0^{\infty} e^{-sx} f(x) dx. \quad (4.4)$$

abgebildet.

Ein Vorteil im Laplace-Raum ist, dass das System unabhängig von ihrer Anregung betrachtet werden kann. Das Ergebnis ergibt sich aus der Multiplikation der Änderungsfunktion und der Übertragungsfunktion des Systems.

Die hier auftretende Änderung über dem Ort stellt, wie bereits beschrieben, eine Sprungfunktion dar. Da es sich um eine Materialsenke und keine -quelle handelt, ergibt sich die normierte Änderungsfunktion durch die Laplace-Transformation eines negativen Einheits-sprunges zu $-\frac{1}{s}$.

Der örtliche Verlauf des Füllfaktors deutet darauf hin, dass es sich bei der Übertragungsfunktion um ein Verzögerungsglied erster Ordnung (PT1-Glied) handelt (siehe Abbildung 4.24). Dieses kann im Laplace-Raum sehr einfach mit der Übertragungsfunktion

$$\frac{1}{1 + Ds} \quad (4.5)$$

beschrieben werden. D entspricht dabei der Abklingkonstante. Die inverse Laplace-Transformation des Produktes aus Änderungsfunktion und Übertragungsfunktion

$$\mathcal{L}^{-1}\left(-\frac{1}{s} \cdot \frac{1}{1 + Ds}\right) \quad (4.6)$$

ergibt die Gleichung $e^{-x/D} - 1$. Mit dem Startwert 1 erhält man so den Füllfaktor

$$FF(x) = e^{-x/D}, \quad (4.7)$$

mit x als Variable über dem örtlichen Verlauf und D als Diffusionslänge. Da die Übertragungsfunktion unabhängig von der Anregung betrachtet werden kann, besteht nun so die Möglichkeit, den Einfluss und die Reichweite der Materialdiffusion bei einer komplexeren Substratstrukturierung abzuschätzen. Dazu muss nur die Änderungsfunktion dem Layout des entsprechenden Designs angepasst werden.

Abbildung 4.24 rechts zeigt die bestimmten Diffusionslängen für die Temperaturen 940 °C, 980 °C, 1020 °C, 1050 °C, 1080 °C und 1100 °C. Diese nehmen mit steigender Temperatur zu und liegen bei der optimalen Wachstumstemperatur der Nanosäulen um 1060 °C fast zwei Größenordnungen über dem maximal auf dem Maskendesign vorhandenen Abstand zweier Maskenöffnungen. Eine große Materialsenke bzw. ein hoher Materialüberschuss hat aufgrund dessen einen hohen Wirkungsquerschnitt von über 100 μm . Wachstumsspezies, welche auf der SiO_2 Oberfläche in Richtung Feldmitte diffundieren würden, müssen eine Anzahl von Materialsenken passieren. Aufgrund der langen Reichweite ist somit die Kombination einer Diffusion direkt auf der Maskenoberfläche und in der Grenzschicht der sich über dem Substrat befindlichen Gasphase (siehe auch Seite 31) sehr wahrscheinlich.

Eine Erhöhung des Wasserstoffs im Trägergas resultiert, wie in den Abschnitten 4.2.1 bis 4.2.4 experimentell gezeigt, in einer Verringerung der lateralen Wachstumsrate und damit verbunden in einer Verkleinerung der semipolaren $\{10\bar{1}0\}$ Ebenen. Gleichzeitig steigt die Höhe der Nanosäulen, so dass das aufgrund der geringen lateralen Wachstumsrate vermehrt zur Verfügung stehende Material umverteilt wird. Das Volumen der Nanostrukturen bleibt, wie in Abbildung 4.12 auf Seite 59 dargestellt, unabhängig vom Wasserstoff/Stickstoffverhältnis konstant. Im Gegensatz zu Stickstoff kann Wasserstoff bei den optimalen Wachstumsbedingungen für Nanosäulen als unbegrenzt verfügbar angenommen werden. Diese Interpretation

wird durch die Tatsache gestützt, dass eine weitere Erhöhung der Wasserstoffkonzentration im Trägergas keinen erkennbaren Effekt auf die Morphologie, also weder auf den Durchmesser noch auf die Höhe, hat.

GaN kann sich bei hohen Temperaturen wieder in seine Einzelteile Gallium und Stickstoff zerlegen [Koleske2001]. Die Reaktionsgleichung



verdeutlicht, dass durch Wasserstoff die inverse Synthese von GaN wieder zu Gallium und Ammoniak möglich ist. Dadurch erhöht sich die Wahrscheinlichkeit der Zerlegung. Die Form der Nanosäulen könnte so durch ein selektives Ätzen bestimmter kristalliner Facetten beeinflusst werden [SFLi2010b]. Allerdings spricht die Tatsache, dass eine Zugabe von Wasserstoff beim Wachstum der Nanosäulen nur die Form, aber nicht das Volumen der abgeschiedenen GaN-Kristalle verändert, gegen eine Dekomposition oder ein Rückätzen mit anschließender Desorption in signifikant höheren Raten. Auch der Vergleich der gewachsenen Schichtdicke auf einem konventionellen, zweidimensionalen Template zu der berechneten äquivalenten Schichtdicke der Nanosäulen zeigt, dass ein erhöhter Materialverlust nicht auftritt. Eine erneute Diffusion der Reaktionsprodukte und deren Einbau könnte allerdings stattfinden. Die Formgebung durch das selektive Rückätzen bestimmter kristalliner Facetten ist somit eine mögliche Erklärung für das Wachstum von GaN in Säulenform.

Neben der oben beschriebenen Ätzwirkung kann Wasserstoff auch bestimmte Oberflächen passivieren, so dass das Wachstum auf den betroffenen Facetten eingeschränkt wird [SFLi2010b]. Northrup und Neugebauer zeigen in einer theoretischen Studie, dass durch Wasserstoff eine passivierende Schicht auf der $(000\bar{1})$ Oberfläche ausgebildet werden kann [Northrup2004]. Die auf der Oberfläche freien Bindungsmöglichkeiten werden durch die energetisch günstige $3(\text{N-H})$ Rekonstruktion abgesättigt. Solche Oberflächen sind fast inert gegenüber der Adsorption von Stickstoff, was in einer sehr langsamen Wachstumsrate resultiert. Abbildung 4.25 zeigt eine schematische Darstellung des GaN-Kristalles für die beiden Wachstumsrichtungen $[0001]$ und $[000\bar{1}]$. In einer früheren Veröffentlichung von Northrup über den Einbau von Indium an semipolaren $(10\bar{1}1)$ Facetten wird auf die starke Ähnlichkeit dieser Facette zur $(000\bar{1})$ Ebene hingewiesen [Northrup1999]. Es besteht also die Möglichkeit, dass durch Wasserstoff eben diese beiden Kristallebenen passiviert werden können. Laut der

Theorie von Wulff dominiert letztendlich diejenige kristalline Oberfläche, welche die geringste Wachstumsrate zeigt [Wulff1901]. Diese Theorie unterstützt die im Experiment beobachteten Unterschiede für die beiden Kristallorientierungen (siehe auch Abschnitt 4.2.4). Beim Wachstum in $[0001]$ Richtung bilden sich vorwiegend pyramidale Strukturen mit langsam wachsenden, semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ Facetten, beim Wachstum in $[000\bar{1}]$ Richtung Säulen mit stabilen $-c$ - und m -Ebenen.

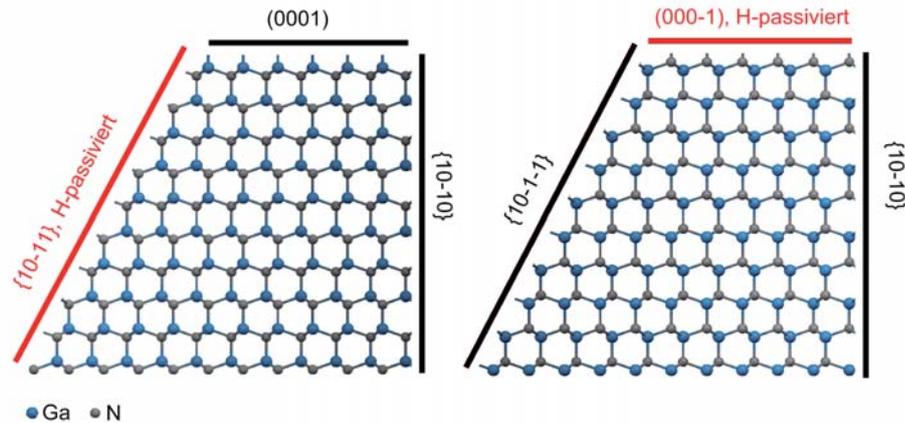


Abbildung 4.25.: Schematische Darstellung der GaN-Kristalle in Ga-polarer $[0001]$ (links) und N-polarer $[000\bar{1}]$ (rechts) Wachstumsrichtung. Die semipolare $\{10\bar{1}1\}$ und die polare (0001) Ebene, die bei Wachstum in $[0001]$, respektive $[000\bar{1}]$ Richtung, auftreten, können mit Wasserstoff passiviert werden (rot gekennzeichnet).

Ebenfalls kann durch eine Passivierung der Oberfläche eine gleichbleibende Menge an abgedehntem GaN-Volumen erklärt werden. Da die Diffusionslängen für die Wachstumsspezies ausreichend groß sind, desorbieren sie bei den gegebenen Abmessungen der Nanosäulen noch nicht an der passivierten Oberfläche, sondern diffundieren bis zu einer Materialsenke weiter, z.B. den $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ Ebenen.

Beide Ansätze, ein Ätzen bzw. ein Passivieren verschiedener kristalliner Facetten, bieten mögliche Erklärungen für die Formgebung der Kristalle. Die abschließende Entscheidung, welcher dieser Prozesse dominiert, oder ob eine Kombination beider für das kristalline Wachstum von GaN-Nanosäulen verantwortlich ist, kann mit den derzeit verfügbaren Ergebnissen noch nicht getroffen werden.

Zusätzlich zum Wasserstoff kann auch der Abstand zwischen den Nanosäulen als Möglichkeit genutzt werden, deren Form zu beeinflussen. Wie in Abbildung 4.12 auf Seite 59 dargestellt, folgt das Volumen der Nanosäulen der Fläche der zur Verfügung stehenden Maskenoberfläche. Da eine zusätzliche Erhöhung des Wasserstoffes hier keine Änderung des Durch-

messers hervorruft, muss der Zunahme des lateralen Wachstums mit steigendem Abstand der Nanosäulen ein anderer Mechanismus zu Grunde liegen.

Bei der Vorstrukturierung mit dem Maskendesign MII treten im untersuchten Abstandsreich der Säulen keine größeren maskierten Flächen auf. Aufgrund dessen ist ein Gradient der Materialzusammensetzung in lateraler Richtung, wie er in den Randgebieten der vorstrukturierten Felder der OBDU Maske auftritt, zu vernachlässigen (vergleiche auch Abbildung 4.5). In den Fokus rückt somit die Materialdiffusion auf der Maskenoberfläche.

Bei den nun folgenden Überlegungen soll der Einfluss des Abstandes zwischen den Nanosäulen auf das V/III-Verhältnis abgeschätzt werden. Dieses V/III_{lokal} soll das Verhältnis zwischen verfügbarem Stickstoff und Gallium direkt bei der Maskenöffnung beschreiben. Das Wachstum findet unter Bedingungen in der Gasphase statt, bei denen der Stickstoff das limitierende Material darstellt (siehe Abschnitt 4.2.4). Gallium ist somit im Überschuss vorhanden. Daher soll angenommen werden, dass die Oberfläche mit Gallium gesättigt ist und die Physisorption auf konstantem Niveau bleibt. Die Konzentration der Ga-Atome in einem physisorbierten Zustand ist somit unabhängig von der Position überall gleich groß und die Diffusion von Gallium muss nicht berücksichtigt werden. Stickstoff hingegen ist nur limitiert verfügbar. Die Diffusion des Stickstoffs zur Maskenöffnung bestimmt somit die Tendenz von V/III_{lokal} .

Nimmt man an, dass der zur Verfügung stehende Stickstoff laut dem Fick'schen Diffusionsgesetz

$$J = -D \frac{\delta c}{\delta x} \quad (4.9)$$

mit dem Teilchenstrom J zur Senke, dem Diffusionskoeffizienten D und der Stoffmengenkonzentration c über dem örtlichen Verlauf x zur Maskenöffnung diffundiert, kann das vom V/III-Verhältnis der Gasphase völlig unterschiedliche V/III_{lokal} abgeschätzt werden. Dieses kann, unter Berücksichtigung der Formel 4.1, mit

$$V/III_{lokal} \sim \frac{A^2 \sqrt{3}}{2R^2 \pi} \sim A^2. \quad (4.10)$$

als direkt proportional zum Quadrat des Abstandes zwischen den Maskenöffnungen (A^2) angenommen werden. R entspricht dem Radius der Maskenöffnungen. Bei dem in den Experimenten verwendeten Imprintdesign MII ist R über dem gesamten Wafer konstant und A steigt von etwa 400 nm auf 1600 nm an. Als Bezugspunkt kann der kleinste Abstand zwi-

schen den Maskenöffnungen verwendet werden. Tabelle 4.6 spiegelt den relativen Anstieg $\frac{V/III_{\text{lokal}}(A)}{V/III_{\text{lokal}}(400)}$ mit steigendem Abstand der Nanosäulen wider.

Tabelle 4.6.: Berechnung des relativen Anstiegs von V/III_{lokal} für verschiedene Abstände A zwischen den Nanosäulen laut Formel 4.10. Als Referenzpunkt wird V/III_{lokal} beim kleinsten auf dem MII-Stempeldesign vorhandenen Abstand von etwa 400 nm verwendet.

A in nm	$V/III_{\text{lokal}}(A)/V/III_{\text{lokal}}(400)$
400	1,0
700	3,0
1000	6,3
1300	10,6
1600	16,0

So erhöht sich beim Stempeldesign MII das V/III_{lokal} in etwa um den Faktor 16 zwischen dem kleinsten und größten Abstand der Nanosäulen. Der Einfluss eines steigenden V/III -Verhältnisses auf das Aspektverhältnis von Nanostrukturen wurde von Li et al. untersucht [SFLi2010b]. Die in dieser Veröffentlichung vorgestellten Experimente zeigten, dass mit höher werdendem V/III -Verhältnis das Aspektverhältnis sinkt. Die laterale Wachstumsrate nimmt also gegenüber der vertikalen signifikant zu. Dieses Verhalten entspricht exakt den Beobachtungen aus Kapitel 4.2.1 (siehe auch Abbildung 4.11). Auch dort konnte ein deutlicher Anstieg der Durchmesser mit größer werdendem Abstand zwischen den Maskenöffnungen festgestellt werden. Die laterale Abmessung der Nanosäulen kann somit durch eine lokale Veränderung des Verhältnisses zwischen verfügbarem Gallium und Stickstoff beeinflusst werden.

4.3. Evaluation der Materialqualität

In der Literatur wird oft die hohe Qualität von monokristallinen Nanosäulen als ein wesentlicher Vorteil angegeben (siehe Kapitel 3). Wie in den vorangegangenen Abschnitten bereits gezeigt, bedarf es für das kontrollierte Wachstum von GaN-Nanosäulen in einer MOVPE-Produktionsanlage Parametereinstellungen, welche doch relativ weit von standardisierten Epitaxiebedingungen entfernt sind. Die Untersuchung der Auswirkungen dieser Einstellungen auf die strukturelle Beschaffenheit der Nanosäulen mit Hilfe von REM- und TEM-Aufnahmen sind Thema des Abschnittes 4.3.1. Hierbei wird auch der Einfluss der Templatequalität beleuchtet. Nach dem Nachweis von kristallin sehr hochwertigen Kristallfacetten als Wachstumsgrundlage für die in Kapitel 5 analysierten Quantenfilme und der Untersuchung von mikro- und nanoskopischen Defekten, werden im darauf folgenden Abschnitt 4.3.2 die optischen Eigenschaften der Nanosäulen und der Einbau von Verunreinigungen untersucht.

4.3.1. Strukturelle Besonderheiten

Um präzise Detailinformationen über den kristallinen Aufbau von Nanorods zu erhalten, besteht neben der morphologischen Analyse der Nanosäulen im REM die Möglichkeit, Aufnahmen eines Transmissionselektronenmikroskops (TEM) heranzuziehen. Abbildung 4.26 zeigt einen Hellfeld-TEM Querschnitt durch Nanosäulen, die auf einem von MII vorstrukturierten Template gewachsen wurden. Am Fuß des Bildes ist das verwendete Saphirsubstrat zu se-

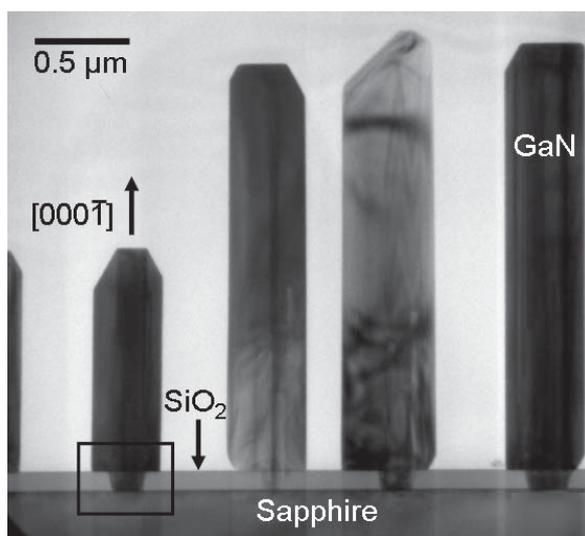


Abbildung 4.26.: TEM-Aufnahme von GaN-Nanosäulen auf vorstrukturiertem Saphirsubstrat [Bergbauer2010]. Der TEM-Querschnitt zeigt im unteren Teil das Saphirsubstrat, die ca. 100 nm dicke SiO₂ Maskierschicht und die Öffnungen der Maske bis zum Substrat. Die Oberfläche der Säulen wird von den unpolaren {10 $\bar{1}$ 0} Ebenen dominiert. Daneben treten die semipolaren {10 $\bar{1}$ 1} und {10 $\bar{1}$ 2} Ebenen schräg zur Substratoberfläche auf. Die polare (000 $\bar{1}$) bildet die Spitze der Nanosäule.

hen, das von der ca. 100 nm dicken SiO₂-Maske bedeckt ist. Die Maskenöffnungen von etwa 220 nm sind im Querschnitt getroffen und zeigen sich als trapezförmige Vertiefung bis zum Saphirsubstrat. Die hier analysierten Nanosäulen sind bei einem H₂/N₂ Trägergasgemisch von 2 gewachsen und enthalten 5 InGaN/GaN-Quantenfilme, abgeschlossen von einer dünnen p-dotierten Schicht. Auf die Eigenschaften des eingebauten Indiums und die p-dotierte Abschlusschicht wird detailliert in Kapitel 5 eingegangen. Bei einem Abstand von etwa 800 nm variiert der Durchmesser der Nanosäulen zwischen 400 nm und 500 nm, was unter Berücksichtigung des lateralen Wachstums in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus Abschnitt 4.2.1 steht. Morphologisch zeigt sich klar die Dominanz der unpolaren {10 $\bar{1}$ 0}

Ebenen beim Oberflächenanteil. Die polare $(000\bar{1})$ Ebene an der Spitze der Nanosäule und die beiden semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ und $\{10\bar{1}2\}$ Ebenen zeigen einen geringeren Anteil als die unpolaren Facetten an der Oberfläche. Während die Qualität der polaren Ebene von Versetzungen (dunkle Linien senkrecht zur Substratoberfläche) beeinträchtigt ist, sind sowohl die semi- als auch unpolaren Seitenflächen von kristallin hoher Qualität. Das laterale Wachstum über die Maskenöffnung hinaus erfolgt in m-Orientierung und scheint stets mit semipolaren Ebenen in Verbindung zu stehen.

Geht man zu höheren Auflösungen, kann die Grenzfläche zwischen Saphirsubstrat, Maskenöffnung und Nanosäule detaillierter untersucht werden (siehe Abbildung 4.27 links). Der

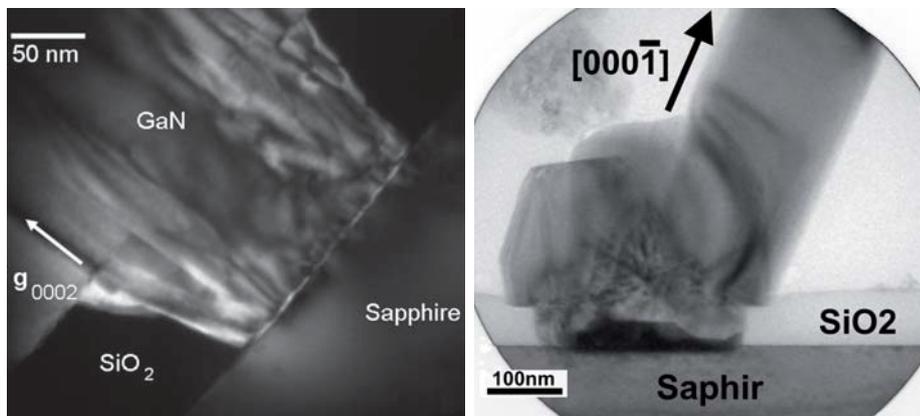


Abbildung 4.27.: Links: TEM-Dunkelfeldaufnahme des Grenzbereiches zwischen Saphirsubstrat, Maskenöffnung und Nanosäule entlang der Kristallrichtung (0002) [Bergbauer2010]. In diesem Bereich zeigt sich eine deutlich erhöhte Anzahl von Defekten. Rechts: TEM-Aufnahme des Säulenwachstums nach deutlichem Überätzen beim Öffnen der SiO₂-Wachstumsmaske. Die Nukleation beginnt in verschiedene Kristallrichtungen, wobei die bevorzugte Wachstumsrichtung $[000\bar{1}]$ letztendlich dominiert [Roder2010].

Bereich der Nukleation auf dem Saphir sowie die geätzten SiO₂-Seitenflächen der Maske sind Quelle einer großen Dichte von Schraubenversetzungen. Die geöffnete Saphiroberfläche zeigt eine Rauigkeit, die durch den physikalischen Ätzprozess bei der Öffnung der Maskenoberfläche bedingt ist. Die Schädigung der Saphiroberfläche kann sogar soweit gehen, dass die c-Ebene stark aufgeraut ist und das Wachstum der Nanosäulen nicht mehr senkrecht zur Substratoberfläche stattfindet (siehe auch Abschnitt 4.1.1). Abbildung 4.27 rechts zeigt die Ausbildung dreier verschiedener Kristallrichtungen bei der Nukleation. Aufgrund der starken Schädigung des Substrates durch das Überätzen bei der Maskenöffnung bilden sich Kristallite unterschiedlicher Orientierung in einer Maskenöffnung, welche in TEM-Dunkelfeldaufnahmen eindeutig voneinander unterschieden werden können. Das Wachstum einer Vielzahl dieser Kri-

stallite stoppt aufgrund der ungünstigen Wachstumsrichtung nach kurzer Zeit und es dominiert die bevorzugte Wachstumsrichtung. In diesem Fall zeigt sich die Kristallrichtung $[000\bar{1}]$ als dominant, welche wegen der starken Substratschädigung verkippt zur Substratoberfläche auftritt.

Die Form der Öffnung der SiO_2 Maske hat zusätzlichen Einfluss auf die Defektgeneration innerhalb der Nanosäulen (siehe Abbildung 4.27 links). Der Verlauf der Flanken der Maskenöffnung ist nicht wie im idealen Fall senkrecht zur Substratoberfläche, sondern zeigt einen Winkel zwischen 15° und 25° . Durch die Rauigkeit an diesen Seitenflanken kann GaN auch hier zum Teil nukleieren. Da hier kein direkter Kontakt zwischen GaN und Saphirsubstrat vorhanden ist, fehlt die Information zur Kristallorientierung. Dadurch entstehen verschiedene Wachstumsrichtungen. Beim Koaleszieren dieser verschieden orientierten Nukleationen entstehen an der Grenzfläche Defekte. Eine vollständig geöffnete Maske mit gleichzeitig möglichst geringer Schädigung ist somit ein wichtiger Bestandteil auf dem Weg zu möglichst defektfreien Nanosäulen. Um die Oberfläche zu schützen und die Fläche der schrägen Flanken zu minimieren, wurde die Maskendicke beim Obducatdesign auf 30 nm reduziert (siehe Abschnitt 4.1.2).

Analysiert man die Materialqualität mit zunehmender Höhe des Nanorods, zeigt sich eine deutliche Reduzierung der Defekte (siehe Abbildung 4.28 links). Die Filterung von Schraubenversetzungen beim Wachstum von GaN-Nanosäulen wurde bereits von mehreren Forschungsgruppen nachgewiesen. Stephen D. Hersee [Hersee2006] berichtet von defektfreien Strukturen und einem Abbiegen der Defekte an die Oberfläche der Nanosäulen. Das Abknicken einer Schraubenversetzung wird beispielhaft in Abbildung 4.28 links gezeigt und kann als ein Hauptmechanismus für die Defektreduktion identifiziert werden. Nach etwa 200 nm verläuft eine Schraubenversetzung parallel zum Substrat und terminiert auf der Oberfläche der Nanosäule. Allerdings treten auch Schraubenversetzungen auf, welche die komplette Nanosäule durchlaufen (siehe Abbildung 4.28 rechts). Der hier gezeigte Defekt durchzieht die gesamte Nanosäule und endet erst in der polaren c -Ebene der Spitze der Nanosäule. Cherns et al. und Chen et al. konnten ähnliche Beobachtungen von durchstoßenden Schraubenversetzungen an MBE und MOVPE gewachsenen Nanosäulen zeigen [Cherns2010, Chen2009]. In einer Reihe von TEM-Untersuchungen an mehr als 3000 Nanosäulen konnte von Colby et al. die Abhängigkeit der Defektreduktion vom Durchmesser nachgewiesen werden [Colby2010]. Auch hier zeigten sich Schraubenversetzungen, welche die komplette Struktur durchlaufen. Theo-

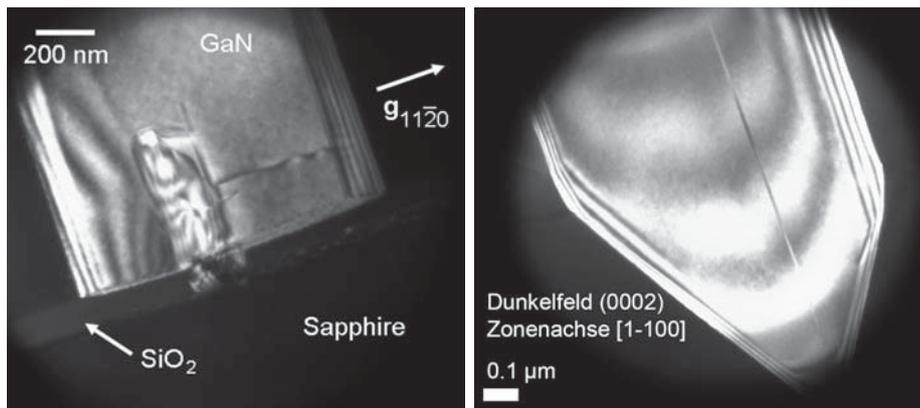


Abbildung 4.28.: Links: TEM-Dunkelfeldaufnahme des substratnahen Bereiches der Nanosäule entlang der Kristallrichtung $\langle 12\bar{2}0 \rangle$ [Bergbauer2010]. Mit zunehmendem Verlauf der Nanosäule nehmen die Defekte ab. Nach ca. 200 nm kann das Abbiegen einer Schraubenversetzung zur Oberfläche der Nanosäule senkrecht zur Substratoberfläche beobachtet werden. Rechts: TEM-Dunkelfeldaufnahme einer Schraubenversetzung, welche die komplette Nanosäule durchstößt. Die Wachstumsrichtung der Nanosäule war in diesem Fall von links oben nach rechts unten.

retische Potentialberechnungen und der daraus resultierende Kraftvektor für eine Schraubenversetzung in einer dünnen Säule mit dem Radius R geben einen Hinweis darauf, dass nur Schraubenversetzungen ab einem relativen Abstand

$$\xi_{max} = \left(1 - 2^{(-\frac{1}{2})}\right)^{\frac{1}{2}} \cdot R \approx 0,54 \cdot R \quad (4.11)$$

von der Säulenmitte zur Oberfläche abbiegen [Eshelby1953]. Das bedeutet, dass unabhängig vom Durchmesser auch bei sehr dünnen Säulen und einem ungünstigen Startpunkt der Schraubenversetzung nahe der Mitte der Säule diese die komplette Nanostruktur durchziehen kann, ohne vorzeitig an der unpolaren Oberfläche zu terminieren.

Neben den nur im TEM detektierbaren Versetzungen treten bei den epitaktisch gewachsenen Nanosäulen auch makroskopische Defekte auf. Beim Brechen einer verfüllten Probe werden im REM-Querschnitt durchtrennte Nanosäulen sichtbar (siehe Abbildung 4.29 links). Bei der Untersuchung dieser Querschnittsprobe zeigen sich oft in der Nanosäule eingebettete Hohlräume. Der Ursprung dieser Hohlräume ist stets innerhalb der Maskenöffnung zu finden. Der Durchmesser solcher Hohlräume variiert und kann wenige nm bis 100 nm betragen.

Die Präsenz von Inversionsdomänen (siehe Abbildung 4.19 rechts) und unvorteilhafter Kristallorientierungen durch eine Schädigung der Saphiroberfläche bei der Maskenöffnung (siehe Abbildung 4.27 rechts) sind höchstwahrscheinlich der Ursprung für diese nanoskaligen Einschlüsse.

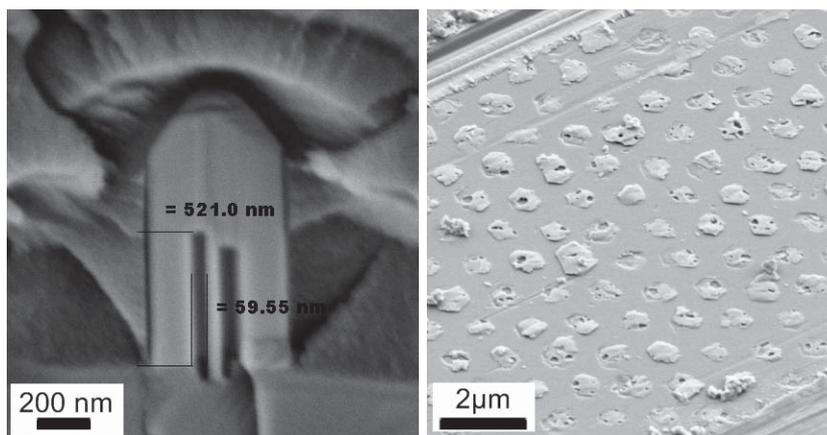


Abbildung 4.29.: Links: REM-Aufnahme eines Querschnitts einer verfüllten GaN-Nanosäule. Innerhalb der Säule befinden sich zwei Hohlräume, welche ihren Ursprung in der Maskenöffnung haben. Rechts: REM-Aufnahme des Substrates nach dem Entfernen der Nanosäulen durch einen Diamantritzer. Die Füllung der Löcher zeigt Fehlstellen auf, welche bei unzureichender Koaleszenz zu Hohlräumen führen können.

Das Auftreten derartiger Hohlräume (sog. Nanoröhren⁴) kann auch beim Wachstum von zweidimensionalen GaN-Schichten beobachtet werden [Qian1995, Cherns1997, Liliental1997, Vennegues1997b, Theije1998]. Lilienthal-Weber et al. ordneten die Entstehung ebenfalls einer veränderten Wachstumskinetik zu, resultierend aus einer Ansammlung von Verunreinigungen oder Inversionsdomänen. Die Entstehung von Nanoröhren durch Inversionsdomänen, die ihren Ursprung in der Nukleation des GaN auf dem Saphir haben, wurde auch von Cherns et al. vorgeschlagen.

Die Entstehung der Hohlräume durch Versetzungen, und hier in erster Linie durch Schraubenversetzungen, wird von Qian et al. und Vennegues et al. diskutiert. Laut einer Theorie von F. C. Frank können Nanoröhren durch das spirale Wachstum einer Schraubenversetzung mit sehr großem Burgers-Vektor entstehen [Frank1951]. Die Abmessungen der während dieser Arbeit beobachteten Hohlräume können allerdings mit Hilfe dieser Theorie nicht sinnvoll erklärt werden.

Die Tatsache der hohen Varianz des Durchmessers der Hohlräume in den auf der Produktionsanlage gewachsenen Nanosäulen unterstützt die Annahme einer rein durch Schraubenversetzungen induzierten Ursache ebenfalls nicht. Der Nukleationsprozess des GaN auf dem nitridierten Saphir in den Maskenöffnungen geschieht über dreidimensionale Inseln, die im Laufe der Abscheidung koaleszieren (siehe auch Abschnitt 2.3.4). Ein ähnliches Entste-

⁴Nanoröhren werden in der englischsprachigen Literatur oft als nanopipes, nanotubes oder hollow cores bezeichnet.

hen von Defekten konnte auch in mit MBE gewachsenen Proben beobachtet werden. Auch hier verbleiben bei einer nicht vollständig parallelen Ausrichtung der Nanosäulen Hohlräume nach dem Koaleszieren. Abbildung 4.29 rechts zeigt den Nukleationsbereich von entfernten Nanosäulen. Die im REM deutlich sichtbaren Fehlstellen unterstützen die Annahme eines Volmer-Weber Nukleationsprozesses. Da die Wachstumsbedingungen für die Nanosäulen naturgemäß auf Dreidimensionalität ausgelegt sind, ist der Koaleszenzprozess hier geschwächt. Berücksichtigt man die gleichen Mechanismen wie in Abschnitt 4.2.5 besprochen, bleiben die unpolaren Seitenflächen stabil und der Hohlraum bestehen. Da die Nanoröhre durch die umgebende Nanosäule von den Wachstumsmaterialien abgeschirmt ist, kann zusätzlich von einer nur sehr geringen lateralen Wachstumsrate ausgegangen werden und die Nanoröhre behält ihren konstanten Durchmesser.

Liliental-Weber et al. konnten in TEM-Aufnahmen die Elimination von Schraubenversetzungen an den Nanoröhren beobachten, ähnlich des Abbiegens der Defekte zur Nanosäulenoberfläche. Bei einem gezielten Einsatz solcher Einschlüsse wäre sogar eine zusätzliche Defektreduktion von Nanosäulen größeren Durchmessers denkbar.

4.3.2. Optische Eigenschaften und Nachweis von Verunreinigungen und Defekten

Die bisher gefundenen optimalen Einstellungen für das Wachstum der Nanosäulen befinden sich bei niedrigem Druck, möglichst kleinem V/III-Verhältnis, erhöhtem Wasserstofffluss in der Trägergas Mischung und bei hohen Temperaturen. Diese Parametereinstellungen für die Ausbildung von dreidimensionalen Nanosäulen können die Entstehung von Defekten verstärken. Insbesondere Kohlenstoff ist bei höheren Konzentrationen ($>5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) kritisch. Er wird in vielen Publikationen als ein Hauptgrund für die breite Defektlumineszenz im gelben Spektralbereich beschrieben. Des Weiteren wird eine Vielzahl von weiteren Defektbanden vom blauen bis zum roten Spektralbereich Kohlenstoff assoziierten Defektzentren zugeordnet [Reshchikov2005].

Kohlenstoff kann sowohl auf Ga- als auch auf N-Fehlstellen in die Kristallschicht eingebaut werden. Durch das extrem niedrige V/III-Verhältnis ist die Wahrscheinlichkeit für die Ausbildung von Stickstofffehlstellen und somit eine Wahrscheinlichkeit für den Einbau von Verunreinigungen sehr hoch. Koleske et al. untersuchten detailliert die Abhängigkeit des Kohlenstoffeinbaus von den Reaktoreinstellungen [Koleske2002]. Ein wesentliches Ergebnis dieser

Untersuchungen ist, dass Kohlenstoff vermehrt bei niedrigem Reaktordruck und kleinen Ammoniakflüssen eingebaut wird. Des Weiteren sind ein hoher TMGa- und Wasserstofffluss im Trägergas und relativ niedrige Wachstumstemperaturen dem Einbau von Kohlenstoff förderlich. Bis auf die Temperatur bewegen sich die in 4.2 vorgestellten Wachstumseinstellungen exakt in diesem Bereich, weshalb sich die in diesem Abschnitt vorgestellten Untersuchungen vorwiegend mit der möglichen Verunreinigung der Nanosäulen mit Kohlenstoff befassen.

Um diese Abhängigkeiten der Kohlenstoffkonzentration im GaN in dem hier verwendeten Reaktor zu überprüfen, wurden zunächst SIMS⁵- Analysen durchgeführt. Da SIMS an dreidimensionalen Mikro- und Nanostrukturen keine sinnvollen Ergebnisse liefert, wurden für die jeweiligen Parameter die dem Epitaxialaufbau beigelegten zweidimensionalen Templates zur Analyse verwendet. Diese bestätigen eine signifikante Zunahme von Kohlenstoff bei erhöhtem Wasserstoffgehalt im Trägergas. Bei den Standardwachstumsbedingungen (siehe Tabelle 4.3) resultierte eine Erhöhung des H_2/N_2 -Verhältnisses im Trägergas von 0, also reinem Stickstoff als Trägergas, auf 5 in einem Kohlenstoffanstieg von ca. $1,6 \text{ E}18 \text{ 1/cm}^3$ auf $2 \text{ E}19 \text{ 1/cm}^3$. Eine Änderung des V/III - Verhältnisses von 300 auf 85 bei einem Standardreaktordruck von 150 mbar zeigte hingegen nur leichte Änderungen im Kohlenstoffeinbau. Der Wert stieg hier von etwa $2,8 \text{ E}17 \text{ 1/cm}^3$ auf $4,1 \text{ E}17 \text{ 1/cm}^3$ und liegt somit eine Größenordnung unter den Werten bei einem niedrigeren Druck von 70 mbar. Eine Absenkung der Temperatur hingegen erhöht die detektierte Kohlenstoffkonzentration um mehrere Größenordnungen. Bei einer Wachstumstemperatur von $920 \text{ }^\circ\text{C}$ beträgt diese bis zu $6 \text{ E}20 \text{ 1/cm}^3$. Die beobachteten Messungen bestätigen die in der Literatur angegebenen Trends und deuten somit auf einen signifikanten Kohlenstoffeinbau in die Nanosäulen hin.

Der Vergleich von Raumtemperaturphotolumineszenzuntersuchungen an mittels MBE und MOVPE gewachsenen Nanosäulen zeigt signifikante Unterschiede (siehe Abbildung 4.30). Die analysierten MBE-Nanosäulen wurden an der Technischen Universität Madrid (UPM) in der Arbeitsgruppe von Professor Calleja gewachsen. Für die MOVPE Nanosäulen wurden beim Wachstum die Standardeinstellungen (siehe Tabelle 4.3 Seite 53) mit einer nominell leichten Si-Dotierung von $3 \text{ E}18 \text{ 1/cm}^3$ verwendet. Die für Defekte typische breite Emissionsbande im gelben Spektralbereich ist bei den MOVPE Nanosäulen von signifikanter Intensität und steht in engem Zusammenhang mit dem im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Kohlenstoffeinbau und diversen anderen Defekten [Lyons2010, Reshchikov2005]. Dahingegen zeigen die in

⁵SIMS steht für secondary ion mass spectrometry

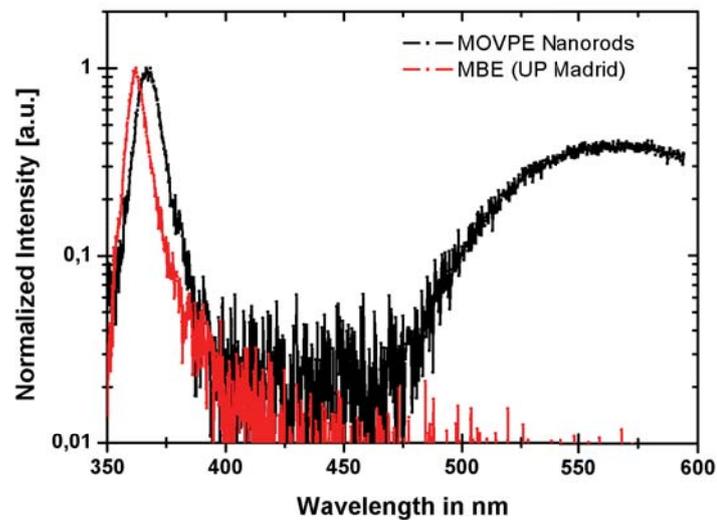


Abbildung 4.30.: Raumtemperaturphotolumineszenzspektren von Nanosäulen, in einer MBE und in einer MOVPE gewachsen. Die MBE-Nanosäulen sind frei von gelber Defektlumineszenz, während die Nanosäulen aus der MOVPE deutlich die für GaN typische breite Defektbande im gelben Spektralbereich zeigen.

der MBE gewachsenen Säulen keine Lumineszenz in diesem Spektralbereich. Ursachen hierfür sind der fehlende Kohlenstoff in der MBE und die im Vergleich zur MOVPE moderaten Wachstumsgeschwindigkeiten, welche eine bessere Materialqualität versprechen.

Die örtliche Zuordnung der gelben Lumineszenz kann mit Hilfe von Kathodolumineszenzmessungen vorgenommen werden. Abbildung 4.31 zeigt die Intensitätsverteilung der Kathodolumineszenzaufnahme einer einzelnen Nanosäule der gleichen Probe, die in Abbildung 4.30 für die PL-Messungen verwendet wurde. Besonders auffallend ist, dass die Emission nicht ho-

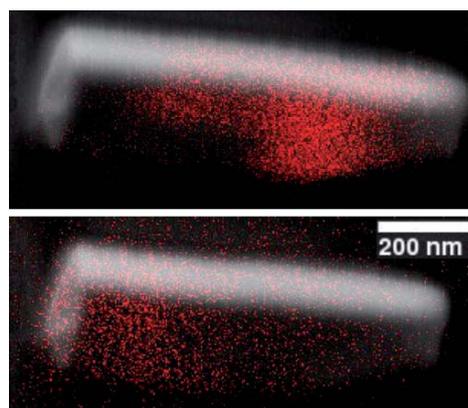


Abbildung 4.31.: Intensitätsverteilung einer Kathodolumineszenzaufnahme (in rot) einer GaN-Nanosäule bei 364 nm (oben) und 560 nm (unten) [Laehnemann2010]. Die Intensität der breiten Defektbande im gelben Spektralbereich konzentriert sich auf den substratnahen Bereich, während die Intensität der bandkantennahen GaN-Lumineszenz dem entgegengesetzt verteilt ist.

mogen über die gesamte Nanosäule verteilt ist. Die Defektbande weist insbesondere in der Nähe des Substrates eine höhere Intensität auf. Dies steht in guter Korrelation mit den TEM-Untersuchungen in Abschnitt 4.3.1, bei denen vor allem im nukleationsnahen Bereich der Nanosäule eine Erhöhung der Defektkonzentration detektiert wurde. Die örtliche Intensitätsverteilung der bandkantennahen Lumineszenz verhält sich genau konträr gegenüber der Defektlumineszenz, was eine steigende Materialqualität mit fortschreitendem Wachstum der GaN-Nanosäulen indiziert.

Zusammenfassung

Im ersten Abschnitt dieses Kapitels konnte gezeigt werden, dass Nanoimprint-Lithographie eine geeignete Methode ist, die Position der Nanosäulen im Bereich weniger Nanometer zu kontrollieren. Um den Einfluss der Verteilung der Nanosäulen auf das Wachstum untersuchen zu können, wurden verschiedene Stempeldesigns entworfen und untersucht. Im Vergleich zu bisher verwendeten Strukturierungsverfahren wie der E-Beam Lithographie [Kishino2009] oder der optischen Lithographie [Hersee2006] konnten so reproduzierbar kleinste Strukturgrößen auf großen Flächen evaluiert werden. Die Qualität der verwendeten Substrate und GaN-Templates und die Eigenschaften der Maske spielen hierbei eine tragende Rolle. Sowohl die Homogenität der Verteilung als auch die Materialqualität der Nanosäulen wird hiervon signifikant beeinflusst.

Erstmals wurde in diesem Kapitel ein Verfahren vorgestellt, das es erlaubt, in einer großvolumigen MOVPE-Produktionsanlage positionskontrolliert Nanosäulen zu wachsen. Im Gegensatz zu bisherigen Veröffentlichungen wurden kontinuierliche Flusseinstellungen verwendet, ein Pulsen der Gase [Hersee2006] oder die Verwendung eines Katalysators [Qian2004, Kuykendall2003] ist so nicht mehr notwendig. Dabei wurden wesentliche prozesstechnische Parameter zur Steuerung der morphologischen Eigenschaften bestimmt: Die Trägergaskomposition, die Wachstumszeit, die Temperatur, der Abstand zwischen den Maskenöffnungen und die Kristallorientierung. So besteht die Möglichkeit, mit steigendem Wasserstoffgehalt im Trägergasgemisch den Durchmesser der Nanosäulen zu senken und gleichzeitig die Höhe zu steigern. Dabei ändert sich der Oberflächenanteil der beteiligten Facetten signifikant und

die Dominanz verschiebt sich zu den unpolaren Seitenfacetten $\{10\bar{1}0\}$. Bei einem steigenden Abstand zwischen den Maskenöffnungen erhöht sich der Durchmesser der Nanosäulen. Dies kann einer lokalen Änderung des V/III-Verhältnisses zugeordnet werden, das sich aufgrund der Diffusion der Wachstumsmaterialien auf der Maskenoberfläche erhöht. Mit verlängerter Wachstumsdauer steigt die vertikale Abmessung der Nanosäule, während die laterale Wachstumsrate niedrig bleibt. So kann das Aspektverhältnis nochmals verbessert werden. Die Temperatur erwies sich als wesentlicher Einflussfaktor auf die Homogenität der Nanosäulen. Die Standardabweichung der Größenverteilung steigt über 1080 °C signifikant an. In Zusammenarbeit mit dem IHT der TU Braunschweig konnte zum ersten Mal die Kristallorientierung als wesentlicher Einflussparameter auf die Morphologie identifiziert werden [Bergbauer2010, Bergbauer2010b, SFLi2010, SFLi2010b]. Insbesondere das gezeigte Wachstum in $[000\bar{1}]$ -Richtung (N-polar) ermöglicht Nanosäulen mit hohem Aspektverhältnis. Die Verknüpfung der verschiedenen Auswertungen ergab, dass dies im Wesentlichen aus einer Manipulation der Wachstumsraten durch eine Wasserstoffpassivierung von verschiedenen Kristallfacetten resultiert [SFLi2010]. Die bei den Experimenten gewonnenen Erkenntnisse konnten dazu genutzt werden, ein grundlegendes Verständnis für die Wachstumsmechanismen von GaN-Nanosäulen in einer MOVPE zu generieren.

Die strukturelle Analyse der Nanosäulen zeigte den Zusammenhang von lateraler Wachstumsrate und der Präsenz von sempipolaren $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ und $\{10\bar{1}\bar{2}\}$ Facetten. TEM-Untersuchungen am PDI in Berlin konnten eine hohe Materialqualität der un- und semipolaren Oberflächen und eine Defektreduktion mit Wachstumsverlauf nachweisen. Die Terminierung von Schraubenversetzungen durch ein Abknicken zur Oberfläche konnte als Ursache der Defektreduktion identifiziert werden. Dies steht in guter Übereinstimmung mit bisherigen Ergebnissen von Hersee et al. and Colby et al, die äquivalente Beobachtungen machen konnten [Hersee2008, Colby2010]. Allerdings traten auch Schraubenversetzungen und Nanokavitäten auf, welche die gesamte Nanosäule vom Nukleationspunkt bis zur Spitze durchliefen. Insbesondere das Auftreten von Inversionsdomänen und die Koaleszenz von mehreren bei der Nukleation entstehenden Kristallite sind hierfür verantwortlich. Diese können durch eine Verbesserung der Maskenqualität und des Nukleationsprozesses deutlich reduziert werden. Untersuchungen zum Einbau von Verunreinigungen ergaben, dass durch die verwendeten Wachstumsparameter die Gefahr eines erhöhten Kohlenstoffeinbaus gegeben ist. Insbesondere das Auftreten der gelben Defektlumineszenzbande ist ein Hinweis hierfür. Das Auftreten

einer solchen Defektlumineszenzbande wurde auch beim gepulsten, sehr metallreichen, Wachstum von Hersee et al. beobachtet [Hersee2008]. KL-Messungen zeigten allerdings auch, dass mit Verlauf des Wachstums die gelbe Defektlumineszenz abnimmt und die Materialqualität zur Spitze der Nanosäule ansteigt.

Die nächsten Schritte, eine optisch aktive InGaN-Schicht in die Nanosäulen zu integrieren und n- sowie p-Leitfähigkeit durch Dotierung zu erreichen, werden im folgenden Kapitel 5 behandelt.

Kapitel 5.

Die Epitaxie von NanoLEDs

Mit der Kontrolle der Geometrie der Nanostrukturen, wie in Kapitel 4 beschrieben, ist erst eine Teilstrecke auf dem Weg zu einer NanoLED zurückgelegt. Der kontrollierte Einbau von Indium und die n- sowie p-Dotierung sind die nächsten Schritte zum elektrisch betriebenen Bauteil.

Der Einbau von Indium in Abhängigkeit der verschiedenen Facetten ist bei geordneten Nanosäulen bis jetzt noch nicht ausreichend untersucht (siehe Abschnitt 3.2). Photolumineszenz-(PL), Kathodolumineszenz-(KL) und Transmissionselektronenmikroskop-(TEM) Messungen geben einen Aufschluss über die Verteilung des Indiums und lassen somit Rückschlüsse auf dominierende Einbaumechanismen zu (siehe Abschnitt 5.1). Die KL- und TEM-Untersuchungen wurden am PDI¹ in Berlin durchgeführt. Im Teil 5.2 dieses Kapitels wird der Einfluss der Zugabe von Dotierstoffen auf das Wachstum der Nanosäulen und der Nachweis des erfolgreichen Einbaus des Dotierstoffes behandelt.

5.1. Einbau von Indium: Ternäre Verbindungen für die aktive Zone

Wie in Kapitel 3 bereits beschrieben, unterscheidet sich der Einbaumechanismus zwischen MBE und MOVPE und von Reaktortyp zu Reaktortyp deutlich. Aufgrund dessen wird in diesem Abschnitt ein besonderes Augenmerk auf die Untersuchung des Einbaus von Indium in Nanostrukturen in einer großvolumigen MOVPE Produktionsanlage gelegt. Photolumineszenzmessungen liefern schnell allgemeine Informationen über die optische Qualität und die ungefähre Indiumkonzentration. Sie können jedoch nur Charakteristika eines

¹Die auf den nächsten Seiten diskutierten KL-Aufnahmen wurden von Herrn J. Lähnemann, die TEM-Aufnahmen von Frau Dr. C. Roder am PDI in Berlin durchgeführt.

Nanosäulen-Ensembles wiedergeben. Kathodolumineszenzmessungen geben darüber hinaus einen Eindruck über die räumliche Verteilung der Emissionswellenlänge. Eine deutlich genauere Analyse der örtlichen Verteilung des InGaN in den Nanostrukturen ermöglichen TEM-Untersuchungen. Die in den folgenden Abschnitten untersuchten Proben sind in Tabelle 5.1 aufgelistet. Auf spezielle Probendetails wird bei Bedarf nochmals direkt bei der jeweiligen Analysemethode eingegangen. Die Quantenfilme wurden bei Temperaturen zwischen 700 °C und 750 °C mit TEGa und TMIn gewachsen (siehe Tabelle 2.2 Seite 28).

Tabelle 5.1.: Auflistung der Proben für die elektrooptischen und strukturellen Untersuchungen des Indiumeinbaus in GaN-Nanostrukturen. Das angegebene V/III-Verhältnis ist nur für die Dauer des Nanosäulenwachstums gültig. Die Quantenfilme sowie die p-Seite wurden mit konventionellen Wachstumseinstellungen gewachsen. Die aufgeführten QW-Temperaturen beziehen sich relativ auf den Referenzpunkt bei 700 °C. Die Angabe der Dicke der Abdeckschicht (Cap) und der p-GaN Schicht entspricht der äquivalenten Dicke bei zweidimensionalem Wachstum.

Probe	Template	# QW	T QW	Cap	p-GaN
NAE_01752	Saphir (N-polar)	5	+20 °C	–	95 nm
NAE_02633	GaN auf Saphir (Ga-polar)	6	+5 °C	50 nm	–
NAE_02732	GaN auf Saphir (Ga-polar)	1	+10 °C	5 nm	–
NAE_02733	GaN auf Saphir (Ga-polar)	5	+10 °C	–	600 nm
NAE_03166	GaN auf Saphir (Ga-polar)	3	+10 °C	20 nm	–

5.1.1. Optische Eigenschaften

Für die Untersuchung des Einbaus von aktiven InGaN/GaN-Quantentrogstrukturen in N-polaren Nanosäulen wurde die Probe NAE_01752 gewachsen. Die Nanosäulen wurden bei einem H_2/N_2 -Verhältnis von 2 mit einer moderaten n-Dotierung von nominell $3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ epitaxiert. Sie enthalten einen 5-fachen MQW und werden mit einer p-Schicht abgeschlossen, deren Dicke beim konventionellen Wachstum auf zweidimensionalen Schichten etwa 95 nm betragen würde. Die Wachstumseinstellungen für die Quantenfilme bzw. -barrieren würden im zweidimensionalen Fall eine Quantenwelldicke von 6 nm und eine Barrierendicke von 14 nm ergeben.

Um die räumliche Verteilung des Indiumeinbaus untersuchen zu können, wurden an dieser Probe KL-Messungen durchgeführt. Dazu wurde die Probe gebrochen und an den Bruchkanten die gemessene Emission der örtlichen Position der Elektronenstrahlanregung zugeordnet. Die Messungen wurden in einem Feldemissions-REM bei Raumtemperatur und einer Beschleunigungsspannung von 2 kV durchgeführt.

Das Spektrum der KL-Messung ist in Abbildung 5.1 links im Vergleich mit dem PL-Spektrum bei Raumtemperatur dargestellt. Die Spektren zeigen jeweils die Emission eines gesamten Nanosäulen-Ensembles, wenn auch bei der PL-Messung für eine wesentlich größere Anzahl als bei der KL-Messung. Aufgrund der geringen Beschleunigungsspannung kann davon ausgegangen werden, dass der Ursprung der Emission des KL-Signals nahe der Oberfläche liegt. Da die Anregungstiefe der PL-Messung wesentlich größer ist, zeigt das PL-Signal eine wesentlich stärkere Intensität der bandkantennahen Lumineszenz bei etwa 3,4 eV und der breiten gelben Defektlumineszenz mit dem Zentrum bei 2,2 eV.

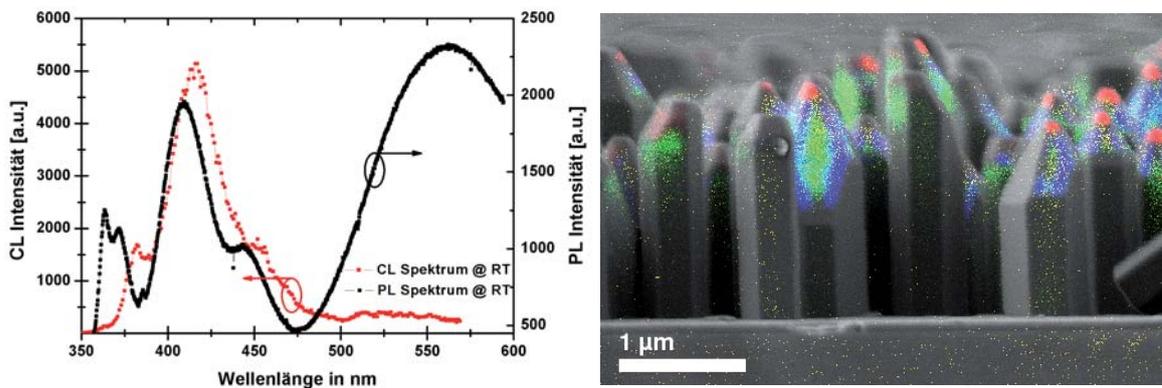


Abbildung 5.1.: Links: PL- und KL-Spektrum der N-polaren Probe NAE_01752. Rechts: Örtliche Verteilung der Intensität für verschiedene Wellenlängen in Falschfarbendarstellung [Bergbauer2010]. Die örtliche Verteilung der Emission für die Wellenlängen 384 nm (grün) und 414 nm (blau) ist den semipolaren, pyramidalen $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ Flächen zuzuordnen. Die längerwellige Emission bei 455 nm (rot) steht in klarer Beziehung zu der polaren Fläche auf der Spitze der Nanosäulen.

In Abbildung 5.1 rechts ist eine REM-Aufnahme der Nanosäulen mit einer monochromatischen Intensitätsverteilung für verschiedene Emissionswellenlängen in Falschfarbendarstellung überlagert. Drei verschiedene Hauptemissionsenergien können identifiziert werden, wobei die Intensitätsverteilung der höherenergetischen Emission bei 3,0 eV und 3,2 eV eindeutig den Quantenfilmen auf den semipolaren $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ und $\{10\bar{1}\bar{2}\}$ Ebenen zuzuordnen ist. Die Emission bei 3,2 eV ist dabei im Zentrum der Ebene zu finden, während die längerwellige Emission bei 3,0 eV an den Kanten zwischen zwei Facetten auftritt. Die polare $\{000\bar{1}\}$ Spitze der Nanosäulen zeigt die niederenergetischste Emission bei 2,7 eV.

Die Emissionsenergie hängt insbesondere von drei Parametern ab: Neben dem Indiumgehalt in der aktiven Schicht spielt bei polaren Quantenfilmen die Dicke aufgrund des Quantum Confined Stark Effekts (siehe Abschnitt 2.1.3) eine wesentliche Rolle. Zusätzlich ist die Orientierung der Wachstumsfacette zu beachten. So würde sich beim Wechsel von einer polaren auf

eine semi- oder unpolare Ebene bei gleichbleibender Dicke der Quantenfilme und bei unverändertem Indiumgehalt eine Blauverschiebung einstellen. Diese resultiert aus einer verringerten Verkipfung der Energiebänder in den Quantenfilmen durch das reduzierte piezoelektrische Feld in Wachstumsrichtung. Eine ausführliche Beschreibung des Einflusses der piezoelektrischen Felder auf die Emission einer Einfachquantenwellstruktur ist in Anhang A.2 gegeben. Bertram et al. schließen aus der Verteilung der KL-Intensität und Wellenlängenverteilung auf pyramidalen Strukturen ebenfalls auf einen erhöhten Einbau von Indium und/oder eine erhöhte Wachstumsrate an den Kanten der Pyramiden [Bertram2010]. Die Wachstumsrate von Quantenfilmen ist auf semipolaren Flächen gegenüber der auf polaren reduziert. Die damit verbundene Wellenlängenverteilung in Abhängigkeit von der Facette wurde bereits mehrfach detailliert vorgestellt [Fuendling2009, Wunderer2010]. Weiterführende TEM-Untersuchungen (im Abschnitt 5.1.2 beschrieben) ermöglichen, die Indiumkonzentration abzuschätzen.

Kathodolumineszenzuntersuchungen an der Ga-polaren Probe NAE_02633 bestätigen die Emission an verschiedenen Facetten. Bei dieser Probe wurden die Nanostrukturen auf einer mit dem MII-Design strukturierten GaN-Zwischenschicht gewachsen. Da hier, wie bereits beschrieben, die Homogenität der Strukturierung aufgrund der für GaN typischen Morphologie gestört ist, bieten Kathodolumineszenzmessungen eine ausgezeichnete Möglichkeit die Spektren kleinerer, homogener Bereiche zu untersuchen. Abbildung 5.2 a) zeigt eine REM-Aufnahme der untersuchten Strukturen in der Draufsicht. Die semipolaren, pyramidalen $\{10\bar{1}1\}$ Flächen dominieren die Oberfläche, die Höhe der unpolaren Seitenflächen unterliegt einer starken Schwankung und beträgt im Maximalfall etwa 600 nm (siehe auch Abbildung 5.6 Seite 101). Die Intensitätsverteilung des Kathodolumineszenzsignals für verschiedene Wellenlängen ist in den Teilabbildungen b) bis f) dargestellt. Besonders auffällig sind die Verteilungen der Emissionsintensitäten bei 400 nm, 450 nm und 500 nm. Während bei 450 nm die Emission homogen über die gesamten semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ Ebenen verteilt ist, konzentriert sie sich bei 500 nm auf die Spitze der Nanostrukturen. Hier kann, wie in den zuvor betrachteten Strukturen, ein vermehrter Indiumeinbau an der Spitze bzw. die Rotverschiebung der Emission aufgrund der stärkeren piezoelektrischen Felder auf der polaren Fläche als Grund für die niedrigere Emissionsenergie angenommen werden. Besonders interessant ist die Beschränkung der Lumineszenz bei 400 nm auf die Randgebiete der hexagonalen Grundform. Dies ist ein erster Hinweis dafür, dass diese Emission von den unpolaren Seitenflächen stammt. Bei TEM-Aufnahmen an der gleichen Probe konnten homogene InGaN/GaN-Quantenfilme auf der unpolaren Seitenfläche nachgewiesen werden (siehe auch Abschnitt 5.1.2).

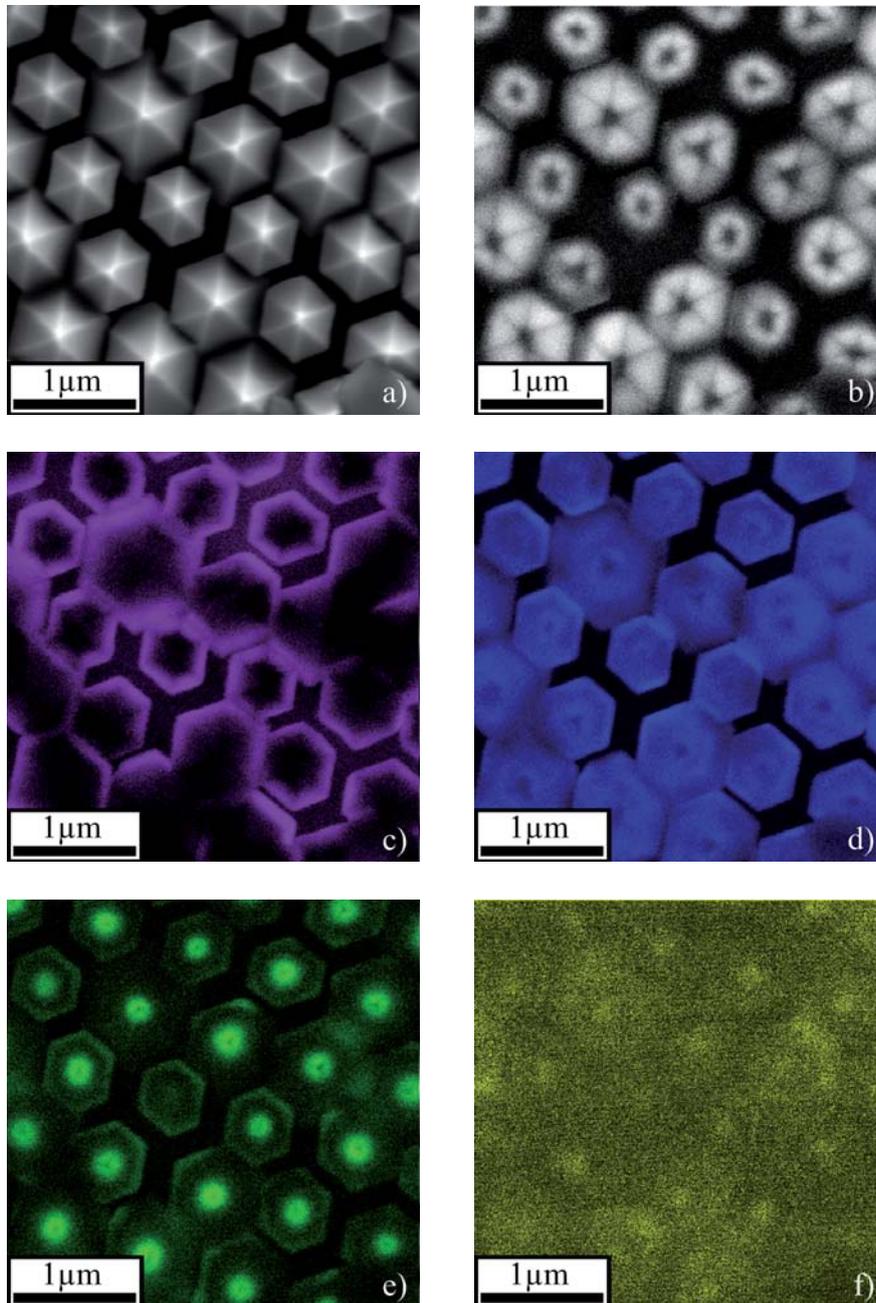


Abbildung 5.2.: REM-Aufnahme a) und KL-Intensitätsverteilung der Ga-polaren Probe NAE_02633 in Falschfarbendarstellung für b) 364 nm c) 400 nm d) 450 nm e) 500 nm und f) 550 nm [Laehnemann2010].

Die Quantenfilme umschließen also die komplette Nanostruktur. Somit ist erstmals demonstriert worden, dass das Wachstum von Core-Shell Strukturen auf positionskontrollierten Nanosäulen in der MOVPE möglich ist. Die gelbe Defektlumineszenz ist über dem gesamten untersuchten Bereich homogen verteilt. Das steht in deutlichem Kontrast zu den auf Saphir gewachsenen Nanosäulen. Da hier ein Großteil dieser breiten Bande aus dem GaN-Buffer des GaN-Templates stammt, ist diese auch zwischen den Nanosäulen zu detektieren.

Betrachtet man die Kathodolumineszenzspektren einzelner Nanosäulen in direkter Nachbarschaft, unterscheiden sich diese in ihren Charakteristika im blaugrünen Spektralbereich signifikant (siehe Abbildung 5.3 links). Die dominante Emissionswellenlänge ist dabei nicht

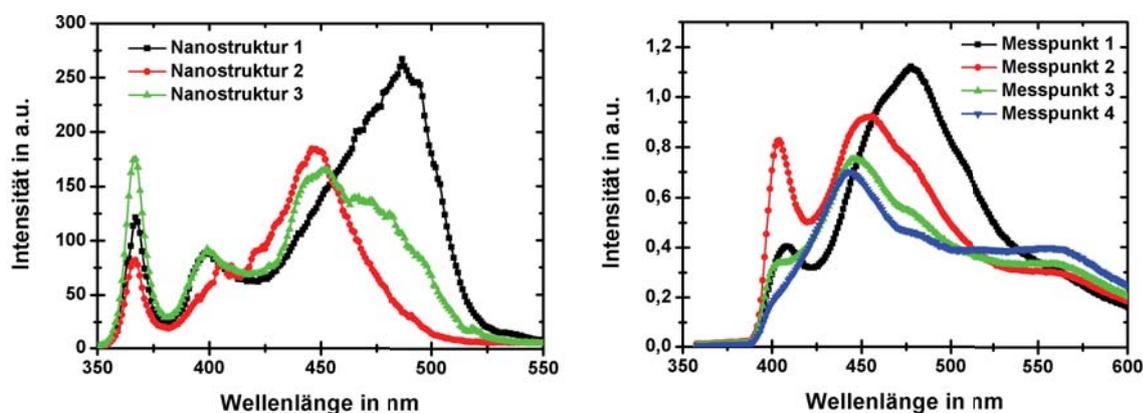


Abbildung 5.3.: Links: Kathodolumineszenzspektren einzelner Nanostrukturen mit einem Durchmesser von 650 nm, 600 nm und 520 nm (respektive Nanostruktur 1, 2 und 3) [Laehmann2010]. Rechts: PL-Spektren bei verschiedenen Abständen zum Zentrum des Wafers. Die Wellenlänge zeigt mit steigendem Abstand der Nanostrukturen eine Rotverschiebung. Die Emissionswellenlänge des Anregungslasers des PL-Mappers liegt bei 375 nm. Durch den Kantenfilter wird die Emission unterhalb von 390 nm abgeschnitten.

vom Durchmesser der Nanostrukturen abhängig, sondern von der jeweils am stärksten emittierenden Facette. Die Emission der unpolaren Seitenfacette bei 400 nm bleibt relativ konstant, während die Intensität der semipolaren und polaren Emission stark variiert. Das PL-Spektrum weist im Vergleich dazu aufgrund des makroskopischen Anregungsspots eine dementsprechend breite Verteilung der Emission auf (siehe Abbildung 5.3 rechts). Die Spektren wurden mit einem PL-Mapper mit einer Anregungswellenlänge von 375 nm aufgenommen. Aufgrund des Kantenfilters werden hier die Spektren unter 390 nm abgeschnitten. Die Emission der unpolaren Seitenflächen bei etwa 400 nm ist jedoch noch gut zu erkennen. Die Hauptemissionswellenlänge resultiert aus den Quantenfilmen auf den polaren und

semipolaren Facetten der Nanosäulenensembles und schiebt mit steigendem Abstand der Strukturen im Mittel signifikant von ca. 440 nm in der Nähe der Wafermitte auf 480 nm im äußeren Bereich der Scheibe.

Bei einer genaueren Untersuchung der Wellenlängenverteilung als Funktion des Abstandes der Nanostrukturen kann beim MII-Design (siehe Abbildung 4.3, Seite 49) ein nahezu radialsymmetrischer Verlauf festgestellt werden. Abbildung 5.4 zeigt den Verlauf in zwei- und in dreidimensionaler Darstellung. Die Hauptemissionswellenlänge steigt von etwa 425 nm bei einem Abstand der Nanosäulen von 200 nm nahe der Wafermitte auf über 490 nm bei einem Abstand von 1600 nm nahe des Waferrandes. In der Mitte und am äußeren Rand des Wafers dominiert die gelbe Defektbande der parasitären GaN-Nukleationen auf der Wachstumsmaske.

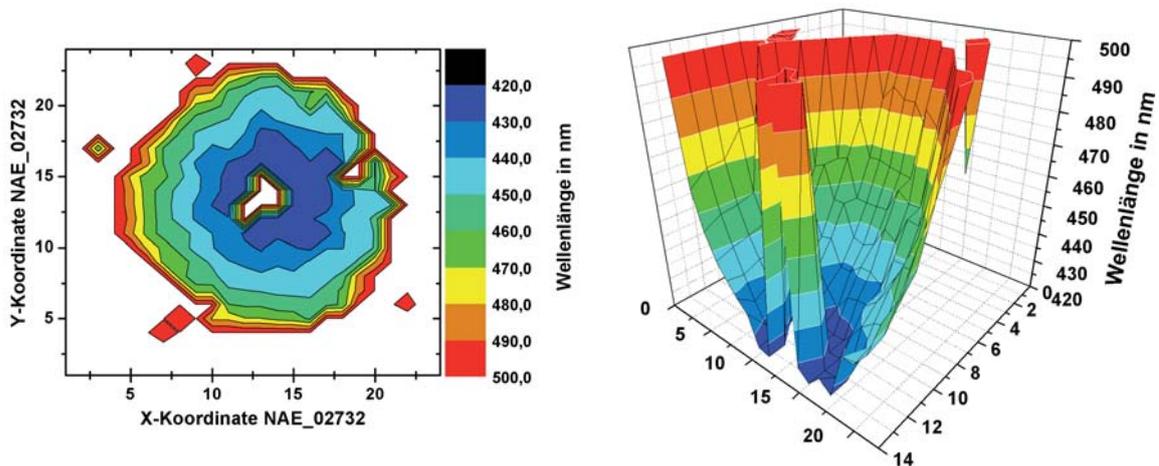


Abbildung 5.4.: Links: Die örtliche Verteilung der Hauptemissionswellenlänge. Der radialsymmetrische Verlauf ist ein Hinweis auf einen erhöhten Indiumeinbau. Im Zentrum ohne Strukturierung dominiert die gelbe Defektlumineszenz der parasitären Nukleationen. Rechts: Dreidimensionale Darstellung der Wellenlängenverteilung.

Aufgrund des Reaktordesigns ist es unwahrscheinlich, dass eine solche Wellenlängenverteilung aus der Gasverteilung über dem Wafer resultiert. Auch ein Temperaturunterschied auf der Oberfläche, verursacht durch einen unterschiedlichen Abstand des Substrates zum Carrier aufgrund der verspannungsinduzierten Durchbiegung des GaN auf Saphir-Templates, kann bei dieser Größenordnung des Wellenlängengangs als Ursache praktisch ausgeschlossen werden.

Die Menge an eingebautem Indium steigt bei konstanter Temperatur mit steigender Wachstumsrate der InGaN-Schicht an [Keller1996]. Da die laterale Wachstumsrate bei größeren

Abständen der Nanosäulen erhöht ist (siehe Abschnitt 4.2.1), kann der dadurch bedingte höhere Einbau von Indium zu einer Zunahme der Wellenlänge führen [Ambacher1998]. Der dominante Anteil der Rotverschiebung resultiert allerdings aus der Bandverbiegung aufgrund der piezoelektrischen Felder. Durch die erhöhte Wachstumsrate nimmt die Dicke der Quantenfilme zu. Bei den polaren Facetten resultiert dies in einer signifikanten Rotverschiebung der Emissionswellenlänge (siehe auch Abschnitt 2.1.3 und Anhang A.2). Die strukturellen Untersuchungen im folgenden Abschnitt 5.1.2 ermöglichen einen tieferen Einblick in die Eigenschaften der Quantenfilme.

Eine andere Hypothese für die Rotverschiebung wäre eine verstärkte Diffusion von Indium auf der Maskenoberfläche zu den Nanosäulen. Allerdings ist die Desorptionsrate von In auf der Oberfläche im Vergleich zu Ga relativ hoch. Zusätzlich verringert die Anwesenheit von Wasserstoff im Trägergasgemisch den Einbau von Indium [Piner1996, Northrup2009]. Weiterhin ist bei den gegebenen Wachstumstemperaturen eine Steigerung der Emissionswellenlänge durch die Erhöhung des molaren Anteils von In zu Ga nur in einem sehr engen Rahmen möglich. Beides spricht nicht dafür, dass eine vermehrte Diffusion von Indium zu den Nanosäulen die Ursache der Wellenlängenverschiebung ist.

5.1.2. Strukturelle Eigenschaften

Die vorangegangenen Kathodolumineszenzmessungen aus Abschnitt 5.1.1 lassen bereits auf ein Core-Shell Wachstum der InGaN-Quantenfilme auf den verschiedenen Kristallfacetten schließen. Eine weiterführende detaillierte Untersuchung der räumlichen Verteilung des Indiumeinbaus ist mit Hilfe von TEM-Aufnahmen möglich.

Abbildung 5.5 zeigt die Dunkelfeldaufnahme der Probe NAE_01752 (siehe Tabelle 5.1) [Bergbauer2010]. Etwa 50 nm tief in der Nanosäule vergraben sind die fünf InGaN-Quantenfilme sowohl auf der polaren c-Fläche als auch auf der semipolaren Seitenfacette sichtbar. Der starke, periodische Kontrastunterschied am äußersten Rand der Nanosäule resultiert aus Schichtdickeninterferenzen und ist nicht mit unterschiedlichen Materialkompositionen zu verwechseln. Schraubenversetzungen, die den gesamten Kern der Nanosäule über der Maskenöffnung durchziehen, beeinträchtigen die Qualität der polaren Quantenfilme. Die aktiven InGaN-Schichten auf den semipolaren Seitenfacetten, welche mit dem lateralen Überwachsen der Nanosäulen über die Maskenöffnungen hinaus in Verbindung stehen, sind hingegen

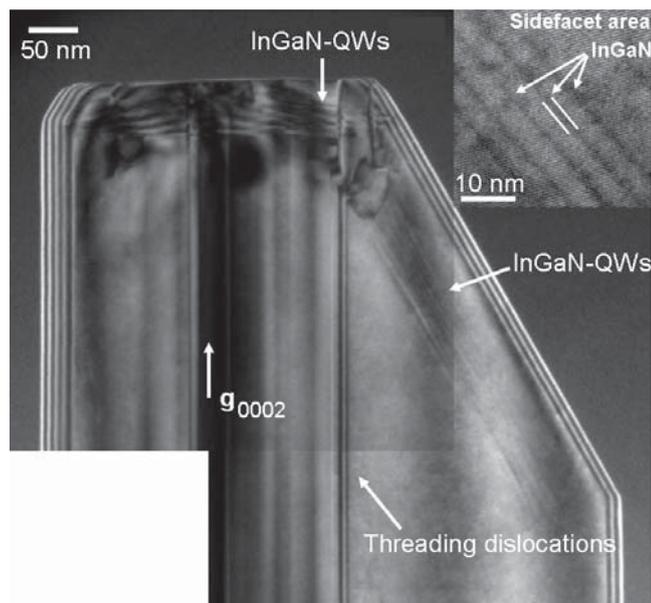


Abbildung 5.5.: TEM-Dunkelfeldaufnahme der Probe NAE_01752 [Bergbauer2010]. Der 5-fache MQW ist sowohl auf der polaren Spitze der Nanosäule als auch auf den semipolaren Seitenfacetten deutlich zu erkennen. Die Qualität der Quantenfilme auf der c-Ebene ist durch Schraubenversetzungen, welche die komplette Nanosäule durchziehen, beeinträchtigt. Der Kontrastunterschied am Rand der Säule resultiert aus Schichtdickeninterferenzen. Die HRTEM-Aufnahme der Quantenfilme auf der semipolaren Seitenfacette ermöglicht, das Übergitter der Quantenfilme zu bestimmen.

frei von Schraubenversetzungen und daher von kristallin sehr hoher Qualität (siehe auch Abschnitt 4.3.1).

Durch hochauflösende HRTEM-Aufnahmen des InGaN/GaN-Übergitters auf der semipolaren Seitenfläche kann die Dicke der Schichten abgeschätzt werden. Diese beträgt im Mittel für den InGaN-Quantenfilm $1,6 (\pm 0,4)$ nm. Die Barrierendicke beträgt $3 (\pm 0,4)$ nm. Die Höhe der Indiumkonzentration kann so mit Hilfe der in Abschnitt 5.1.1 bestimmten dominanten Emissionswellenlänge von 384 nm durch den Vergleich mit Simulationsergebnissen auf etwa 10 % abgeschätzt werden. Die Quantenfilme auf der polaren Facette weisen eine Dicke von etwa 2 nm auf, was bei einer Emissionswellenlänge von 455 nm einer Indiumkonzentration von ca. 20 % entspricht. Dieser Unterschied im Indiumgehalt zwischen polarer und semipolarer Facette steht im Kontrast zu den Beobachtungen von Wunderer et al. auf Ga-polaren Proben [Wunderer2010]. Dort wurde zwar ebenfalls eine geringere Wachstumsrate auf den pyramidalen Facetten ermittelt, allerdings konnte hier eine erhöhte Einbaurrate von Indium auf den semipolaren Facetten gegenüber der polaren Ebene beobachtet werden. Der Einbau von Indium auf den Ga- bzw. N-polaren pyramidalen Facetten ist aufgrund der unterschiedlichen Oberflächeneigenschaften somit nicht ohne weiteres vergleichbar.

Die Dicke der p-Schicht, welche sich äquivalent der Quantenfilme wie ein Mantel über die Nanosäule zieht, beträgt etwa 30 – 40 nm. Dies ist in Einklang mit den Quantenfilmdicken und ein Hinweis auf eine im Vergleich zum zweidimensionalen Wachstum reduzierte Wachstumsrate der Mantelschichten auf den Nanostrukturen. Mit Hilfe der Formel 1.1 auf Seite 8 kann das Oberflächenverhältnis zwischen dem drei- und zweidimensionalen Wachstum abgeschätzt werden. Bei einem Aspektverhältnis von etwa 5, einem Füllfaktor von 10% bei einem Pitch von 650 nm und einem Säulendurchmesser von 220 nm zeigt sich eine Verdoppelung der Oberfläche der Nanosäulen gegenüber einer zweidimensionalen Schicht. Nimmt man zusätzlich in erster Näherung eine vergleichbare Wachstumsrate der p-dotierten GaN-Schicht an den verschiedenen Kristallfacetten an, kann die Reduzierung der nominell 95 nm dicken p-GaN Schicht auf 40 nm über die verdoppelte Fläche erklärt werden.

Neben den direkt auf vorstrukturiertem Saphir gewachsenen Nanostrukturen wurden parallel auch Proben auf GaN-Templates strukturell im TEM analysiert. Die bereits mit Kathodolumineszenzaufnahmen untersuchte Probe NAE_02633 bietet die ausgezeichnete Möglichkeit, Erkenntnisse über den Einbau von Indium auf verschiedenen Facetten zu gewinnen. Die KL-Untersuchungen in Abbildung 5.2 deuteten bereits auf eine Emission von Quantenfilmen auf den unpolaren Seitenfacetten hin. Das Wachstum des 6-fachen InGaN/GaN-MQWs auf diesen unpolaren Seitenflächen - und somit ein Core-Shell-Wachstum - kann eindeutig in den TEM-Untersuchungen bestätigt werden (siehe Abbildung 5.6 a) und b)).

Die Quantenfilme auf der unpolaren Facette zeigen, wie bereits bei der Probe NAE_01752 beobachtet, keine Schädigung aufgrund von Schraubenversetzungen. Im Vergleich zu den direkt auf Saphir gewachsenen Nanosäulen ist auch der GaN-Kern über der Maskenöffnung wesentlich defektärmer. Dies liegt in der verspannungsfreien Homoepitaxie auf der GaN-Zwischenschicht begründet (vergleiche auch Abschnitt 4.3.1).

Tabelle 5.2.: Abschätzung der Quantenfilm- und Barrierendicken für die Probe NAE_02633 in Abbildung 5.6. Die Dicke der Quantenfilme (QW) sowie auch der Barrieren (QB) nimmt nach außen ab.

#QW	Dicke in nm	#QB	Dicke in nm
1	5,0	A	14,6
2	5,5	B	14,8
3	5,5	C	17,0
4	6,1	D	17,0
5	6,8	E	17,1
6	6,6		

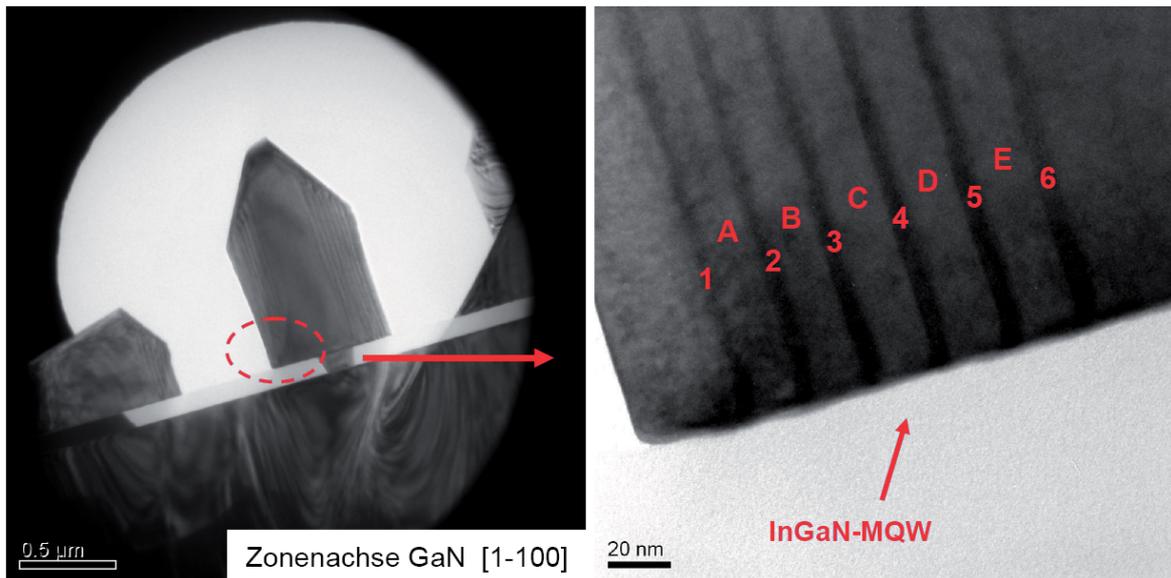


Abbildung 5.6.: TEM-Aufnahme einer Nanosäule auf GaN-Template der Probe NAE_02633 (links) mit der Vergrößerung des substratnahen Bereiches der unpolaren Seitenfläche (rechts) [Roder2010]. Der 6-fache MQW und eine dünne, undotierte Deckschicht über den Quantenfilmen sind deutlich zu erkennen.

Eine Abschätzung der Quantenfilm- und Barrierendicken ist in Tabelle 5.2 aufgeführt. Diese nehmen mit Abstand zum Zentrum der Nanosäulen ab. Eine weitere Änderung der Abmessungen der Quantenfilme und der Barrieren findet über dem vertikalen Abstand zum Wachstumssubstrat statt. Im oberen Teil der Nanosäule trennen sich die Quantenfilme räumlich weiter voneinander. Die Barrieren werden dementsprechend dicker. Die InGaN-Schichten auf den semipolaren Ebenen sind im Vergleich zu den unpolaren Quantenfilmen signifikant dünner. Eine zuverlässige Bestimmung der Dicken kann allerdings bei dieser Aufnahme nicht getroffen werden. Durch das Präparieren der TEM-Lamelle können die un- und semipolaren Flächen schräg angeschnitten sein, was abhängig vom Winkel zu einer vermeintlichen Vergrößerung des InGaN/GaN-Übergitters führt. Die undotierte Abdeckschicht, welche mit den gleichen Wachstumseinstellungen wie die Barriere gewachsen wurde, ist in etwa 30 nm dick.

Abbildung 5.7 links illustriert in einer TEM-Übersichtsaufnahme an der 3xMQW-Struktur der Probe NAE_03166 die statistisch am häufigsten auftretenden Facetten beim Wachstum auf einer GaN-Zwischenschicht. Neben der unpolaren $\{10\bar{1}0\}$ Ebene treten die beiden semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ und $\{10\bar{1}2\}$ Ebenen vermehrt auf. Die Quantenfilme, als dunkler Kontrast nahe der Oberfläche zu erkennen, ziehen sich wie ein Mantel über die komplette Nanostruktur. Der Vergleich zwischen den Quantenfilmdicken auf den beiden semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ und $\{10\bar{1}2\}$

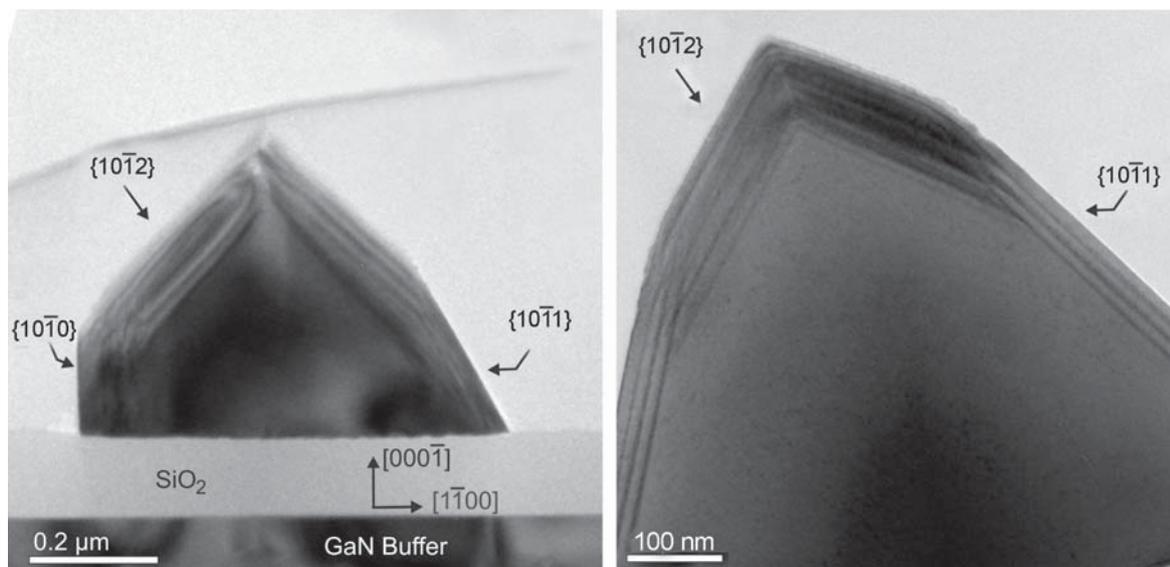


Abbildung 5.7.: Links: Die TEM-Aufnahme zeigt den Verlauf der Quantenfilme an einer Nanostruktur mit verschiedenen Facetten [Roder2010]. Diese ziehen sich wie ein Mantel um den gesamten GaN-Kristall. Rechts: Die Dicke der InGaN-Schichten auf den beiden semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ und $\{10\bar{1}2\}$ Orientierungen sind sehr vergleichbar. Sowohl die Wachstumsrate als auch der Indiumeinbau variieren nur in geringem Maße.

Ebenen im TEM verdeutlicht, dass die Wachstumsraten der InGaN-Schichten auf den beiden Orientierungen sehr vergleichbar sind (siehe Abbildung 5.7 rechts). Zusätzlich lässt sich abschätzen, dass die Indiumzusammensetzung entlang eines einzelnen Quantenfilmes kaum variiert und auch die Dicke nur marginal schwankt. Die Dicke der GaN-Barrieren ist jedoch auf der $\{10\bar{1}2\}$ Facette leicht höher. Untersuchungen an mehreren Nanostrukturen zeigten nur geringe Abweichungen und bestätigen dieses Ergebnis.

Der direkte Vergleich von Quantenfilmen auf unpolaren und semipolaren Ebenen offenbart jedoch deutliche Dickenunterschiede. Hochauflösende TEM-Untersuchungen ermöglichen die Bestimmung der Dicke für beide Orientierungen (siehe Abbildung 5.8 links und rechts). In Tabelle 5.3 sind die bestimmten Dicken für die Quantenfilme, Barrieren und die GaN-Abdeckschicht aufgeführt. Die angegebenen Werte resultieren aus einer Mittelung der Dicke entlang jeweils eines einzelnen Quantenfilmes und über verschiedene Nanostrukturen hinweg und sind somit aussagekräftig. Das InGaN/GaN-Übergitter auf den pyramidalen Facetten ist verglichen mit dem auf der unpolaren Ebene signifikant um den Faktor 3,5 reduziert. Dies gilt auch für die Dicke der GaN-Abdeckschicht.

Die Indiumkonzentration in den Quantenfilmen auf den beiden Facetten kann mit Hilfe von Elektronenenergieverlustspektroskopie (EELS²) abgeschätzt werden. Dazu wurden die

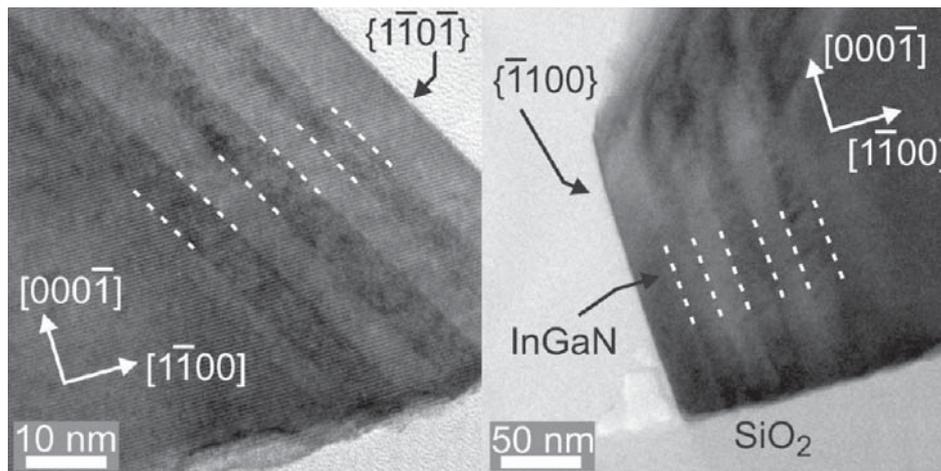


Abbildung 5.8.: Links: Hochauflösende TEM-Aufnahme der Quantenfilme auf einer semipolaren Seitenfacette der Probe NAE_03166 [Roder2010]. Die Quantenfilmdicken sind sehr homogen und zeigen im Verlauf nur geringe Schwankungen. Rechts: Aufnahme von Quantenfilmen auf einer unpolaren Seitenfläche bei der gleichen Probe. Die InGaN-Schichten sind im Vergleich zu den semipolaren Flächen deutlich dicker.

Tabelle 5.3.: Abschätzung der Quantenfilm-, Barrieren-, und Abdeckschichtdicken für die im TEM analysierte Nanostruktur auf der Probe NAE_03166 in Abbildung 5.8. Die Abmessungen entsprechen den durchschnittlichen Dicken entlang eines einzelnen Quantenfilmes sowie einer Mittelung über mehrere Nanostrukturen.

Orientierung	Dicke in nm	
	{10 $\bar{1}1$ }	{10 $\bar{1}0$ }
InGaN QW	$5,8 \pm 1,2$	$19,5 \pm 1,5$
GaN Barriere	$5,5 \pm 1,0$	$19,3 \pm 1,0$
GaN Abdeckschicht	$8,0 \pm 0,5$	$27,5 \pm 1,0$

EELS Spektren für einen Durchmesser des Strahles von ungefähr 20 nm aufgezeichnet und den verschiedenen Ebenen zugeordnet. Dabei ergibt sich ein Indiumgehalt für die unpolaren Quantenfilme von etwa 5 (± 5) % und für die semipolaren von etwa 20 (± 5) %. Wie schon bei den Dicken ergibt sich auch hier ein Unterschied um den Faktor 4 zwischen den verschiedenen Orientierungen. Das bedeutet in diesem konkreten Fall, dass die absolute Menge des verbauten Indiums auf den vorhandenen un- und semipolaren Facetten vergleichbar ist. Die Wahrscheinlichkeit des Einbaus von Indium hängt von vielen Faktoren, wie z.B. der Wachstumsrate, der genauen Oberflächentemperatur, des molaren Indiumgehaltes in der Gasphase oder der Einbaueigenschaften der angebotenen Facette, ab. Eine definitive Aussage über

²EELS steht für electron energy loss spectroscopy. Die hier vorgestellten EELS-Messungen wurden von X. Kong am PDI in Berlin durchgeführt.

den Einbau des Indiums in Abhängigkeit von der Kristallorientierung kann erst nach einer Versuchsreihe mit einer Variation dieser Parameter getroffen werden.

Es bleibt festzuhalten, dass der Einbau von Indium auf sämtlichen beim Nanosäulenwachstum auftretenden kristallinen Facetten möglich und realisiert worden ist (Core-Shell-Wachstum). Die exakte Kontrolle des Indiumgehaltes und der Quantenfilmdicke in Abhängigkeit der Morphologie und des Abstandes zwischen den Nanosäulen, ist bis dato aufgrund der inhomogenen Verteilung dieser Parameter nicht möglich. Die Umsetzung der Vision einer Core-Shell LED rückt allerdings mit diesen Erkenntnissen ein großes Stück näher.

5.2. Dotierung

Der Nachweis von Dotierstoffkonzentrationen in Nanostrukturen ist äußerst aufwändig und mit herkömmlichen Methoden wie Hall-Messungen oder SIMS nicht praktikabel. Eine ausgezeichnete Möglichkeit, n-Leitfähigkeit nachzuweisen, ist die elektrische Kontaktierung und Vermessung der Strom-Spannungscharakteristik. Am IHT der Technischen Universität Braunschweig besteht die Möglichkeit, mit Hilfe von Mikromanipulatoren der Firma Kleindiek (MM3A-EM) Nanostrukturen elektrisch mit sehr dünnen Wolframnadeln zu kontaktieren. Abbildung 5.9 links zeigt den Messplatz bei geöffneter REM-Kammer und kontaktierter NanoLED (siehe Kapitel 6.1). Mit Hilfe der drei Mikromanipulatoren kann eine Nanostruktur gleichzeitig mit zwei Nadeln bestromt werden, während mit Hilfe der dritten Nadel das Potential an verschiedenen Positionen bestimmt werden kann. Die für die nachfolgenden Abschätzungen verwendeten Messungen am Nanonadelmessplatz wurden von Johannes Ledig durchgeführt.

Die Messspitzen können im REM hochgenau platziert werden. Um Säulen einzeln auf dem isolierenden Saphirsubstrat vermessen zu können, wurden diese zunächst mechanisch mit Hilfe der Nadeln vom Substrat abgelöst. In Abbildung 5.9 rechts ist eine Nanosäule gezeigt, welche gerade kontaktiert wird. Die Kontaktpunkte der Nadeln sind in der Graphik als A, B und C gekennzeichnet. Durch die Differenz der Potentiale zwischen den Punkten A und C und zwischen den Punkten B und C bei einem definierten Stromfluss kann durch die lineare Näherung der Steigung der Strom-Spannungs-Kennlinie der Serienwiderstand der Nanostruktur bestimmt werden. Die in Abbildung 5.9 vermessene Nanosäule ist Teil des Wachstumsexperimentes NAE_01665 und nominell mit $3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ Silizium dotiert. Die

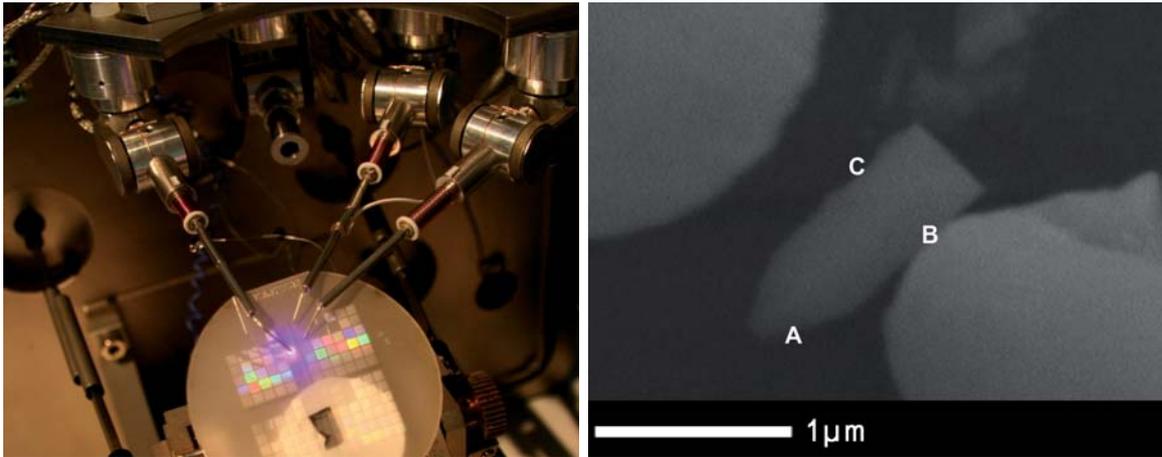


Abbildung 5.9.: Links: Abbildung des Nanonadel-Messplatzes der Technischen Universität Braunschweig bei geöffneter REM-Kammer [Ledig2010]. Die Nadeln kontaktieren hier eine geätzte Nanosäule. Rechts: REM-Aufnahme von zwei Nanonadeln kurz vor dem Kontaktieren der Nanosäule in der Mitte des Bildes. Die Punkte A, B und C markieren die Messpunkte der Nadeln bei der Messung an einer Nanosäule der Probe NAE_01665 mit einer nominellen Si-Dotierung von $3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$.

Approximation des Widerstandes ergibt 560Ω . Bei einer Abschätzung der Abmessungen der Nanosäule und der Abstände zwischen den Messpunkten ergibt sich für die Länge L_{NR} des vermessenen Bereiches $1 \mu\text{m}$ und für den Durchmesser 500 nm . Da sich wegen des sogenannten Fermilevel-Pinnings am Rand der Nanosäulen eine nicht leitfähige Verarmungszone ausbildet [Calarco2005], werden bei der Berechnung der Fläche des leitfähigen Kanalquerschnittes A_{NRef} 100 nm vom Durchmesser abgezogen. So kann die Leitfähigkeit σ mit

$$\sigma = \frac{L_{NR}}{R_{Nanorod} \cdot A_{NRef}} \quad (5.1)$$

grob abgeschätzt werden. Für n-dotierte Halbleiter kann diese ebenfalls durch

$$\sigma = e\mu_n n \quad (5.2)$$

bestimmt werden, wobei e der Elementarladung, μ_n der Beweglichkeit der Elektronen und N_D der Dotierstoffkonzentration entspricht. Aufgrund der relativ niedrigen Aktivierungsenergie von Si-Donatoren (siehe Abschnitt 2.3.5) wird eine vollständige Ionisation angenommen, so dass $n = N_D$ gilt. Mit einer aus Gleichung 5.1 bestimmten Leitfähigkeit von etwa $140 \frac{1}{\Omega\text{cm}}$ kann durch die Division mit der Elementarladung das Produkt $\mu_n N_D$ zu $8,8 \cdot 10^{20} \frac{1}{\text{cmVs}}$ berechnet werden. Unter der Annahme, dass die Mobilität der Elektronen üblicherweise im

Bereich zwischen $100 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$ und $1000 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$ liegt [Goetz1996], ergibt sich eine elektrisch aktive Si-Dotierstoffkonzentration zwischen $8,8 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $8,8 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$.

Im Vergleich zur n-Leitfähigkeit gestaltet sich das Erreichen eines ausreichend hohen Akzeptorlevels in GaN wesentlich schwieriger. Das mit Magnesium dotierte GaN muss nach der Epitaxie erst aktiviert werden und erreicht trotz hoher stöchiometrischer Dotierstoffkonzentrationen nur sehr kleine elektrisch aktive Ladungsträgerkonzentrationen (siehe Abschnitt 2.3.5). Der Nachweis von p-Leitfähigkeit einer rein mit Mg dotierten Säule wie im vorangegangenen Abschnitt für n-Leitfähigkeit gezeigt, ist nicht ohne Weiteres übertragbar. Resultierend aus dem starken lateralen Wachstum, das durch die Mg-Dotierung induziert wird, ist die Synthese einer rein kolumnaren Struktur nicht mehr möglich. Vielmehr zieht sich, wie in TEM-Aufnahmen bestätigt, das mit Mg dotierte Material wie eine Hülle um die bereits vorhandene Nanostruktur (siehe Abschnitte 5.1.1 und 5.1.2). Da auch die Quantenfilme ein solches Verhalten zeigen, bietet sich die ausgezeichnete Möglichkeit Core-Shell Strukturen zu wachsen.

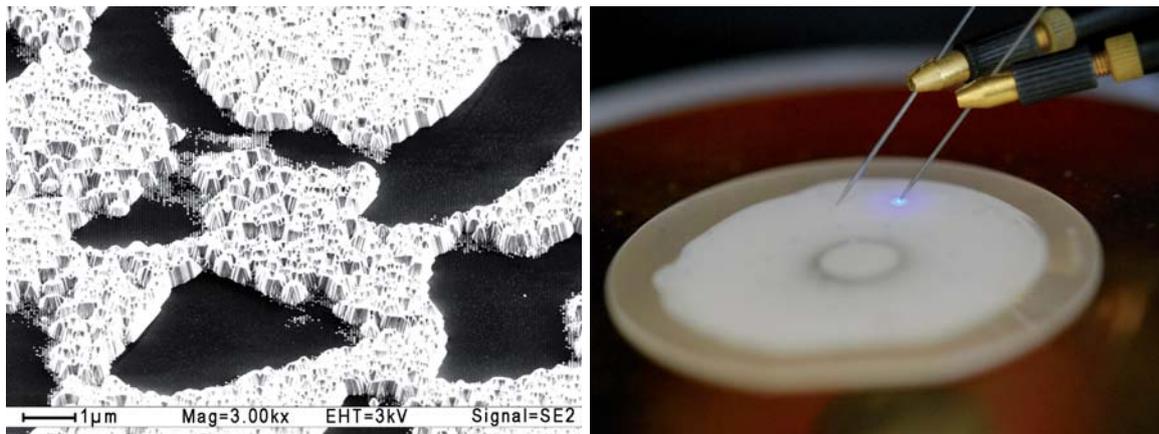


Abbildung 5.10.: Links: REM-Aufnahme der Probe NAE_02733. Die p-Schicht ist noch nicht vollständig koalesziert. Die Oberflächenbedeckung leidet zusätzlich unter der begrenzten Imprintqualität aufgrund der GaN-Morphologie (siehe Abschnitt 4.1.1). Rechts: Kontaktierung der Probe NAE_02733 mit einem Standardnadelmessplatz. Der milchig erscheinende Bereich entspricht der Vorstrukturierung durch den Imprintprozess.

Um eine solche Core-Shell Struktur mit makroskopischen Nadelkontakten vermessen zu können, wurde bei der Probe NAE_02733 eine zum großen Teil koaleszierte p-GaN Schicht über die gewachsenen Nanostrukturen gezogen. Die nominelle Dicke der Mg-dotierten Schicht beträgt 600 nm. Abbildung 5.10 links zeigt eine REM-Aufnahme der Oberfläche. Leider ist diese nicht vollständig koalesziert. Dies liegt in einem wesentlichen Teil an der Beeinträch-

tigung des Imprintprozesses durch die ausgeprägte Morphologie des GaN-Templates (siehe Abschnitt 4.1.1). Beim Kontaktieren dieser Oberfläche mit einem herkömmlichen Nadelmessplatz ist es dennoch möglich, Elektrolumineszenz zu erzeugen (siehe Abbildung 5.10 rechts).

Dies ist der eindeutige Beweis für eine p-leitfähige Schicht auf den Nanostrukturen. Die bei den Messungen bestimmten Spektren zeigen eine starke Blauverschiebung mit steigender Stromdichte (siehe Abbildung 5.11). Es zeigt sich zunächst ein Auffüllen der niederenergetischen Niveaus, wobei hier im Wellenlängenbereich zwischen 550 nm und 600 nm nicht zwischen InGaN- und GaN-Defektlumineszenz unterschieden werden kann. Mit zunehmender Anregungsdichte nimmt die höherenergetische Emissionsbande in ihrer Intensität stark zu und durch das Auffüllen der Bänder schiebt die Spitzenwellenlänge von 480 nm bis 410 nm. Eine Bestimmung des Serienwiderstandes und die damit verbundene Abschätzung über die Qualität der p-dotierten Schicht kann mit Hilfe dieses Aufbaus nicht durchgeführt werden. Aufgrund der inhomogenen Verteilung der Strukturen auf dem Wafer sind reproduzierbare Messungen von Strom-Spannungskennlinien nicht möglich. Des Weiteren kann die Anzahl an kontaktierten Nanostrukturen und somit die Stromdichte nicht bestimmt werden. Der ermittelte Wellenlängenshift kann also nur einen Eindruck über das Auffüllen der Bänder geben, erlaubt aber keine quantitativen Aussagen. In weiterführenden Messungen am Nanonadelmessplatz des IHT der TU Braunschweig mit einer dünneren p-Schicht sollte dies realisierbar sein.

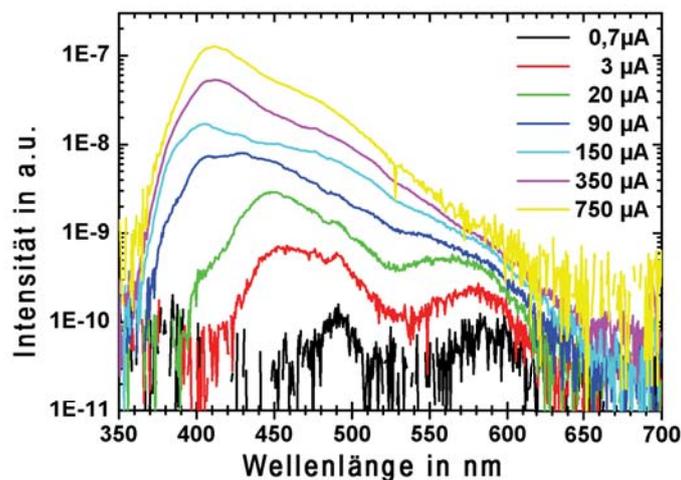


Abbildung 5.11.: EL - Spektren eines Messpunktes auf der Probe NAE_02733. Zunächst füllen sich die tieferen Zustände auf. Es ergibt sich mit steigender Stromdichte eine starke Blauverschiebung.

Zusammenfassung

Durch die Auswertung von Photolumineszenz- und Kathodolumineszenzmessungen konnten in diesem Kapitel Erkenntnisse zum Einbaumechanismus von Indium in Nanostrukturen gewonnen werden. In Verbindung mit TEM-Analysen wurde erfolgreich nachgewiesen, dass sich die aktive Schicht wie ein Mantel um die komplette Nanostruktur zieht. Somit konnte der Einbau von Indium auf allen auftretenden Facetten realisiert werden. Dies steht in guter Übereinstimmung mit den Core-Shell Ergebnissen von Qian et al. [Qian2004, Qian2008], bei denen Quantenfilme auf den senkrecht zur Wachstumsebene vorhandenen Facetten demonstriert werden konnten. Der in dieser Arbeit gezeigte Einbau von Indium geht einen wesentlichen Schritt über die bisher auf Katalysator-freien Nanosäulen veröffentlichten Ergebnisse hinaus [Hersee2008]. Ein Quantendisk-Wachstum, wie es in der MBE oder HVPE auftritt [Kikuchi2004, Kim2004], konnte bei den Experimenten nicht beobachtet werden.

Die Emissionswellenlänge variiert je nach Orientierung der Wachstumsfacette bei gleichen Wachstumsbedingungen. TEM-Untersuchungen zeigten, dass für die unterschiedlichen Emissionswellenlängen neben dem piezoelektrischen Feld ein verschieden hoher Einbau von Indium auf den Facetten verantwortlich ist. Ein von der Facette abhängiger Einbau konnte auch von Qian et al. [Qian2008] auf Nanosäulen und von weiteren Gruppen auf pyramidalen Strukturen beobachtet werden [Fuendling2009, Wunderer2010].

Des Weiteren deuten die Ergebnisse in dieser Arbeit darauf hin, dass sich der Einbau von Indium zwischen Ga- und N-polaren pyramidalen Facetten unterscheidet. Dies ist in Übereinstimmung mit Überwachsversuchen auf geätzten GaN-Nanosäulen unterschiedlicher Orientierung von Fichtenbaum et al. [Fichtenbaum2007]. Für eine detaillierte Aussage über die quantitativen Unterschiede sind jedoch noch weitere Versuche notwendig.

Erstmals konnte gezeigt werden, dass in einer MOVPE durch den Abstand der Nanosäulen Einfluss auf die Emissionswellenlänge genommen werden kann. So steigt mit größer werdendem Abstand die Wellenlänge an. Ähnliche Beobachtungen konnten auch von Sekiguchi et al. bei Experimenten in der MBE gemacht werden [Sekiguchi2010]. Allerdings unterscheiden sich die Mechanismen zwischen MBE und MOVPE signifikant. So ist laut dem Modell von Sekiguchi et al. eine Abschattung des Materials für die Wellenlängenänderung verantwortlich. In der MOVPE resultiert diese aus sich ändernden Quantenfilmdicken durch unterschiedliche Wachstumsraten. Wie in Kapitel 4 beschrieben, steigt die laterale Wachstumsrate mit steigen-

dem Abstand zwischen den Nanosäulen. Durch die größeren Abmessungen der Quantenfilme ist der piezoelektrische Effekt für die Rotverschiebung der Wellenlänge verantwortlich.

Messungen an mittels Silizium und Magnesium dotierten Nanostrukturen zeigten, dass die n- und p-Dotierung der Nanostrukturen möglich ist. Dabei konnte mit Hilfe des Nanonadelmessplatzes des IHT der TU Braunschweig eine erste Abschätzung zur n-Dotierhöhe gegeben werden. Während bei Köster et al. ein signifikanter Einfluss der n-Dotierung auf die Form und Dichte der selbstorganisierten Nanosäulen beobachtet werden konnte [Koester2010], ändert sich bei den in dieser Dissertation vorgestellten Wachstumsbedingungen die Form der Nanosäulen bei moderaten Dotierstoffkonzentrationen nicht. Die Tatsache, dass auch die Mg-dotierte p-Schicht die gesamte Nanostruktur umhüllt, ist eine optimale Ergänzung zum Core-Shell Wachstum der aktiven InGaN/GaN-Schichten. Wie bereits bei den Quantenfilmen wurde ein solches Verhalten auch bei Qian et al. festgestellt [Qian2008]; Hersee et al. zeigten jedoch widersprüchlich dazu in ihrer jüngsten Veröffentlichung einen vertikalen pn-Übergang [Hersee2009].

Das Core-Shell Wachstum von InGaN/GaN-Quantenfilmen und der p-dotierten Schicht ist in diesem Kapitel zum ersten Mal in einer großvolumigen MOVPE demonstriert worden. Die Umsetzung der in Kapitel 1 beschriebenen Vorteile rückt somit ein Stück näher. Durch die teilweise Koaleszenz der Mg-dotierten Schicht konnte mit einer „Scratch“-NanoLED Elektrolumineszenz und somit auch p-Leitfähigkeit nachgewiesen werden.

Nach der hier bereits gezeigten Kontaktierung einzelner Nanostrukturen, wird im anschließenden Kapitel 6 die Entwicklung eines Chipprozesses für NanoLEDs vorgestellt.

Kapitel 6.

NanoLED-Design und Umsetzung des Chipkonzeptes

Um das Ziel eines elektrisch betriebenen Bauelementes zu verwirklichen, ist neben der Epitaxie von dreidimensional gewachsenen Strukturen auch eine Prozessierung zum LED Chip durchzuführen. Im Vergleich zu konventionellen zweidimensionalen Epitaxieschichten bedarf es hier zusätzlicher Überlegungen. Allein die beiden Ansätze mit Nanosäulen, die eine optisch aktive Schicht und einen p-n-Übergang in vertikaler Richtung zeigen (Quantendisk) und Nanosäulen, die komplett mit einer aktiven Schicht überzogen sind (Core-Shell), bedürfen einer getrennten Betrachtung.

Prinzipiell müsste bei einer vollständig geschlossen gewachsenen p-Hülle nicht komplett verfüllt werden, da kein freiliegender p-n-Übergang vorhanden ist. Die Querleitfähigkeit von p-dotiertem GaN ist allerdings nicht ausreichend hoch. Daher muss beim Core-Shell Ansatz die gesamte Säule mit einer hoch stromleitfähigen Schicht überzogen werden, um eine homogene Stromverteilung zu gewährleisten.

Beim Quantendisk-Ansatz hingegen muss das Hauptaugenmerk auf andere Details gelegt werden. Nach dem Wachstum bzw. nach dem Ätzen der InGaN/GaN Nanosäulen muss zunächst die empfindliche p-Seite geschützt werden. Im Anschluss daran werden die Säulen mit einem isolierenden Material verfüllt, um den offenen p-n-Übergang zu passivieren. Nach dem Entfernen des überschüssigen Verfüllmaterials kann die p-seitige Schutzschicht nasschemisch oder durch einen CMP¹-Schritt geöffnet und der p-Kontakt aufgedampft werden. Kontaktiert man auf Waferebene die durchgängige n-leitfähige Schicht, können die NanoLEDs betrieben werden.

¹CMP steht für Chemisch-mechanisches Polieren

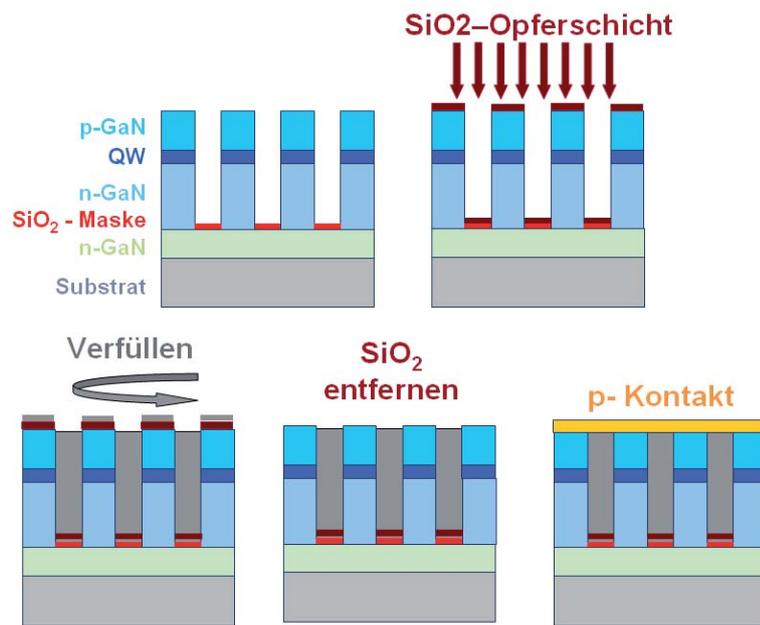


Abbildung 6.1.: Schematische Darstellung der grundlegenden Prozessschritte für die Herstellung einer NanoLED. Nach dem Aufdampfen einer SiO₂-Schutzschicht für das p-dotierte GaN mit einem CVD-Prozess wird die Säulenstruktur mit einem Spin-On Prozess verfüllt. Nach dem Entfernen der Schutzschicht kann die p-Seite kontaktiert werden.

Abbildung 6.1 zeigt diese Schritte für einen möglichen Chipprozess in schematischer Darstellung. Die technologische Umsetzung der dafür notwendigen Prozessschritte wird in den folgenden Abschnitten gezeigt.

6.1. Top-Down Ansatz: Von der 2D-LED zur Nanosäulen-LED

Um die Möglichkeit zu schaffen, reproduzierbare Experimente zu den in Abbildung 6.1 dargestellten Prozessschritten durchführen zu können, wurden Nanosäulen mit definiertem Durchmesser und Abstand voneinander verwendet, die mittels eines Ätzschrittes aus einer zweidimensionalen Schicht hergestellt wurden. Dazu wurden zunächst konventionelle LED-Strukturen (siehe Abbildung 2.2.1 Seite 20) auf Saphir gewachsen. Um die Charakteristika der späteren LED besser untersuchen zu können, wurde die aktive Zone auf einen einzelnen Quantentrog (SQW) beschränkt (vergleiche Abschnitt A.2). Des Weiteren wurde die Dicke der p-Seite vergrößert, um beim späteren Freilegen der Nanosäulen ausreichend Toleranz zur Verfügung zu haben. Die angestrebte p-Schichtdicke für die Experimente betrug etwa 600 nm.

Nach der Epitaxie wurden die Scheiben mit einer 450 nm dicken SiO_2 -Hartmaske versehen. Die Belichtung der Strukturen wurde mit dem in Tabelle 4.2 Seite 50 vorgestellten Design am Institut für Halbleitertechnik in Braunschweig durchgeführt. Um im Gegensatz zur Wachstumsmaske die Hartmaske für das Ätzen von Säulen zu erzeugen, wurde mit einem zusätzlichen Ausheizschritt der Photolack AZ5214E invertiert. Nach dem Entwickeln der Photomaske wurde zunächst ein selektiver Ätzschritt für die Strukturierung der Hartmaske angewendet. Abbildung 6.2 links zeigt die strukturierte SiO_2 -Hartmaske. Das Ätzen von Durchmessern

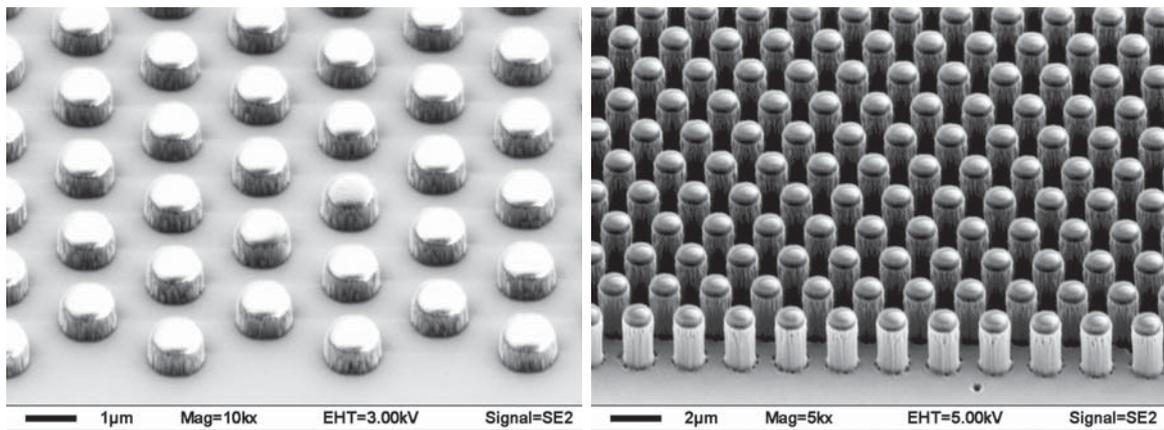


Abbildung 6.2.: Links: REM-Aufnahme der strukturierten SiO_2 -Hartmaske. Der Zieldurchmesser war hier 1000 nm bei einem Abstand von ebenfalls 1000 nm. Rechts: Die mit Hilfe der SiO_2 -Hartmaske geätzten GaN-Säulen. Durchmesser und Abstand entsprechen 1000 nm. Die dunkle Abdeckung auf den Spitzen der Nanosäulen ist der Rest der Hartmaske.

und Abständen konnte bis zur Auflösungsgrenze der hier verwendeten optischen Lithographie von 500 nm realisiert werden. Die GaN-Nanosäulen mit einem Aspektverhältnis bis zu 6 wurden mit Hilfe eines Cl/Ar-Plasmas in einer ICP-RIE² Anlage trockenchemisch geätzt (siehe Abbildung 6.2 rechts). Auf der Spitze der GaN-Nanosäulen ist im REM der Rest der Hartmaske als dunkle Abdeckung zu sehen. Diese wird für die anschließenden Versuche als Schutz für das p-GaN auf der Säule belassen.

Abbildung 6.3 zeigt die Wellenlängen- und Intensitätsverteilung des Photolumineszenzspektrums der geätzten Nanosäulen auf dem 2“ Wafer. Die optische Funktionsfähigkeit der aktiven Schichten nach dem Ätzen ist somit noch gegeben und die Strukturen eignen sich für Vorversuche zur Erprobung möglicher Chipprozessschritte.

²ICP steht für inductively coupled plasma, RIE für reactive ion etching

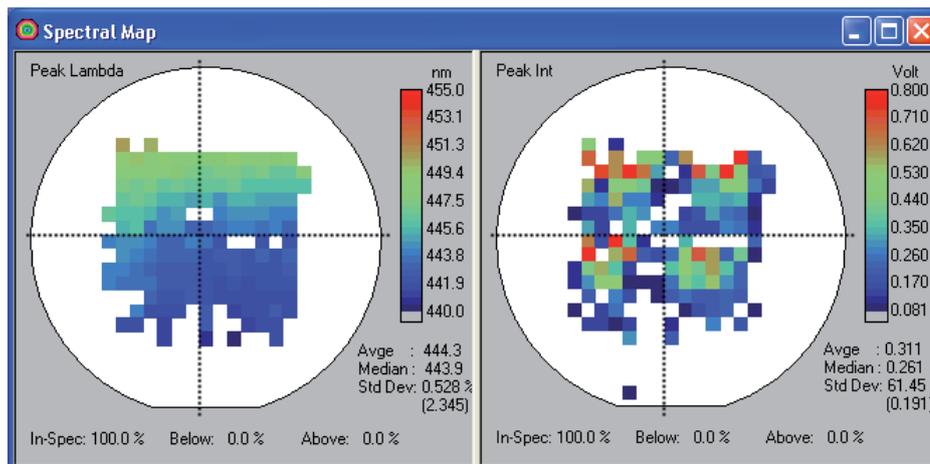


Abbildung 6.3.: Wellenlängen- und Intensitätsverteilung der Photolumineszenzspektren von geätzten NanoLEDs. Die vier Quadranten der verwendeten Maske BS1 sind durch die gestrichelte Linie hervorgehoben.

6.2. Verfüllen von Nanostrukturen

Beim Quantendisk-Ansatz gilt es, den offenen p-n-Übergang zu schützen und die Möglichkeit für einen vollflächigen p-Kontakt zu schaffen. Aufgrund dessen ist es notwendig, die Nano-säulen in eine passivierende Matrix zu betten. Da das Verfüllmaterial wesentlichen Einfluss auf die späteren Eigenschaften des Bauteiles hat, muss dieses bestimmte Kriterien erfüllen. Um den p-n-Übergang vor einem Kurzschluss zu schützen, muss das isolierende Material die GaN-Oberfläche möglichst gut benetzen, da sonst Hohlräume entstehen können. Eine hohe Bauteileffizienz kann nur ermöglicht werden, wenn kein bzw. nur sehr wenig Licht absorbiert wird. Somit muss das Verfüllmaterial für die Emissionswellenlänge der LED transparent sein. Selbstverständlich muss das Medium stabil gegenüber der LED Emission und erhöhten Temperaturen sein. Eine Trübung mit Verlauf der Zeit vermindert die Leistungsmerkmale der LED. In engem Zusammenhang mit der Temperaturstabilität steht die Voraussetzung einer nur kleinen Abweichung des thermischen Ausdehnungskoeffizienten, um eine Rissbildung zu vermeiden. Für eine verbesserte Lichtauskopplung durch photonische Effekte ist ein kleiner Brechungsindex von Vorteil, da so ein Großteil des erzeugten Lichtes innerhalb der Nano-säulen geführt wird. Erfüllt ein Material all diese Voraussetzungen, muss es zusätzlich noch seine Tauglichkeit für Frontend-Prozesse beweisen. Es darf nicht ausgasen, um Querkontaminationen zu vermeiden und muss die erforderlichen Temperaturen überstehen.

Da Nanosäulen aus Silizium wesentlich kostengünstiger und prozesstechnisch einfacher herzustellen sind als aus GaN, wurden diese für die grundlegenden Experimente verwendet. Die

Höhe der mit dem für GaN-Säulen identischen Maskenlayout gefertigten Säulen beträgt für diese Serie von Experimenten etwa 6 μm . Siliziumoberflächen besitzen die Eigenschaft zu oxidieren, wenn sie an Luft gelagert werden. Das nativ entstehende amorphe SiO_2 ist hydrophil und kann somit sehr leicht von Wasser benetzt werden. Behandelt man die Oberfläche mit einem kurzen nasschemischen Ätzschritt in Fluorwasserstoff (HF-Säure), wird diese hydrophob und benetzt nicht mehr mit Wasser. Um eine detailliertere Aussage über den Einfluss des Benetzungsverhaltens der getesteten Materialien treffen zu können, wurden die Versuche jeweils mit zwei unterschiedlich vorbehandelten Wafern durchgeführt. Bei erfolgreichem Vortest wurde die Verfüllmethode mit den geeigneten Materialien auf die geätzten und gewachsenen GaN-Strukturen übertragen.

6.2.1. Eigenschaften der Füllmaterialien

Als mögliche Verfüllmaterialien wurden ein modifiziertes Epoxydharz, BCB³, ein anorganisches Al_2O_3 -Sol und ein auf Hydrogensilsesquioxan (HSQ) basierender E-Beam Photolack untersucht. Sämtliche Materialien können mit einem einfachen Aufschleuderprozess (Spin-On Prozess) auf den Wafer aufgeschleudert werden. Durch die gezielte Steuerung der Umdrehungszahl kann die finale Schichtdicke beeinflusst werden.

Epoxydharz

Epoxydharze im Allgemeinen sind Polymere, die je nach Zusammensetzung sehr langsam polymerisieren, so dass man sie noch in flüssigem Zustand verarbeiten und erst im Anschluss daran aushärten lassen kann. Nach dem Aushärten entsteht ein stabiler und gegen viele Chemikalien beständiger Kunststoff. Das bei diesen Verfüllversuchen verwendete transparente Epoxydharz ist einkomponentig und kann bei Temperaturen um 130 °C thermisch ausgehärtet werden. Bei Vorversuchen auf planen Si-Wafern zeigte sich bei einer Spin-On Umdrehungsgeschwindigkeit von 2000 rpm eine Epoxydschichtdicke von 2,3 μm . Beim Verfüllen der Si-Nanosäulen stellte sich abhängig von der Vorbehandlung eine unterschiedlich gute Benetzung der planen Oberfläche ein. Eine hydrophobe Oberfläche wird homogen beschichtet, wohingegen bei einer hydrophilen Oberfläche nur die Flächen mit Säulen das Material annehmen. Abbildung 6.4 links zeigt die REM-Aufnahme von verfüllten Nanosäulen auf ei-

³BCB steht für Benzo-Cyclo-Buten

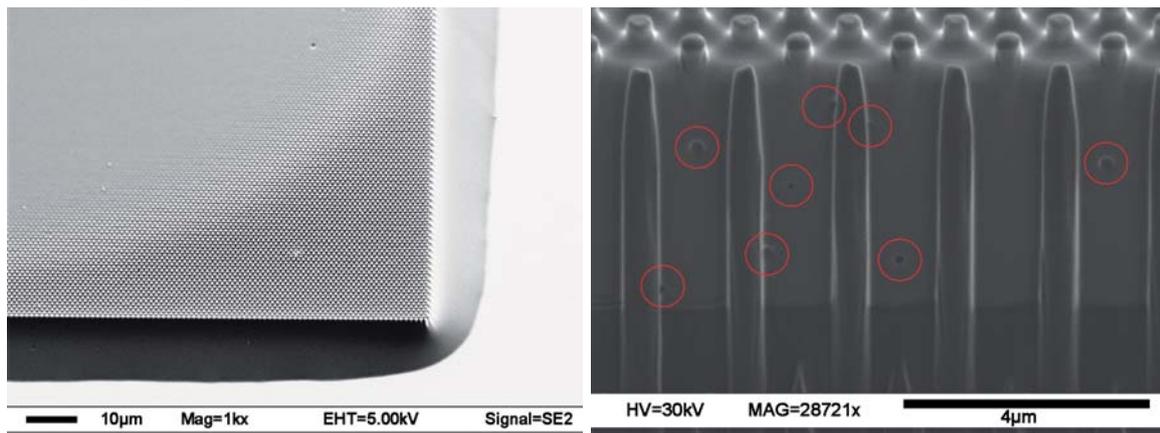


Abbildung 6.4.: Links: REM-Aufnahme von mit Epoxydharz verfüllten Si-Nanosäulen. Das Material sammelt sich in der Mitte des Feldes an und bildet einen Dom mit sehr hoher Schichtdicke. Rechts: FIB-Querschnitt durch ein mit Epoxydharz verfülltes Feld. Das Epoxydharz benetzt die komplette Oberfläche gut, zeigt allerdings Lufteinschlüsse (durch rote Kreise im Bild gekennzeichnet). Die Lufteinschlüsse sind häufig direkt an der Nanosäule zu beobachten.

ner hydrophilen Oberfläche. Am Rand des Feldes ist der Meniskus sichtbar, welcher sich durch den Rückzug des Materials in das nanostrukturierte Feld ergibt. Das zusätzliche Material bildet in der Mitte des vorstrukturierten Feldes einen Dom, wodurch die Säulen stark überfüllt und spätere Planarisierungsschritte erschwert werden. Die Ausbildung eines Materialüberschusses in der Mitte des Feldes tritt ebenfalls bei der hydrophoben Probe, wenn auch in abgeschwächter Form, auf. Die 6 µm hohen Säulen werden also trotz einer äquivalenten Schichtdicke von 2, 3 µm auf planen Wafern vollständig aufgefüllt und in der Mitte der Felder weit überfüllt.

FIB⁴-Analysen an verfüllten Säulen zeigen sowohl bei hydrophoben als auch hydrophilen Oberflächen durchwegs gute Verfülleigenschaften (siehe Abbildung 6.4). Eine Verfüllung findet vollständig bis zum Boden statt, allerdings zeigen sich an manchen Stellen kleine Lufteinschlüsse. Diese sind durch rote Kreise in der Abbildung hervorgehoben. Da diese Lufteinschlüsse oft direkt an den Säulen zu finden sind, besteht das Risiko eines unvollständig passivierten p-n-Übergangs und somit einer offenen aktiven Schicht. Versuche, bei denen die verfüllten Proben vor dem Ausheizen in einen evakuierten Exsikkator gegeben wurden, zeigten weniger Lufteinschlüsse. Eine Blasenfreiheit konnte allerdings nicht erreicht werden. Aufgrund der Materialakkumulation in der Feldmitte und der Lufteinschlüsse wurde auf eine Weiterentwicklung für das Verfüllen der GaN-Nanosäulen verzichtet.

⁴FIB steht für Focused Ion Beam

Benzo-Cyclo-Buten (BCB)

Ursprünglich wurde BCB als Trockenätzresist entwickelt. Seine ausgezeichneten Eigenschaften, wie eine geringe Feuchtigkeitsabsorption, eine relativ geringe Aushärtetemperatur und die Eigenschaft nach dem Aushärten nicht auszugasen, ermöglichen die Anwendung für weitere Bereiche. Für eine verbesserte Haftung auf der Oberfläche wird in der Regel ein Haftvermittler vor dem Spin-On Prozess aufgetragen. Bei allen Verfüllversuchen mit BCB wurde hier AP3000 verwendet. Auch hier wurden Vorversuche bei 1000 rpm auf einem planen Si-Wafer durchgeführt. Aufgrund der niedrigeren Viskosität verglichen zum verwendeten Epoxydharz beträgt die Schichtdicke bei halber Umdrehungszahl ebenfalls etwa $2,2\ \mu\text{m}$. Das Ausheizen von BCB findet in zwei Schritten statt. Zunächst wird auf einer Heizplatte das Material bei $110\ ^\circ\text{C}$ vorvernetzt und anschließend bei $250\ ^\circ\text{C}$ final ausgehärtet. Ungeachtet ob die Oberfläche hydrophob oder hydrophil ist, benetzt BCB die Wafer vollständig. Somit findet keine Materialakkumulation in der Feldmitte statt. Die Verfüllhöhe hängt allerdings stark

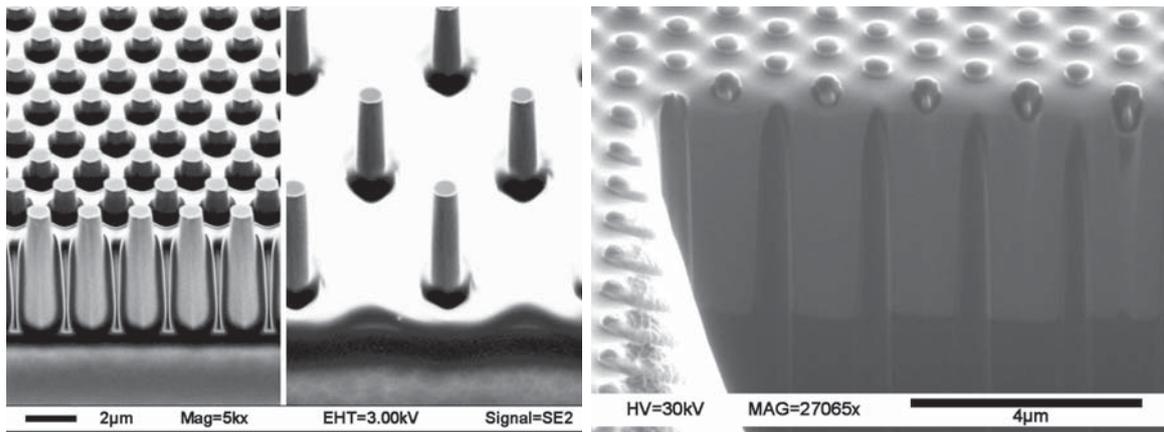


Abbildung 6.5.: Links: REM-Aufnahmen von mit BCB verfüllten Si-Nanosäulen mit einem Abstand von $1\ \mu\text{m}$ und $5\ \mu\text{m}$. Das Material verfüllt über das gesamte Feld bei konstantem Füllfaktor der Nanosäulen mit annähernd konstanter Höhe und bildet keinen Dom in der Mitte des Feldes aus. Allerdings hängt die Verfüllhöhe signifikant vom Füllfaktor ab. Rechts: FIB-Querschnitt durch ein mit BCB verfülltes Feld. Die Säulen sind perfekt verfüllt und es zeigen sich keine Luftinschlüsse.

von der Dichte der Nanosäulen ab. Abbildung 6.5 zeigt zwei im Durchmesser gleiche Säulen mit unterschiedlichem Abstand von $1\ \mu\text{m}$ und $5\ \mu\text{m}$. Bei den sehr großen Abständen nähert sich die Verfüllhöhe der Schichtdicke auf einem planaren Si-Wafer an, während das Material bei dichten Nanosäulen im Feld gehalten wird. Die Verfüllhöhe innerhalb der strukturierten Felder ist nur schwach von der Umdrehungsgeschwindigkeit abhängig. Zusätzlich traten bei Vorversuchen mit 2000 rpm und 4000 rpm teilweise abgebrochene Nanosäulen und

unverfüllte Bereiche auf. Eine sinnvolle Verringerung der Füllhöhe kann über die Spin-On Geschwindigkeit nicht erreicht werden.

Bei Querschnitten mit dem FIB bestätigte sich die bereits im REM beobachtete ausgezeichnete Verfülleigenschaft von BCB (siehe Abbildung 6.5 rechts). Die Säulen sind perfekt verfüllt und bei sämtlichen ausgewerteten FIB-Schnitten konnten keinerlei Lufteinschlüsse detektiert werden. Eine Übertragung der Ergebnisse auf GaN-Säulen war mit den selben Parametereinstellungen leicht möglich. Weiterführende Analysen an verfüllten GaN-Nanosäulen mit Durchmessern und Abständen kleiner als 50 nm bestätigten die sehr vielversprechenden Ergebnisse. Auch hier waren selbst in kleinsten Zwischenräumen keine Lufteinschlüsse sichtbar.

Al₂O₃-Sol

Der Sol-Gel-Prozess ist ein Verfahren zur Herstellung von nichtmetallischen, anorganischen Materialien aus einer Dispersionslösung. In dieser Lösung befinden sich feinste Teilchen im Nanometerbereich, welche sich im Laufe des Aushärtprozesses verbinden (auch Gelieren genannt) und nach dem Austrocknen zu einer festen Schicht verbinden. Al₂O₃-Nanopartikel wurden aufgrund der Transparenz und der chemisch sehr stabilen Eigenschaften gewählt. Das Aushärten findet auch hier wieder zweistufig bei 110 °C auf einer Heizplatte und bei

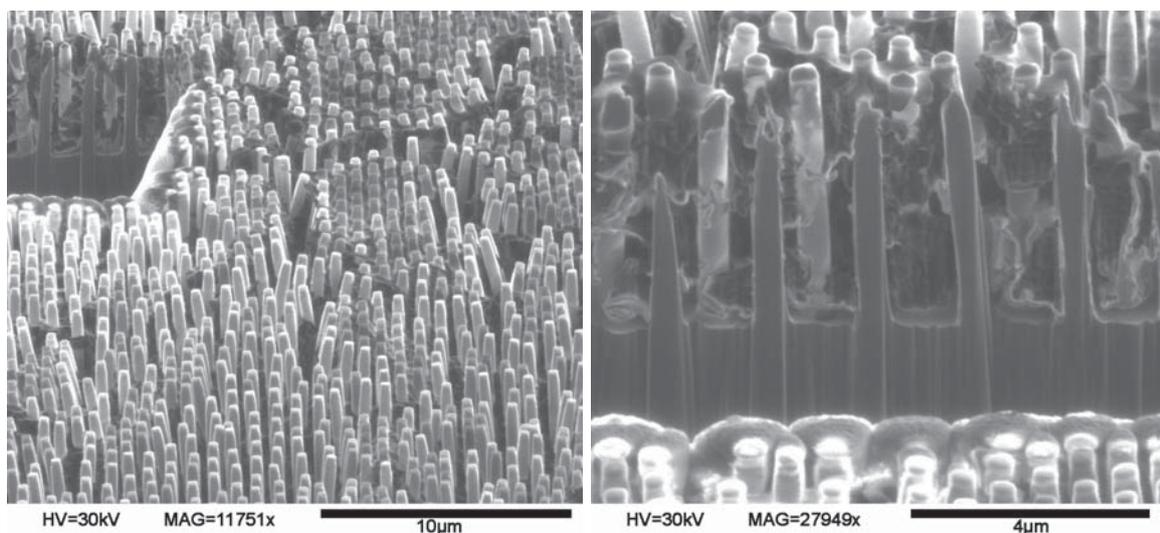


Abbildung 6.6.: Links: Überblicksaufnahme von Al₂O₃-Sol verfüllten Säulen. Die Säulen werden stark deformiert und beim Aushärten des Materials statistisch in verschiedene Richtungen gedrückt. Rechts: Großaufnahme des FIB-Schnittes. Die Ausflockungen der Nanopartikel drücken die Säulen in verschiedene Richtungen.

250 °C im Ofen statt. Der optische Eindruck nach dem Spin-On Prozess weist sowohl auf der hydrophoben als auch auf der hydrophilen Oberfläche eine unvollständige Benetzung auf. Zusätzlich wirken in Lichtmikroskopaufnahmen die verfüllten Felder inhomogen. Eine genauere Untersuchung zeigt, dass beim Sol-Gel-Prozess und dem anschließenden Aushärteprozess die Säulen regelrecht verbogen werden (siehe Abbildung 6.6). Beim FIB-Schnitt sind deutlich die Ausflockungen der Al_2O_3 -Nanopartikel zu sehen, welche die Säulen deformieren und statistisch verteilt in verschiedene Richtungen biegen. Weitere Verfüllexperimente wurden aufgrund dieser Ergebnisse nicht durchgeführt.

Flowable Oxide (FOx[®])

Der E-Beam Resist aus HSQ wird auch als FOx^{®5} bezeichnet. Wird dieser Resist bei über 650 °C ausgeheizt, bildet sich amorphes SiO_2 [Loboda1998], was aufgrund der ausgezeichneten optischen und chemischen Eigenschaften als Verfüllmaterial ideal geeignet wäre. Der Resist ist sehr niederviskos und für das Erzeugen sehr dünner Schichten gut geeignet. Nachteile sind die hohe Ausheiztemperatur und die zu GaN unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten, wodurch starke Verspannungen beim Abkühlen auftreten können. Obwohl der Resist sowohl auf hydrophilen als auch hydrophoben Oberflächen sehr gut benetzt, zeigt sich in den Feldern eine sehr inhomogene Verteilung des Materials (siehe Abbildung 6.7 links). Durch

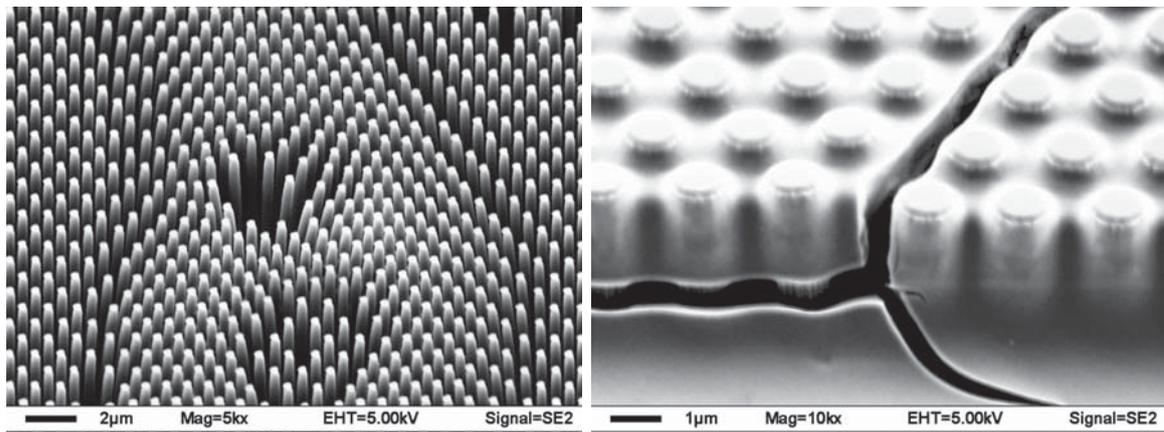


Abbildung 6.7.: Links: REM-Aufnahme von mit FOx[®] verfüllten Säulen. Die Verfüllung ist statistisch inhomogen über den strukturierten Feldern verteilt. Die verfüllten Bereiche werden stark kompressiv verspannt und die Nanosäulen werden verbogen. Rechts: REM-Aufnahme von GaN-Nanosäulen, die nach dem Verfüllen mit einem verbesserten Ausheizprozess behandelt wurden. Trotz der deutlich gesteigerten Homogenität zeigen sich aufgrund der Schrumpfung des Materials beim Aushärten Risse im SiO_2 .

⁵FOx[®] ist die Abkürzung für Flowable Oxide und wird von der Firma Dow Corning Corporation vertrieben

die starke Schrumpfung des Materials beim Aushärten werden die Säulen zusammengezogen und teilweise sogar von der Oberfläche abgerissen. Ein verbesserter Spin-On Prozess mit angepassten Rotationsgeschwindigkeiten und ein Ausheizprozess mit langsameren Temperaturrampen wurde an geätzten GaN-Nanosäulen durchgeführt. Abbildung 6.7 rechts zeigt, dass allerdings auch hier Risse entstehen, die eine weitere Verwendung des Materials ausschließen.

6.2.2. Transparenz und Alterungsstabilität

Die beiden geeignetsten Materialien, welche in Abschnitt 6.2.1 untersucht wurden, sind Epoxydharz und BCB. Da in der Literatur keine genauen Angaben zur Transparenz der Materialien gefunden werden konnten, wurden Transmissionsmessungen durchgeführt. Dafür wurde zunächst eine dünne Schicht des jeweiligen Materials mit den Standardbedingungen auf eine Glasscheibe aufgeschleudert. Eine im REM durchgeführte Analyse an Bruchkanten der Glaswafer bestätigte die angenommene Schichtdicke von jeweils 2,3 μm für beide Materialien. Die mit Hilfe eines Transmissionsmessgerätes von PerkinElmer durchgeführten Messungen resultieren durch Umstellen der Gleichung

$$T = \frac{I}{I_0} = e^{-\alpha d} \quad (6.1)$$

im Absorptionskoeffizienten

$$\alpha = \frac{-\ln\left(\frac{I}{I_0}\right)}{d} \quad (6.2)$$

mit I_0 und I der Intensität vor und nach dem Durchdringen der Testscheibe und der Dicke d der absorbierenden Schicht. Die Werte für die Transmission und der daraus berechnete Absorptionskoeffizient sind in Abbildung 6.8 für den gesamten sichtbaren Wellenlängenbereich aufgetragen. Das Epoxydharz ist hier fast vollständig transparent. Das BCB hingegen absorbiert bereits im blauen Spektralbereich. Dies könnte in einem späteren Bauteil Effizienzeinbußen und eine beschleunigte Alterung durch Trübung des Materials nach sich ziehen.

Um eine Abschätzung der Alterungsstabilität des verwendeten Epoxydharzes und von BCB treffen zu können, wurden beide Materialien einem beschleunigten Alterungstest unterzogen. Dabei werden die Probenstücke bei erhöhter Temperatur (140°) einer LED-Emission bei 440 nm ausgesetzt. Die beiden Probenstücke zeigten nach dieser Behandlung eine dunkle,

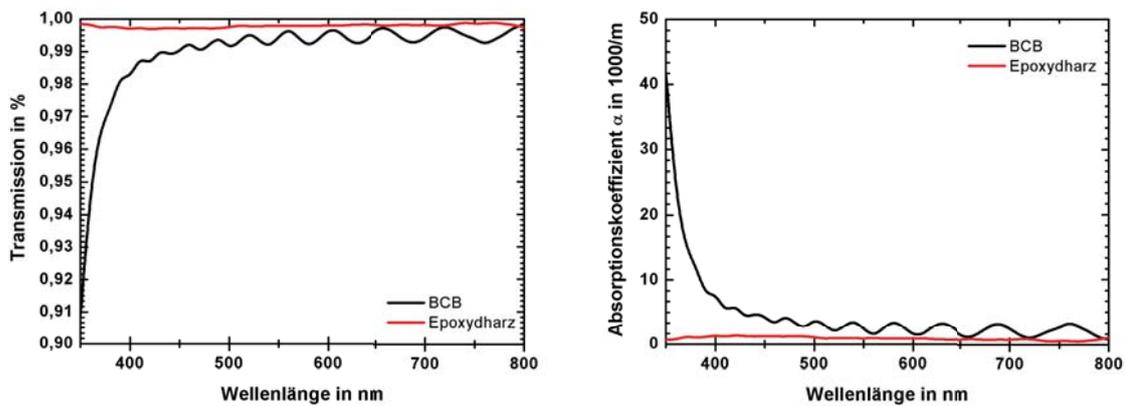


Abbildung 6.8.: Links: Die gemessene Transmission für BCB und Epoxydharz. Während BCB unterhalb etwa 450 nm absorbiert, ist das Epoxydharz über den gesamten Bereich gleich transparent. Rechts: Der Absorptionskoeffizient von BCB und Epoxydharz aus den Transmissionsdaten gemäß Formel 6.1 berechnet.

braune Verfärbung. Bei BCB liegt dies in der Absorption im blauen Spektralbereich begründet. Das Material wird durch die Photonen geschädigt und verfärbt sich dunkler. Dadurch wird noch mehr Licht absorbiert und der Effekt verstärkt sich. Trotz der geringen Absorptionswerte altert auch das Epoxydharz signifikant. Allerdings muss man hier in Betracht ziehen, dass bei längerem Temperatureinfluss über 120° Thermooxidation auftreten kann, was zu einer Verfärbung führt. Metallionen, die durch Verunreinigungen im Material vorhanden sein können, katalysieren diesen Effekt. Somit sind beide Materialien ausschließlich für Testbauteile geeignet, ein kommerziell verfügbares Produkt darf solche Alterungserscheinungen nicht aufweisen.

6.3. Kontaktieren

Nach dem Verfüllen der Nanostrukturen besteht ein Großteil der Oberfläche aus einem Dielektrikum. Die Haftung des Kontakt- bzw. Spiegelmaterials mit Standardprozessen muss also zunächst nachgewiesen werden. Hochreflektierende Spiegel werden als Kontaktmaterial notwendig, wenn z.B. die p-Seite aus Gründen der Stromaufweitung vollflächig kontaktiert wird. So können Verluste aufgrund von Absorption vermieden werden. Zudem muss überprüft werden, ob die Lithographie durch die Oberflächenmorphologie sowie durch Interferenzen aufgrund der regelmäßigen Anordnung der Nanosäulen nachteilig beeinflusst wird.

Grundlage für diesen Machbarkeitstest sind mit BCB verfüllte Si-Säulen (siehe Abschnitt 6.2.1). Für die Evaluation der Kontaktaufdampfung wurde ein Standarddesign für einen Chip

mit einer Kantenabmessung von $500\ \mu\text{m}$ verwendet. Das Kontaktlayout enthält zwei Stege, für den Spiegel wurde das fast vollflächige inverse Design des Kontaktes herangezogen. Als Kontakt dient aufgedampftes TiPtAu, als Spiegelmaterial Silber.



Abbildung 6.9.: Lichtmikroskopaufnahme einer Aussparung im Ag-Spiegel. Die Kanten zeigen eine leichte Welligkeit im Bereich weniger μm . Dies hätte bei einem späteren Bauteil keine Relevanz.

Die Lithographie zeigt sich bei den auf dem Wafer vorhandenen Strukturgrößen nur sehr geringfügig beeinflusst. Abbildung 6.9 zeigt die Aussparung im Ag-Spiegel. Es tritt an der Kante eine leichte Welligkeit in der Größenordnung weniger μm auf, welche bei einem späteren Bauteil keinen Einfluss auf die Eigenschaften hätte. Auch am Rand der Kontaktstege ist diese Welligkeit zu beobachten, aber auch hier ist diese im Vergleich zur Breite des Kontaktsteges zu vernachlässigen. Sowohl TiPtAu als auch Ag haften auf den vorstrukturierten Feldern, es ist keine Delamination zu beobachten.

Bei der Kontaktierung von GaN-Nanosäulen, welche im Vergleich zu den Si-Testsäulen eine geringere Höhe haben, muss zunächst sichergestellt werden, dass die Spitze der Nanosäulen nicht im Verfüllmaterial vergraben ist. Abbildung 6.10 links zeigt GaN-Nanosäulen, welche aufgrund der durch die Nanostrukturen erhöhten Schichtdicke (vergleiche Abschnitt 6.2), vollständig vergraben sind. Als dunkler Kontrast auf der Spitze der Nanosäulen ist die auf der Säule verbliebene, restliche SiO_2 -Hartmaske sichtbar. Diese ist in etwa $700\ \text{nm}$ Tiefe vergraben. Durch das gezielte trockenchemische Ätzen des Verfüllmaterials BCB kann die Spitze wieder freigelegt werden (siehe Abbildung 6.10 rechts). Die Spitze der Nanosäule bleibt dabei durch die SiO_2 -Hartmaske geschützt und wird nicht geschädigt.

Abbildung 6.11 zeigt eine Aufnahme von Metallkontakten auf GaN-Säulen nach dem Verfüllen, Freilegen und Kontaktieren. Die GaN-Säulen haben eine Höhe von etwa $3\ \mu\text{m}$. Die Grundlage für das Ätzen der Säulen war eine ca. $3,5\ \mu\text{m}$ dicke GaN-Schicht, die bis auf die

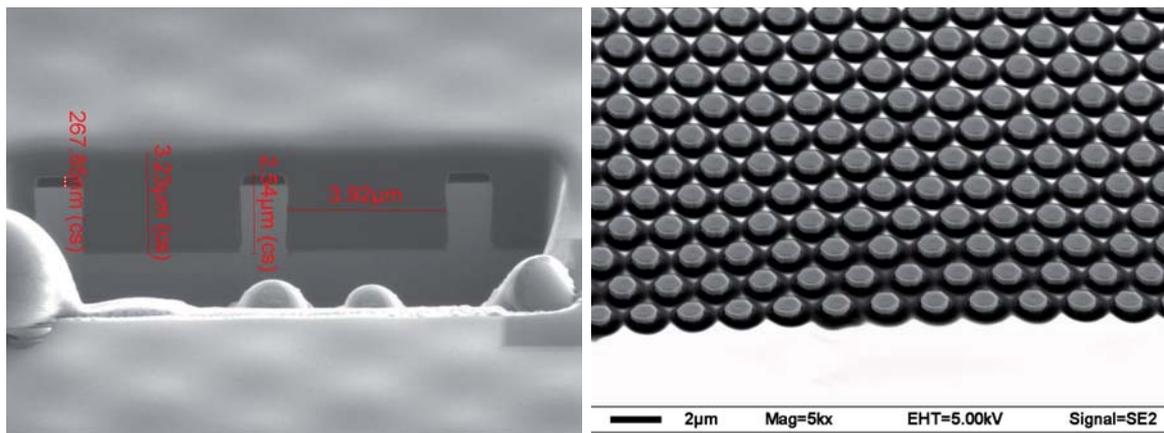


Abbildung 6.10.: Links: FIB Querschnitt von GaN-Nanosäulen verfüllt mit BCB. Die Spitzen der Säulen, welche noch mit der SiO₂-Hartmaske bedeckt sind, sind etwa 700 nm tief vergraben. Rechts: REM-Aufnahme der verfüllten GaN-Nanosäulen nach dem Freilegen der Spitzen durch einen gezielten BCB-Ätzschritt.

Pufferschicht mit nominell $3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ Silizium n-dotiert war. Die Position der Metallkontakte wurde mit einem Lift-Off Prozess bestimmt. Nach dem Aufdampfen einer SiO₂-Schicht wird diese mit Hilfe einer Photoebene strukturiert. Beim Öffnen der SiO₂-Schicht an den gewünschten Kontaktpositionen wird zugleich die noch auf der Spitze der geätzten Strukturen verbliebene SiO₂-Hartmaske für das Ätzen der Säulen entfernt. Die Haftung von SiO₂ auf der BCB-Schicht ist allerdings sehr schlecht, wodurch bei diesem Prozessschritt Probleme entstehen können. Nach dem vollflächigen Aufdampfen des Metallkontaktes wird dieser durch das verbleibende SiO₂ an den nicht gewünschten Positionen unterätzt und entfernt.

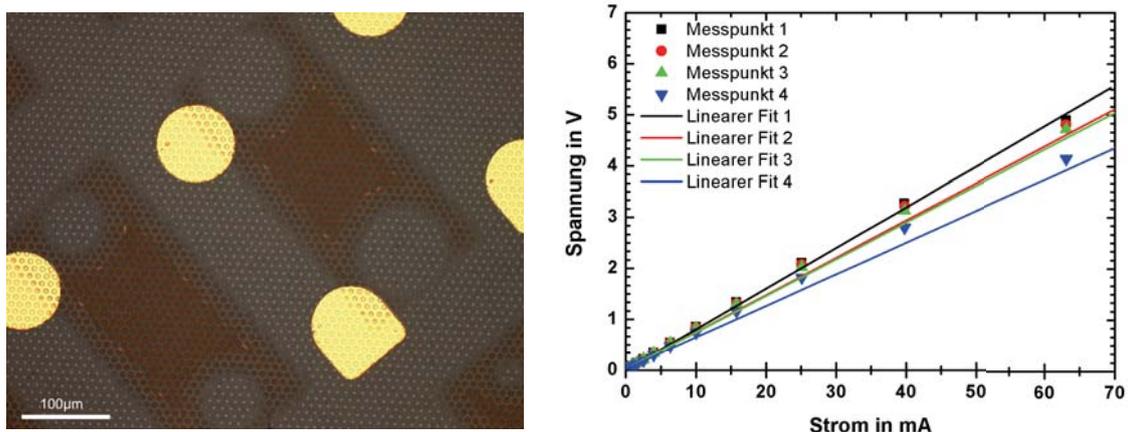


Abbildung 6.11.: Links: Metallkontakte auf GaN-Säulen mit einer nominellen n-Dotierung von $3E18 \text{ 1/cm}^3$. Die Säulen zeigen in dem gewählten Bereich sowohl einen Durchmesser als auch einen Abstand von $5 \mu\text{m}$. Rechts: Strom-Spannungskennlinien zwischen zwei Kontakten. Die Steigungen der linearen Interpolation geben den Wert für den ohmschen Widerstand.

Die Messung von Strom-Spannungskennlinien zwischen zwei Metallkontakten zeigt ein ohmsches Verhalten (siehe Abbildung 6.11 rechts). Durch die lineare Approximation der Kennlinien ergibt sich durch die Steigung der Geraden ein Serienwiderstand von $71,5 (\pm 7,2) \Omega$. Dieser relativ hohe Wert resultiert aus der Tiefe der geätzten Säulen. Der Fuß der Säulen erreicht bereits einen nur sehr schwach dotierten Bereich der GaN-Pufferschicht, was zu einem hohen Serienwiderstand führt.

6.4. Elektrolumineszenz von NanoLEDs

Die bisher vorgestellten Versuche zeigen die Möglichkeit, Nanostrukturen in eine isolierende Matrix zu betten und zu kontaktieren. Um die Funktionsfähigkeit der Prozessabfolge für NanoLEDs überprüfen zu können, wurde diese an geätzten LED-Strukturen getestet (siehe Abschnitt 6.1). Als aktive Schicht dient ein einfacher Quantenfilm, dessen Dicke und Indiumgehalt auf eine Wellenlänge von etwa 440 nm abgestimmt ist. Die Dicke der hier verwendeten p-Seite beträgt ca. 600 nm. Nach dem Verfüllen mit BCB wurde die p-Schicht durch gezieltes Rückätzen wieder freigelegt (siehe Abschnitt 6.3). Für weiterführende Tests wurden zwei Scheiben nach der Kontrolle der freigelegten p-Seite mit unterschiedlichen Kontakten versehen.

Wafer A wurde mit den in Abschnitt 6.3 beschriebenen Prozessschritten behandelt. Der hier verwendete TiPtAu-Kontakt dient der Überprüfung der Funktionsfähigkeit der elektrischen Eigenschaften. Abbildung 6.12 links zeigt den Metallkontakt auf Nanosäulen mit einem Durchmesser und einem Abstand von jeweils $5 \mu\text{m}$. Im Aufsichtsbild sind aufgrund der morphologischen Erhebungen der Nanosäulen aus dem Verfüllmaterial die einzelnen Säulen im Metallkontakt zu erkennen. Bei einer Bestromung der NanoLEDs sind in der Lichtmikroskopaufnahme nur die Reflektionen des erzeugten Lichtes an den Ätzflanken der umgebenden Nanosäulen zu beobachten (Abbildung 6.12 rechts). Die der Emissionsquelle abgewandten Flanken erscheinen hier aufgrund eines kleineren Totalreflexionswinkels heller als die zugewandten Flächen. Das Licht kann aufgrund des Brechungsindexsprungs von etwa 1,6 (BCB) auf 2,3 (GaN) sehr einfach in eine Nanosäule einkoppeln. Beim Verlassen auf der gegenüberliegenden Seite ist der Indexsprung jedoch von GaN auf BCB und die Reflexionen erhöhen sich. Die eigentlich leuchtenden Nanosäulen sind vom Metallkontakt verdeckt und es können keine Rückschlüsse gezogen werden, wie viele Nanosäulen aktiv kontaktiert werden konnten. Die Elektrolumineszenz der einzelnen Nanosäulen ist somit nur indirekt sichtbar.

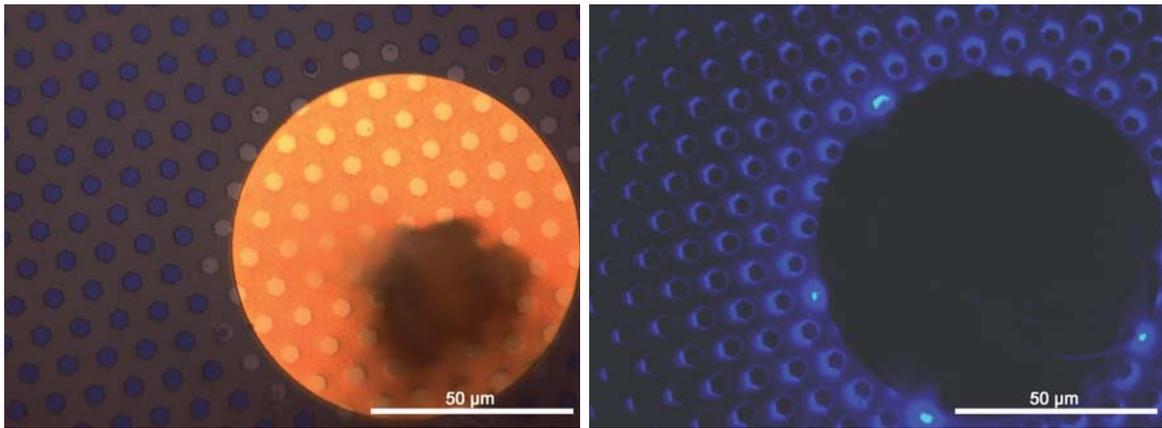


Abbildung 6.12.: Links: Auflichtaufnahme eines Metallkontaktes auf GaN-NanoLEDs. Sowohl der Durchmesser als auch der Abstand der einzelnen LEDs beträgt $5\ \mu\text{m}$. Rechts: Mikroskopaufnahme bei einem Strom von $1\ \text{mA}$. Aufgrund des undurchsichtigen Metallkontaktes sind nur die Reflexionen des erzeugten Lichtes an den geätzten Flanken der Säulen zu erkennen.

Berücksichtigt man die Fläche des Metallkontaktes von ca. $7000\ \mu\text{m}^2$ für den halbrunden Kontakt kann mit Hilfe der Flächenbelegung von etwa 23% bei einem Abstand und Durchmesser von jeweils $1000\ \text{nm}$ bzw. $2000\ \text{nm}$ die Spannung über der Stromdichte in A/cm^2 aufgetragen werden (siehe Abbildung 6.13 links). Die Kennlinie bei einem Durchmesser von $1000\ \text{nm}$ zeigt bis zu kleinsten Stromdichten keinen Nebenschluss auf. Ein solcher Nebenschluss ist exemplarisch als Negativbeispiel bei der Kennlinie für einen Durchmesser von $2000\ \text{nm}$ gezeigt. Eine Passivierung des pn-Überganges konnte somit erfolgreich realisiert werden, trotz der Schädigung der Seitenflanken durch das Ätzen der NanoLEDs. Das gewählte p-Kontaktmaterial schließt gut an und bei einer Nennstromdichte von $35\ \text{A}/\text{cm}^2$ liegt die Vorwärtsspannung bei einem sehr guten Wert von etwa $3,3\text{V}$. Die p-dotierte Schicht ist demnach durch die vorangegangenen Prozessschritte nicht signifikant beeinträchtigt worden. Bei höheren Stromdichten zeigt sich ein serieller Widerstand (siehe Abbildung 6.13). Durch die lineare Approximation der Strom-Spannungskennlinie in diesem Bereich kann der Wert des Serienwiderstandes zu etwa $450\ \Omega$ bestimmt werden. Dieser erhöhte serielle Widerstand kann auf die relativ niedrige Dotierung der sehr dicken p-Seite zurückgeführt werden. Diese wurde gewählt, um Inversionsdomänen zu vermeiden und eine ausreichend gute Aktivierbarkeit der LEDs zu garantieren (siehe Abschnitt 2.3.5). Bei einer Reihe von Messungen konnte gezeigt werden, dass eine Kontaktierung ohne signifikanten Nebenschluss von den kleinsten auf der Maske vorhandenen Durchmessern von $500\ \text{nm}$ bis zu den größten von $5\ \mu\text{m}$ möglich war.

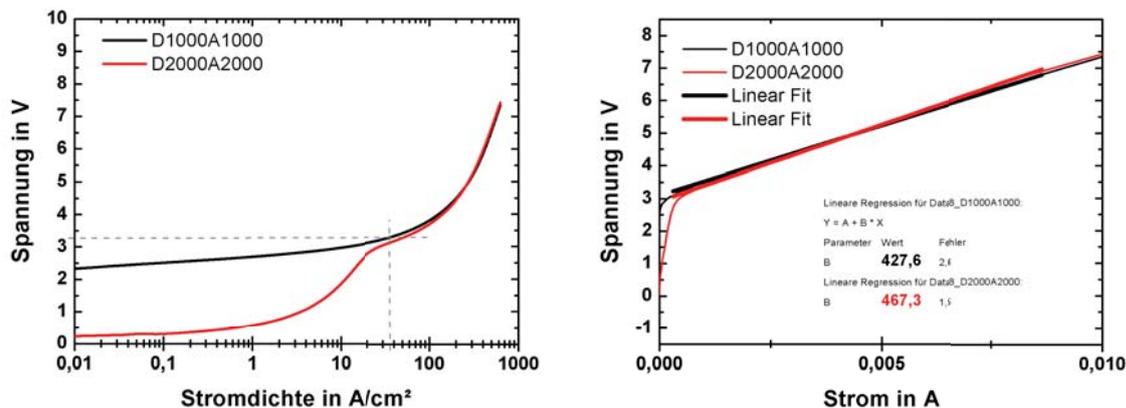


Abbildung 6.13.: Links: Auftragung der Spannung über der logarithmischen Stromdichte für Nanosäulen mit einem Durchmesser von 1000 nm und 2000 nm. Die kontaktierten NanoLEDs mit einem Durchmesser von 2000 nm zeigen einen signifikanten Nebenschluss. Die graue gestrichelte Line kennzeichnet die Nennstromdichte von 35 A/cm². Hier liegt die Vorwärtsspannung bei etwa 3,3V. Rechts: Die lineare Approximation der Strom-Spannungskennlinie ergibt den Serienwiderstand der kontaktierten NanoLEDs.

Beim zweiten Wafer B der Versuchsserie wurde zusätzlich unter den Metallkontakt eine transparente, stromaufweitende Schicht aus Indiumzinnoxid (ITO⁶) aufgedampft (siehe Abbildung 6.14 links). Diese ermöglicht bei einer Kontaktierung die Betrachtung einzelner NanoLEDs im Betrieb (siehe Abbildung 6.14 rechts). Die Auflösung des Lichtmikroskops und somit die kleinstmögliche Darstellung der Elektrolumineszenz von NanoLEDs kann sehr einfach abgeschätzt werden. Einer der wichtigsten Parameter ist hierbei die numerische Aper-

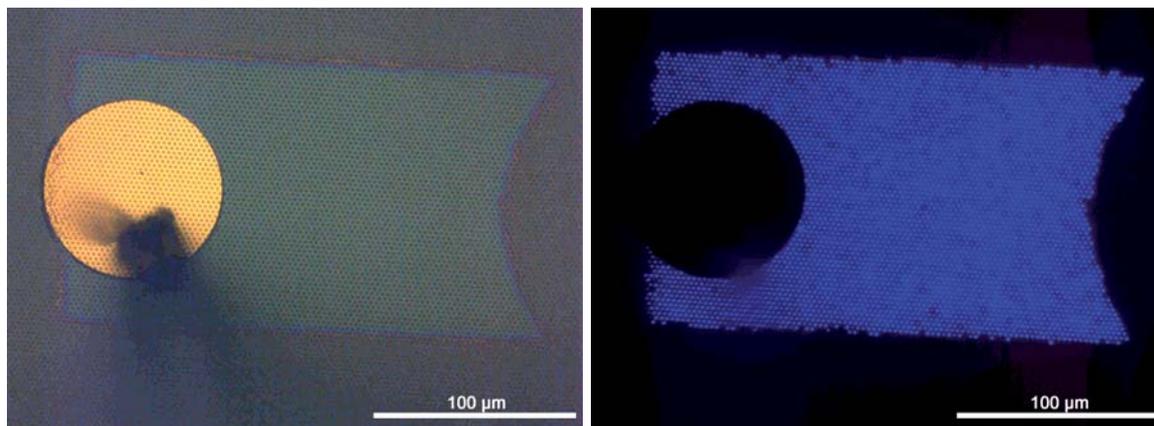


Abbildung 6.14.: Links: Auflichtaufnahme der Kombination aus einem undurchsichtigen Metallkontakt auf einem transparenten ITO-Kontakt. Die NanoLEDs mit einem Durchmesser von 700 nm und einem Abstand von 2000 nm sind unter dem transparenten Kontakt noch eindeutig zu erkennen. Rechts: Mikroskopaufnahme bei einem Strom von 20 mA. Mit Hilfe des transparenten Kontaktes kann die Funktion einzelner NanoLEDs überprüft werden.

⁶ITO ist die Abkürzung für die englische Bezeichnung indium tin oxide

Apertur NA durch

$$NA = n \cdot \sin\alpha \quad (6.3)$$

mit der Brechzahl n des zwischen Objektiv und Probenoberfläche befindlichen Materials und dem Akzeptanzwinkel α . Der Akzeptanzwinkel beschreibt hierbei den halben Öffnungswinkel. Die bestmögliche Auflösung, das heißt, der geringste Abstand d_{min} zwischen zwei nach dem Rayleighkriterium unterscheidbaren Strukturen, ist nun über die Gleichung

$$d_{min} = 0,61 \frac{\lambda}{NA} \quad (6.4)$$

bestimmt, in der λ der Wellenlänge des Lichtes entspricht [Kuchling2001]. Das im Labor verfügbare 100fach-Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 ermöglicht mit Luft zwischen Probenoberfläche und Objektiv bei einer Emissionswellenlänge von 450 nm ein d_{min} von etwa 350 nm.

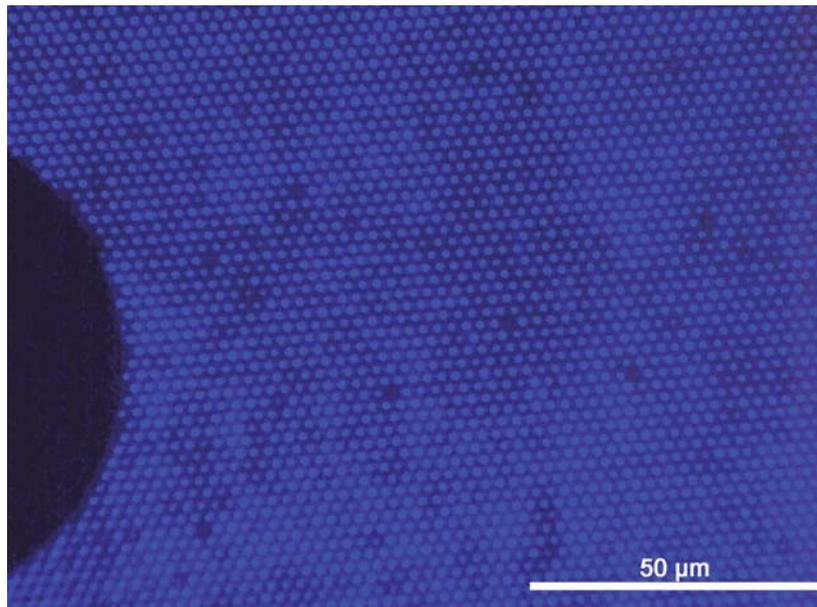


Abbildung 6.15.: Lichtmikroskopaufnahme von 3D NanoLEDs mit einem Durchmesser von 500 nm und einem Abstand von 2000 nm. Die Lumineszenz der einzelnen NanoLEDs ist sehr gut unterscheidbar. Nur sehr wenige angeschlossene NanoLEDs zeigen eine verminderte oder gar keine Emission.

Abbildung 6.15 zeigt eine Lichtmikroskopaufnahme durch den transparenten ITO-Kontakt von NanoLEDs mit einem Durchmesser von 500 nm bei einer Bestromung mit 1 mA. Die einzelnen NanoLEDs mit einem Abstand von 2 μm können gut differenziert werden. Nur sehr

wenige Strukturen zeigen eine verminderte Leuchtstärke, der Großteil aller kontaktierten LEDs ist voll funktionsfähig. Diese einzelnen Ausfälle können durch Defekte in der Epitaxieschicht oder durch ätzbedingte Schäden verursacht werden und bedeuten nicht zwingend einen schlechten Kontakt. Die Abschätzungen zur Stromdichte und deren Auftragung in Abbildung 6.13 ist somit legitim.

Die Lichtmikroskopaufnahmen in Kombination mit den elektrischen Messungen zeigen erstmals die volle Funktionsfähigkeit von 3D NanoLEDs bei OSRAM Opto Semiconductors. Im Gegensatz zu bisherigen Veröffentlichungen (siehe Kapitel 3) können die hier verwendeten Prozessschritte bis zu kleinsten Abmessungen verwendet werden.

Zusammenfassung

Geätzte Nanosäulen bieten ein ideales Testumfeld, um Prozessschritte für den Quanten-Disk Ansatz zu evaluieren. Diese konnten durch ICP-RIE trockenchemisch erzeugt werden. Die Untersuchung verschiedener Verfüllmaterialien ergab, dass der Trockenätzresist Benzo-Cyclobuten sehr gut als Matrix für die NanoLEDs geeignet ist. Erstmals konnten selbst kleinste MBE-Nanosäulen mit Durchmessern unter 50 nm verfüllt werden. Durch Transmissionsmessungen konnte gezeigt werden, dass lediglich geringe Absorptionen im blauen Spektralbereich auftreten. Einzig die Alterungseinflüsse bei erhöhter Temperatur stellen einen signifikanten Schwachpunkt dieses Materials dar.

Zum ersten Mal wurden voll funktionsfähige 3D-NanoLEDs durch eine Folge von Prozessschritten, die in einer Fertigung einsetzbar sind, demonstriert. Die Kontaktierung der Nanosäulen war mit Hilfe eines gezielten Rückätzschrittes des Verfüllmaterials BCB möglich. Messungen an rein n-dotierten GaN-Säulen zeigten ausgezeichnete ohmsche Kontakteigenschaften. Im Gegensatz zu bisherigen Veröffentlichungen [Hersee2009, Chen2010] bewegt sich die Vorwärtsspannung bei Nennstromdichte, trotz einer Vielzahl von diffizilen Prozessschritten, im Rahmen heutiger Standardleuchtdioden. Obwohl durch das Ätzen eine Schädigung der Seitenflanken der Nanosäulen auftritt, konnten durch die verwendete Prozesskette Kennlinien mit ausgezeichnetem Kleinstromverhalten realisiert werden. Durch das Aufdampfen eines transparenten Indiumzinnoxidkontaktes kann durch μ -Elektrolumineszenzaufnahmen die Funktion einzelner NanoLEDs überprüft werden. Somit konnte die vollständige Kontak-

tierung von NanoLED-Arrays mit Durchmessern von 5 μm bis hinab zu 500 nm nachgewiesen werden.

Das neben dem Wachstum der Nanosäulen gesetzte Ziel dieser Dissertation, eine vollständig funktionsfähige NanoLED, konnte somit gezeigt werden. Die Anwendung dieser Prozessschritte auf gewachsene Nanoemitter ist der nächste Schritt auf dem Weg zu dreidimensionalen LED-Strukturen.

Kapitel 7.

Zusammenfassung und Ausblick

Die Intention dieser Arbeit war die Herstellung von dreidimensionalen GaN-Nanostrukturen als Grundlage neuartiger LEDs. Im Laufe dieser Dissertation wurde erstmals das Wachstum von geordneten Nanosäulen in einer großvolumigen MOVPE-Produktionsanlage gezeigt. Darüber hinaus konnte der Einbau von InGaN-Quantenfilmen auf verschiedensten Facetten und die Dotierung der Nanostrukturen realisiert werden. Die Vision einer Core-Shell LED mit stark vergrößerter aktiver Fläche ist somit ein Stück näher gerückt. Neben den epitaktischen Neuentwicklungen konnten elektrisch und optisch voll funktionsfähige NanoLEDs und die dazu erforderlichen Chipprozesse demonstriert werden.

Eine Hauptaufgabe war es, die Position und die Dimension der gewachsenen Säulen auf dem Wachstumssubstrat exakt kontrollieren zu können. Für die Positionskontrolle wurde die Nanoimprint-Lithographie als geeignete Methode identifiziert und erfolgreich verwendet. Dies ermöglichte die Untersuchung von kleinsten Strukturvariationen auf großflächigen Areas bis zu 4“ Wafern. Im Vergleich zu den bisher verwendeten Lithographieverfahren (E-Beam [Kishino2009] und optische Lithographie [Hersee2006]) ist das ein wesentlicher Vorteil. Mit Hilfe dieser vorstrukturierten Substrate wurden weltweit erstmals die wesentlichen prozesstechnischen Parameter zur Steuerung der morphologischen Eigenschaften von Nanosäulen in einer MOVPE-Produktionsanlage detailliert bestimmt:

- Trägergaskomposition H_2/N_2
- Abstand der Nanosäulen
- Wachstumszeit
- Temperatur
- Kristallorientierung

Im Gegensatz zu bisherigen Veröffentlichungen wurden hier kontinuierliche Flusseinstellungen verwendet, ein Pulsen der Gase [Hersee2006] oder die Verwendung eines Katalysators

[Qian2004, Kuykendall2003] ist so nicht mehr notwendig. Diese Entwicklung ist für eine industrielle Fertigung von großer Bedeutung. Insbesondere die Erhöhung des Wasserstoffanteiles im Trägergasgemisch ermöglicht es, den Durchmesser der Nanosäulen zu senken und zudem gleichzeitig deren Höhe zu steigern [Bergbauer2010, Bergbauer2010b]. Während bei der alleinigen Benutzung von Stickstoff als Trägergas die Nanostrukturen die Form einer Pyramide mit den semipolaren $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ Facetten ausbilden, dominieren bei einem H_2/N_2 -Quotienten über 2 klar die unpolaren $\{10\bar{1}0\}$ Seitenfacetten. Die Morphologie von Nanosäulen kann mit diesem Parametersatz demnach erstmals gezielt gesteuert werden. Durch Variation des Abstandes zwischen den Nanosäulen kann zusätzlich Einfluss auf das Aspektverhältnis der Nanosäulen ausgeübt werden. Die Abhängigkeit des Aspektverhältnisses von Trägergasgemisch und Abstand ist in Abbildung 7.1 dargestellt.

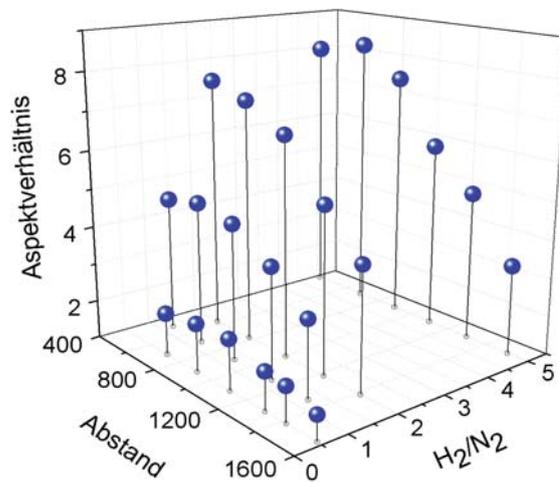


Abbildung 7.1.: Auftragung des Aspektverhältnisses der Nanosäulen für verschiedene Trägergasgemische H_2/N_2 und Abstände zwischen den Maskenöffnungen bei einer konstanten Wachstumszeit von 300 s.

Des Weiteren wurde das Aspektverhältnis über die Änderung der Wachstumszeit gesteuert. Mit steigender Dauer erhöht sich die vertikale Abmessung der Nanosäule, während die laterale Wachstumsrate auf geringem Niveau bleibt. Die erreichten Aspektverhältnisse sind vergleichbar mit den besten bisher veröffentlichten Ergebnissen für das Wachstum von positionskontrollierten Nanosäulen [Hersee2006, Kishino2009]

Die Ausbildung der unterschiedlichen Kristallformen in Abhängigkeit der Wachstumsrichtung und Trägergaskomposition konnte mittels eines Modells, das die Passivierung der $(000\bar{1})$ und $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ Wachstumsfronten durch Wasserstoff beschreibt, erklärt werden [SFLi2010]. Aufgrund der Kristallstruktur erwies sich die N-polare Orientierung bei den gegebenen Reaktoreinstellungen für das Wachstum von Nanosäulen als besonders vorteilhaft für das Erlangen hoher Aspektverhältnisse.

Die hervorragende Materialqualität der beiden semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ und $\{10\bar{1}2\}$ Facetten konnte durch die strukturelle TEM-Analyse der Nanosäulen festgestellt werden. Dies steht in guter Übereinstimmung mit bisherigen Ergebnissen von Hersee et al. und Colby et al. [Hersee2008, Colby2010]. Es traten jedoch auch Schraubenversetzungen auf, welche die gesamte Nanosäule vom Nukleationsbereich aus beginnend durchlaufen. Ein Teil dieser Versetzungen kann durch ein Abknicken in Richtung Oberfläche gefiltert werden, was zu einer Reduktion der Defektdichte führt [Bergbauer2010]. Die für ein dreidimensionales Wachstum notwendigen, sehr metallreichen Einstellungen begünstigen den Einbau von Kohlenstoff in zweidimensionalen Schichten. Die Anwesenheit einer gelben Defektlumineszenz in den gewachsenen Nanosäulen ist ein Hinweis dafür, dass auch hier ein gewisser Anteil an Kohlenstoff eingebaut wird. Kathodolumineszenz-Messungen zeigten jedoch übereinstimmend mit den TEM-Analysen, dass mit Verlauf des Wachstums, also mit zunehmender Höhe der Nanosäulen, die gelbe Defektlumineszenz abnimmt und folglich die Materialqualität ansteigt. Ein Wachstum auf GaN-Templates verspricht aufgrund der im Vergleich zu Saphir verbesserten Nukleation eine weitere Absenkung der Defektkonzentration.

Für die Realisierung von NanoLEDs bedarf es neben dem Einbau von Indium in die Nanostrukturen für die aktive Zone auch einer n- und p-Dotierung zur elektrischen Kontaktierung. In Kapitel 5 konnten zunächst durch die Auswertung von Photolumineszenz- und Kathodolumineszenzmessungen Erkenntnisse zum Einbaumechanismus von Indium in Nanosäulen gewonnen werden. Insbesondere die Verknüpfung mit TEM-Analysen ermöglichte den Nachweis, dass sich die aktive Schicht wie ein Mantel um die komplette Nanostruktur zieht. Dies steht in guter Übereinstimmung mit den Core-Shell Ergebnissen von Qian et al. [Qian2004, Qian2008], bei denen Quantenfilme auf den senkrecht zur Wachstumsebene vorhandenen Facetten demonstriert werden konnten. Allerdings geht der in dieser Arbeit gezeigte Einbau von Indium [Bergbauer2010, Waag2010] einen wesentlichen Schritt über die bisher auf Katalysator-freien Nanosäulen gezeigten Ergebnisse hinaus [Hersee2008]. Ein reines Quantendisk-Wachstum, wie es in der MBE oder HVPE auftritt [Kikuchi2004, Kim2004], konnte bei den Experimenten nicht beobachtet werden.

Der Einbau von Indium auf allen in den Experimenten aufgetretenen Facetten der Nanosäulen - und somit Core-Shell Wachstum - konnte erfolgreich realisiert werden. Die Emissionswellenlänge variiert je nach Wachstumsfacette bei gleichen Wachstumsbedingungen. TEM Untersuchungen zeigten, dass neben dem piezoelektrischen Feld ein unterschiedlich hoher Einbau von Indium auf den verschiedenen Facetten für die differierenden Emissionswellenlängen verantwortlich ist. Ein solch von der Facette abhängiger Einbau konnte auch von Qian et al. [Qian2008] auf Nanosäulen und von weiteren Gruppen auf pyramidalen Strukturen beobachtet werden [Fuendling2009, Wunderer2010].

Erstmalig konnte gezeigt werden, dass in einer MOVPE durch den Abstand der Nanosäulen Einfluss auf die Emissionswellenlänge genommen werden kann. So steigt mit zunehmendem Abstand die Wellenlänge an. Ähnliche Beobachtungen konnten auch von Sekiguchi et al. bei Experimenten in der MBE gemacht werden [Sekiguchi2010]. Während in der MBE eine Materialabschattung für eine Wellenlängenänderung verantwortlich ist, resultiert in der MOVPE diese aus sich ändernden Quantenfilmdicken durch unterschiedliche Wachstumsraten. Diese erhöht sich mit steigendem Abstand zwischen den Nanosäulen. Durch die größeren Abmessungen der Quantenfilme ist der piezoelektrische Effekt für die Rotverschiebung der Wellenlänge hauptverantwortlich.

Neben dem Einbau von Indium konnte die n- und p-Leitfähigkeit von Nanostrukturen demonstriert werden. Während bei Köster et al. ein signifikanter Einfluss der n-Dotierung auf die Form und Dichte von selbstorganisierten Nanosäulen beobachtet werden konnte [Koester2010], ändert sich bei den in dieser Dissertation vorgestellten Wachstumsbedingungen die Form der Nanosäulen bei moderaten Dotierstoffkonzentrationen nicht. Die Tatsache, dass auch die Mg-dotierte p-Schicht die gesamte Nanostruktur umhüllt, ist eine optimale Ergänzung zum Core-Shell Wachstum der aktiven InGaN/GaN-Schichten. Ein solches Verhalten wurde auch bei Qian et al. trotz des Wachstums mit Katalysator festgestellt [Qian2008], Hersee et al. zeigten jedoch widersprüchlich dazu in ihrer jüngsten Veröffentlichung einen vertikalen pn-Übergang [Hersee2009]. So konnte mit Hilfe einer teilweisen Koaleszenz der Mg dotierten Schicht Elektrolumineszenz von gewachsenen Nanostrukturen demonstriert werden.

Die Entwicklung eines fertigungstauglichen Chipprozesses ist ein weiterer essentieller Schritt auf dem Weg zu NanoLEDs. Anhand von geätzten Nanosäulen wurden einzelne Prozessschritte für einen möglichen Quantendisk Chip-Prozess evaluiert. Dabei konnten selbst kleinste MBE-Nanosäulen mit Durchmessern unter 50 nm in eine geeignete Matrix mit sehr guten Verfüll- und Passivierungseigenschaften gebettet werden. Nach dem erfolgreichen Verfüllen und dem Freilegen der Spitzen war die Kontaktierung der Nanosäulen und somit der elektrische Betrieb einer vollständigen NanoLED-Struktur möglich. Die Kontaktierung der NanoLEDs mit einem Metallkontakt zeigte bei Nennstromdichte ein ausgezeichnetes elektrisches Verhalten, wodurch die prinzipielle Funktionsfähigkeit dieser Prozessabfolge demonstriert wurde. Im Gegensatz zu bisherigen Veröffentlichungen [Hersee2009, Chen2010] bewegt sich die Vorwärtsspannung bei Nennstromdichte im Rahmen heutiger Standardleuchtdioden. Durch die verwendete Prozesskette wurden Kennlinien mit sehr stabilem Kleinstromverhalten realisiert.

Durch das Aufdampfen eines transparenten Indiumzinnoxidkontaktes konnte mit Hilfe von μ -Elektrolumineszenzaufnahmen in einem Ensemble von fast 10000 gleichzeitig bestromten

Säulen die Funktion individueller NanoLEDs überprüft werden. Diese Methode bestätigte die vollständige Kontaktierung für NanoLED-Arrays mit Durchmessern von 5 μm bis hinab zu 500 nm. Das neben dem Wachstum der Nanosäulen gesetzte Ziel dieser Dissertation, die Entwicklung einer vollständig funktionsfähigen NanoLED, wurde somit erfolgreich erreicht.

Ausblick

Die Entwicklung von NanoLEDs konnte in letzter Zeit stark vorangetrieben werden. Um die Technik letztendlich am Markt zu einem erfolgreichen Bauteil führen zu können, sind jedoch noch weitere wichtige Schritte notwendig.

Insbesondere eine Verbesserung der Homogenität der Nanosäulen ist für die Kontrolle der Emissionswellenlänge und für die Entwicklung eines stabilen Chipprozesses von essentieller Bedeutung. Ein geplanter Umbau der Anlage, bei dem die Ammoniakzufuhr wesentlich reduziert werden kann, ermöglicht eine signifikante Reduktion der Wachstumsrate bei äquivalentem V/III-Verhältnis und eine damit verbundene Verbesserung der kristallinen Qualität. Darüber hinaus kann das V/III-Verhältnis noch weiter abgesenkt werden, wodurch eine Verbesserung des Aspektverhältnisses für Nanosäulen in $[0001]$ -Orientierung erwartet werden kann. Ein zweistufiger Nukleationsprozess, wie er derzeit am IHT der TU Braunschweig entwickelt wird, kann darüber hinaus die Homogenität verbessern und das Auftreten von Inversionsdomänen mindern. Die Materialqualität wird so in Zukunft noch weiter gesteigert werden.

Um den Core-Shell Ansatz effektiv nutzen zu können, muss der kontrollierte Einbau von Indium auf den verschiedenen Facetten noch weiter vorangetrieben werden. Insbesondere Unterschiede in Abhängigkeit der Orientierung der Nanosäulen bedürfen noch einer genaueren Untersuchung. Darüber hinaus ist eine detaillierte Kontrolle der n- und p- Ladungsträgerkonzentrationen notwendig. Der Nanonadelmessplatz am IHT der TU Braunschweig bietet hier die einmalige Möglichkeit, Zugriff auf das elektrische Verhalten kleinster Strukturen zu gewinnen und in Zukunft ein tieferes Verständnis für die Dotierung zu generieren. Auch gilt es, unabhängig vom Quanten-Disk Ansatz, für eine Core-Shell LED ein geeignetes Chipkonzept zu entwickeln. Eine Hauptaufgabe davon wird sein, die relativ schlecht leitfähige p-Seite mit einer stromaufweitenden Schicht zu versehen, die darüber hinaus auch gute Transmissionseigenschaften im sichtbaren Bereich besitzen muss.

Die Umsetzung dieser und noch weiterer wissenschaftlicher und technologischer Herausforderungen wird darüber entscheiden, ob die Vorteile einer 3-dimensionalen LED-Struktur

den dafür notwendigen, erhöhten Prozessaufwand aufwiegen können. Der Fortschritt in der Entwicklung der Nanostrukturen, insbesondere in den angesprochenen Punkten, ist von essentieller Bedeutung für eine erfolgreiche kommerzielle Umsetzung der neuartigen NanoLEDs. Die im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse und Ergebnisse können als solide Basis dafür dienen.

Anhang A.

Anhang

Der Anhang soll ergänzend zum Grundlagenkapitel die Funktionsweise einer LED beschreiben. Er soll das Verständnis für die in der Dissertation beschriebenen Ergebnisse erleichtern. Dazu wird kurz die Funktionsweise einer Leuchtdiode und das stromabhängige Verhalten einer SQW-LED beschrieben [Bergbauer2008].

A.1. Funktionsweise einer Leuchtdiode

Um strahlende Rekombination in einem Halbleiter zu erzeugen, sind grundlegende physikalische Voraussetzungen zu erfüllen [Bludau1995, Daiminger2006].

Angeregter Zustand

In erster Linie muss sich der Halbleiter in einem Nichtgleichgewichtszustand - auch angeregter Zustand genannt - befinden. Das heißt, dass das Produkt der Ladungsträgerkonzentrationen n und p größer als das Quadrat der intrinsischen Ladungsträgerdichte n_i sein muss:

$$n \cdot p > n_i^2. \quad (\text{A.1})$$

Diese überschüssigen Ladungsträger können rekombinieren und Licht aussenden. Wendet man die sogenannte Boltzmann-Näherung an, die für einen nicht entarteten Halbleiter eine gute Näherung gibt, erhält man für die Ladungsträgerkonzentrationen

$$n \approx N_c \cdot e^{\frac{E_{F_c} - E_c}{k_B T}} \quad (\text{A.2})$$

und

$$p \approx N_v \cdot e^{\frac{E_v - E_{F_v}}{k_B T}}. \quad (\text{A.3})$$

Hierbei entsprechen N_c und N_v den effektiven Zustandsdichten des Leitungs- bzw. des Valenzbandes, E_{F_c} und E_{F_v} den Quasiferminiveaus, E_c und E_v der Leitungs- und Valenzbandkante,

sowie k_B der Boltzmannkonstante und T der Temperatur. Bildet man nun das Produkt erhält man

$$n \cdot p = n_i^2 \cdot e^{\frac{E_{F_c} - E_{F_v}}{k_B T}} \quad (\text{A.4})$$

mit der intrinsischen Konzentration

$$n_i^2 := N_c N_v \cdot e^{-\frac{E_g}{k_B T}} \quad (\text{A.5})$$

und dem Bandabstand E_g als Differenz der Leitungsbandkante E_c und der Valenzbandkante E_v . Die intrinsische Konzentration ist hierbei eine Materialkonstante, die von der Temperatur abhängt. Aus den Gleichungen A.1 und A.4 ist ersichtlich, dass in dem Fall $E_{F_c} > E_{F_v}$ der Halbleiter angeregt ist und prinzipiell Lichtemission möglich ist. Grundsätzlich ist dies bei einem in Flussrichtung gepolten pn-Übergang der Fall.

Strahlende Rekombination

Eine Emission von Licht entsteht allerdings nur dann, wenn die angeregten Ladungsträger über strahlende Energieübergänge rekombinieren. Diese stehen in Konkurrenz mit nichtstrahlenden Übergängen (siehe Abbildung A.1). Die Ladungsträgerdichten n und p setzen sich aus

$$n = n_0 + \Delta n \quad (\text{A.6})$$

und

$$p = p_0 + \Delta p \quad (\text{A.7})$$

zusammen, wobei n_0 und p_0 den Grundladungsträgerdichten sowie Δn und Δp den Überschussladungsträgerdichten entsprechen. Bei elektrischer Anregung muss immer

$$\Delta n(t) = \Delta p(t) \quad (\text{A.8})$$

gelten. Befindet sich ein Halbleiter im angeregten Zustand und sind die Überschussladungsträgerdichten so gering, dass der Halbleiter nicht entartet ist, gilt Gleichung A.4. Die Rekombinationsrate R entspricht der Anzahl der Rekombinationen pro Zeit und Volumen:

$$R = B \cdot n \cdot p. \quad (\text{A.9})$$

Der Koeffizient B in Gleichung A.9 entspricht der Roosbroeck-Shockley Rekombinationswahrscheinlichkeit¹, dessen Wert im Bereich von $10^{-10} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$ liegt [Schubert2006]. Für die strahl-

¹ B wird in der Literatur auch oft als bimolecular recombination coefficient bezeichnet

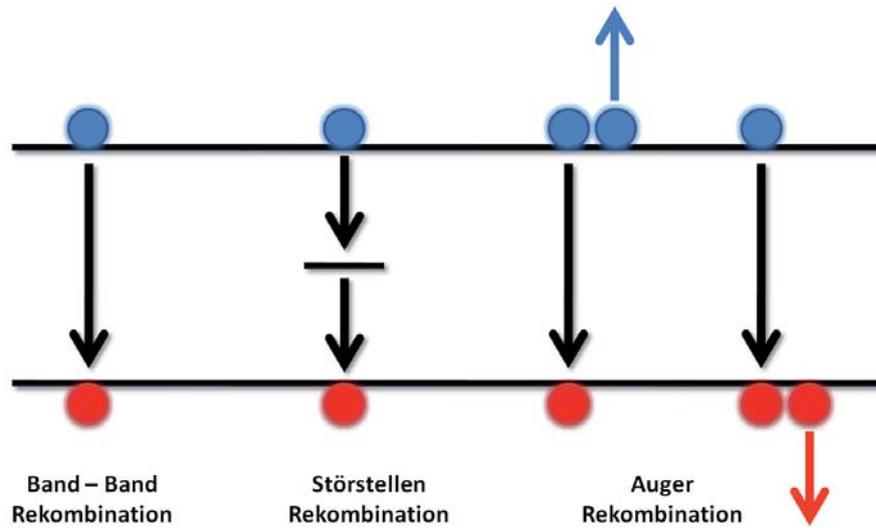


Abbildung A.1.: Schematische Darstellung der Band-Band, der Shockley-Read-Hall Rekombination über Störstellen und der Auger Rekombination.

lende Rekombination mit geringer Anregungsdichte $\Delta n \ll n_0 + p_0$ kann nun folgende Näherung gemacht werden:

$$R \approx B n_0 p_0 + B(n_0 + p_0) \Delta n. \quad (\text{A.10})$$

$B n_0 p_0$ kann hierbei als die Gleichgewichtsrekombinationsrate R_0 und $B(n_0 + p_0) \Delta n$ als die Überschussrekombinationsrate ΔR bezeichnet werden. Nun kann man eine Ratengleichung für die zeitabhängige Ladungsträgerdichte mit

$$\frac{dn(t)}{dt} = G - R = (G_0 + \Delta G) - (R_0 + \Delta R) \quad (\text{A.11})$$

bilden. Im thermodynamischen Gleichgewicht gilt stets $\frac{dn(t)}{dt} = 0$ und somit folgt, dass $G_0 = R_0$. Demnach ergibt sich aus Gleichung A.11 bei Abschalten einer externen Anregung die Gleichung

$$\frac{dn(t)}{dt} = -\Delta R = -B(n_0 + p_0) \Delta n, \quad (\text{A.12})$$

aus der die Ladungsträgerlebensdauer für strahlende Prozesse extrahiert werden kann. Durch Separation der Variablen erhält man somit aus der Differentialgleichung die Lösung

$$\Delta n(t) = \Delta n(t=0) \cdot e^{-B(n_0+p_0) \cdot t} \quad (\text{A.13})$$

und die Ladungsträgerlebensdauer

$$\tau = \frac{1}{B(n_0 + p_0)}. \quad (\text{A.14})$$

Für p-dotierte Gebiete und äquivalent für n-dotierte Gebiete kann man $n_0 + p_0$ durch die Akzeptordichte N_A bzw. die Donatordichte N_D ersetzen. Bei hoher Anregungsdichte erhält man mit gleicher Vorgehensweise für

$$\Delta n(t) = \frac{1}{Bt + \frac{1}{\Delta n(t=0)}} \quad (\text{A.15})$$

und

$$\tau = t + \frac{1}{B\Delta n(t=0)}. \quad (\text{A.16})$$

Nichtstrahlende Rekombination

Zu den nichtstrahlenden Rekombinationen zählen alle Übergänge eines Elektrons vom Leitungs- ins Valenzband, die keine Emission im sichtbaren Spektralbereich erzeugen. Die hier am häufigsten genannten sind die Shockley-Read-Hall Rekombination (R_{SRH}) und die Auger Rekombination. Während die R_{SRH} bei geringen Strömen zum Tragen kommt, stellt die Auger Rekombination erst bei hohen Stromdichten einen nennenswerten Anteil. Die Shockley-Read-Hall Rekombination

$$R_{SRH} = \frac{p_0\Delta n + n_0\Delta p + \Delta n\Delta p}{\frac{n_0+n_1+\Delta n}{N_T\sigma_p v_p} + \frac{p_0+p_1+\Delta p}{N_T\sigma_n v_n}} \quad (\text{A.17})$$

ist bei guter Materialqualität erst bei Strömen im μA Bereich und darunter ein wesentlicher Faktor, wobei N_T die Dichte der Störstellen, v_p bzw. v_n die thermische Geschwindigkeit der Löcher bzw. der Elektronen und σ_p bzw. σ_n der Wirkungsquerschnitt der Störstellen ist. Die Werte n_1 und p_1 sind durch

$$n_1 = n_i e^{\frac{E_T - E_{Fi}}{k_b T}} \quad (\text{A.18})$$

und

$$p_1 = p_i e^{\frac{E_{Fi} - E_T}{k_b T}} \quad (\text{A.19})$$

bestimmt, wobei hier E_{Fi} dem Fermi-niveau des intrinsischen Halbleiters, E_T dem Energieniveau der Störstelle, k_b der Boltzmannkonstante und T der absoluten Temperatur entspricht. Nimmt man nun folgende Vereinfachungen und Abkürzungen vor

- $\tau_n = \frac{1}{N_T\sigma_n v_n}$
- $\tau_p = \frac{1}{N_T\sigma_p v_p}$
- $\tau_n = \tau_p = \tau$
- $\Delta n\Delta p \gg p_0\Delta n; n_0\Delta p$
- $\Delta n = \Delta p$
- $E_T = E_{Fi}$ (Störstelle in Bandmitte)

wird aus Gleichung A.17

$$R_{SRH} \approx \frac{\Delta n}{2\tau}. \quad (\text{A.20})$$

Hieraus ist ersichtlich, dass R_{SRH} direkt proportional zur Überschussladungsträgerdichte ist und stark von der Lebensdauer des nichtstrahlenden Vorganges abhängt.

Mit Hilfe der Augerrekombination beschreibt man eine Elektron-Loch Rekombination unter Abgabe der Energie an ein Elektron im Leitungsband bzw. ein Loch im Valenzband (siehe Abbildung A.1). Das Elektron bzw. Loch wird mit Hilfe dieser Energie in einen höheren Zustand innerhalb des jeweiligen Bandes gehoben. Die Gleichungen

$$R_{Auger,p} = C_p \cdot n \cdot p^2 \quad (\text{A.21})$$

$$R_{Auger,e} = C_e \cdot p \cdot n^2 \quad (\text{A.22})$$

beschreiben die Augerrekombinationsrate. In der Literatur werden für den Augerkoeffizient C bei InGaN/GaN Werte im Bereich von $5 \cdot 10^{-28} \frac{\text{cm}^6}{\text{s}}$ bis $10^{-34} \frac{\text{cm}^6}{\text{s}}$ diskutiert [Shen2007]. Aus unseren Messungen folgt ein Augerkoeffizient in der Größenordnung von $10^{-31} \frac{\text{cm}^6}{\text{s}}$ und man kann abschätzen, dass dieser Verlustprozess bei geringen Stromdichten nicht dominiert. Unter der somit motivierten Annahme einer hohen Anregungsdichte, folgt

$$R_{Auger} = C \cdot n^3 \quad (\text{A.23})$$

und demnach eine direkte Proportionalität zur kubischen Ladungsträgerdichte.

Konkurrenz zwischen strahlender und nichtstrahlender Rekombination

Da die strahlende und nichtstrahlende Rekombination zeitgleich auftreten, stehen sie in direkter Konkurrenz zueinander:

$$\frac{d\Delta n(t)}{dt} = \frac{d\Delta n(t)}{dt}|_{radiative} + \frac{d\Delta n(t)}{dt}|_{nonradiative} = -\frac{\Delta n(t)}{\tau_r} - \frac{\Delta n(t)}{\tau_{nr}}. \quad (\text{A.24})$$

Hieraus lässt sich eine effektive Ladungsträgerlebensdauer τ_{eff} errechnen:

$$\frac{1}{\tau_{eff}} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{nr}}. \quad (\text{A.25})$$

Aus den Gleichungen A.24 und A.25 ist direkt ersichtlich, dass der Prozess mit der geringeren Zeitkonstante dominiert.

Gesamtheitlich betrachtet folgt die nichtstrahlende Rekombination über Störstellen der linearen Dichte, die strahlende Band-Band Rekombination der quadratischen Dichte und die

ebenfalls nichtstrahlende Augerrekombination der kubischen Dichte der Ladungsträgerkonzentration. Dies kann mit

$$I \sim A \cdot n + B \cdot n^2 + C \cdot n^3 \quad (\text{A.26})$$

beschrieben werden. Kommerziell verwendete LEDs werden in der Regel bei hohen Stromdichten betrieben, bei welchen die Parameter B und C dominieren. Abschnitt A.2 veranschaulicht anhand einer Einfachquantenfilmstruktur im grünen Spektralbereich den Einflussbereich dieser drei Parameter.

Die Diodenkennlinie

Berücksichtigt man beim Diodenersatzschaltbild keine Serien- und Parallelwiderstände, lässt sich die ideale Diodenkennlinie durch die Shockleygleichung

$$I(U) = I_S \cdot \left[e^{\frac{U}{\eta U_T}} - 1 \right] \quad (\text{A.27})$$

beschreiben. Hierbei ist U_T definiert als die Temperaturspannung $\frac{k_B T}{q}$, die das Produkt aus Boltzmannkonstante und Temperatur durch die Elementarladung darstellt. Der Idealitätsfaktor η ist ein phenomenologischer Faktor, der die Steigung der Exponentialfunktion an die jeweilige Diode anpasst. Im Idealfall ist dieser 1, er kann allerdings Werte bis zu 6 annehmen. Die Spannung U beschreibt die an der Diode anliegende Spannung, die stets kleiner als die Diffusionsspannung

$$U_D = U_T \ln \left(\frac{N_A N_D}{n_i^2} \right) \quad (\text{A.28})$$

sein muss. I_S beschreibt die Sättigungsstromstärke, welche vom konstruktiven Aufbau und von den Materialparametern abhängt [Bludau1995]. Sie ist durch

$$I_S = qA \left(\frac{\sqrt{D_p}}{\sqrt{\tau_p}} \frac{n_i^2}{N_D} + \frac{\sqrt{D_n}}{\sqrt{\tau_n}} \frac{n_i^2}{N_A} \right) \quad (\text{A.29})$$

definiert, wobei q der Elementarladung, τ_n und τ_p den Minoritätsträgerlebensdauern, A der aktiven Fläche der Diode und D_p sowie D_n der Einstengleichung

$$D_n = \mu_n \frac{k_B T}{q} \quad \text{bzw.} \quad D_p = \mu_p \frac{k_B T}{q} \quad (\text{A.30})$$

entspricht. Die Variablen μ_n und μ_p beschreiben die Elektronen- bzw. die Löcherbeweglichkeit.

Heteroübergänge und Quantentröge

Legt man an einen pn-Homoübergang eine Spannung an, rekombinieren die Ladungsträger in einem weiten Bereich, der über die Diffusionslängen

$$L_n = \sqrt{D_n \tau_n} \quad \text{bzw.} \quad L_p = \sqrt{D_p \tau_p} \quad (\text{A.31})$$

bestimmt ist [Schubert2006]). Um die Ladungsträgerdichte für eine höhere Rekombinationsrate zu erhöhen (siehe Gleichung A.9), besteht die aktive Schicht aus einem Material mit geringerer Bandlücke als das umgebende Material. Dies kann zum Beispiel InGaN eingebettet in GaN sein (siehe Kapitel 2.1.2). Durch die unterschiedlichen Bandlücken der Materialien ergeben sich an den Grenzflächen Bandkantendiskontinuitäten. Diese teilen sich auf Leitungsband und Valenzband auf und entsprechen in Summe dem Unterschied der Energielücke der beiden Materialien [Pollmann1983]. Die Bandkantendiskontinuitäten sind durch die piezoelektrische Polarisierung beeinflusst, was eine Bestimmung sehr ungenau macht [Martin1996, Walle1997]. In der Regel wird ein Verhältnis von Valenz- zu Leitungsbanddiskontinuität von etwa 1 zu 2 angenommen.

Die Bandlücke von InGaN befindet sich stets innerhalb der Bandlücke von GaN, weshalb dieser Heteroübergang auch oft als Typ-I Heteroübergang bezeichnet wird. Ein Vorteil der höheren Bandlücke des umgebenden Materials ist deren Transparenz für die Photonen, die in der aktiven Schicht mit kleiner Bandlücke entstehen.

Verkleinert man die eingebettete Schicht bis auf wenige nm, spricht man von Quantentrögen (QW²), die das dreidimensionale Bulk Material in einer Dimension einschränken. Bei Dicken, die in etwa der De-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger entsprechen, treten Quantisierungseffekte auf [Klingshirn2005]. Setzt man mehrere Quantentröge hintereinander spricht man von Multi-Quantentrögen (MQW³).

Allerdings treten auch in Doppelheterostrukturen Ladungsträgerverluste auf. Aufgrund des Tunneleffekts der Quantenmechanik besteht eine gewisse Aufenthaltswahrscheinlichkeit für Ladungsträger in der Barriere. Durch die Verkippung des Energieschemas der Quantentröge durch piezoelektrische Felder (siehe Kapitel 2.1.3) reicht die Wellenfunktion der Ladungsträger weiter in die Barrieren und somit erhöht sich die Wahrscheinlichkeit für unerwünschte Rekombinationen außerhalb der Quantentröge. Wenn Ladungsträger aufgrund ihrer Fermi-Dirac Verteilung eine Energie größer der Bandlücke besitzen, gelangen sie vermehrt in den Bereich der Barriere und rekombinieren dort meist nichtstrahlend oder mit einer ungewünschten Wellenlänge.

²QW steht für quantum well

³MQW steht für multiple quantum wells

Erhöht man den Strom soweit, dass das Quasiferminiveau die Leitungsbandkante bzw. die Valenzbandkante der Barriere erreicht, spricht man vom sogenannten Überschießen der Ladungsträger (Carrier Overflow). Ob dies zuerst im Leitungsband oder im Valenzband passiert, hängt stark von den Banddiskontinuitäten und den Zustandsdichten im jeweiligen Band ab. Um einen solchen Ladungsträgerverlust zu verringern, werden zusätzliche dünne Schichten mit Bandlücken oberhalb der Barriere eingebaut. Diese sollen über die aktive Schicht hinaus geratene Ladungsträger zurückreflektieren und somit für ein verbessertes Confinement sorgen.

A.2. Stromabhängiges Verhalten einer InGaN SQW LED

Um grundsätzlich das stromabhängige Verhalten einer InGaN LED besser zu verstehen, werden in diesem Kapitel die aus der Literatur bekannten stromabhängigen Effekte mit Messungen an einer grünen SQW LED verglichen [Bergbauer2008].

Abschirmung der Piezofelder

Der Einfluss der piezoelektrischen Polarisation hat einen wesentlichen Anteil an der Charakteristik von InGaN/GaN LEDs (siehe Kapitel 2.1.3). Durch die Verkipfung der Töpfe sinkt der energetische Abstand der Grundzustände im Quantentrog und die Lumineszenz erfährt dadurch eine starke Rotverschiebung. Diese intrinsische Verkipfung kann durch Ladungsträger in den Töpfen, zum Beispiel bei Stromfluss durch die Diode, abgeschirmt werden. Durch die Trennung von Elektronen und Löchern im Quantentrog entsteht ein Dipol, dessen elektrisches Feld dem piezoelektrischen Feld entgegenwirkt. Die Bänder entkippen aufgrund dessen und es findet eine Blauverschiebung des Emissionsspektrums mit steigender Stromdichte statt. Betrachtet man nun die Spitzenwellenlänge des grünen SQWs, so schiebt diese, wie nach dem Piezofeldmodell erwartet, mit steigender Stromdichte in Richtung kürzere Wellenlängen (siehe Abbildung A.2).

Dieser Piezofeldeffekt kann zur Erzeugung langwelliger, grüner Leuchtdioden von Vorteil sein. Durch die im Vergleich zur Bandkantenemission höheren Wellenlänge wird weniger Indium in den Quantentrögen benötigt, womit auch eine bessere Materialqualität möglich ist (siehe Abschnitt 2.3.6). Allerdings ist die Blauverschiebung bei hohen Stromdichten ein Nachteil bei Anwendungen, in denen Farbtreue wichtig ist.

Durch die Verkipfung des Topfes sinkt der Überlapp der Elektronen- und Lochwellenfunktion (siehe Gleichung 2.6) und somit steigt die strahlende Ladungsträgerlebensdauer [Hangleiter1998]. Entkippt man nun den Topf, steigt der Überlapp der Wellenfunktionen und die strahlende Zeitkonstante sinkt. Betrachtet man nun die Zeitkonstanten des grünen SQW über einen weiten Strombereich (Abbildung A.3), sinken diese stark ab und bestätigen die Theorie der Abschirmung der piezoelektrischen Polarisation in den Töpfen.

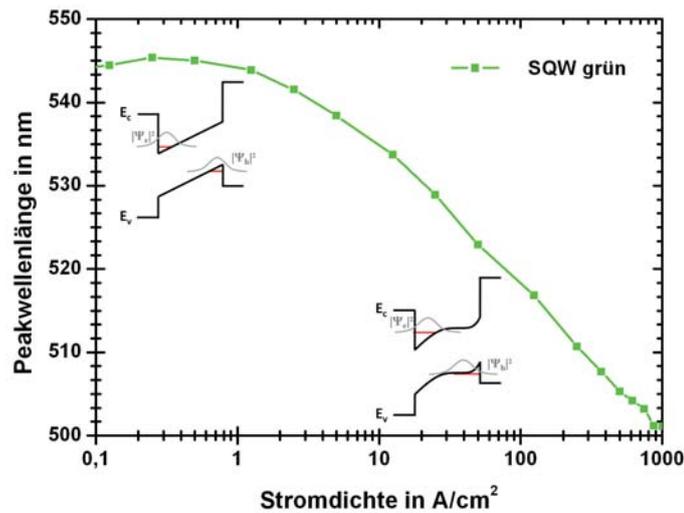


Abbildung A.2.: Peakwellenlänge des grünen SQW über einen weiten logarithmisch aufgetragenen Stromdichtebereich. Die Wellenlänge schiebt aufgrund der Abschirmung der piezoelektrischen Polarisierung im Quantentrog in Richtung blau. Die kleinen schematischen Darstellungen der Energiebandkanten zeigen die Abschirmung der Piezofelder und den daraus resultierenden größeren energetischen Abstand der Grundenergieniveaus.

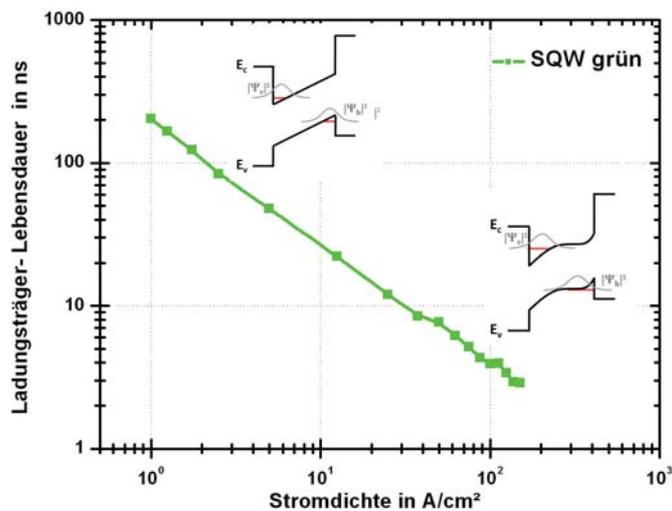


Abbildung A.3.: Doppellogarithmische Auftragung der Zeitkonstante der strahlenden Ladungsträgerlebensdauer über der Stromdichte. Aufgrund des besseren Überlapps der Wellenfunktionen für Elektronen und Löcher steigt die Oszillatorstärke und die Zeitkonstante sinkt. Dies ist schematisch in den kleinen Energieauftragungen dargestellt.

Stromabhängige Effizienz

Die externe Quanteneffizienz gibt Auskunft über die das Bauteil verlassenden Photonen im Verhältnis zu den über den pn-Übergang fließenden Ladungsträgern und kann mit Hilfe von Gleichung 2.9 aus Kapitel 2.2.3 berechnet werden. Dieser Abschnitt soll den Verlauf

der Quanteneffizienz des grünen SQWs beschreiben und Verlustmechanismen aufzeigen. In Abbildung A.4 ist die Effizienz in einer doppellogarithmischen Darstellung über einen weiten Strombereich dargestellt und man sieht bei Raumtemperatur einen Abfall der Effizienz zu niedrigen und hohen Strömen. Für diese beiden Bereiche gibt es verschiedene Modelle, welche im nachfolgenden beschrieben werden.

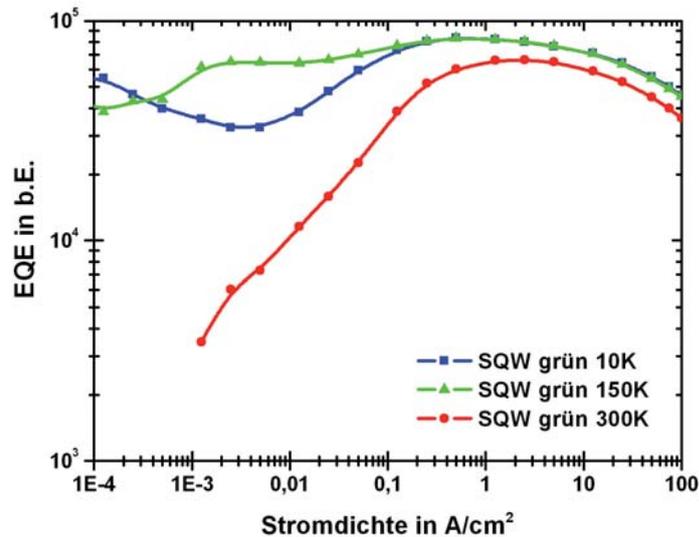


Abbildung A.4.: Doppellogarithmische Darstellung der externen Quanteneffizienz für 10 K, 150 K und 300 K. Man sieht deutlich die Abnahme der nichtstrahlenden Rekombination zu tiefen Temperaturen.

Die Ursache für den Abfall der Effizienz zu kleinen Stromdichten ist die nichtstrahlende SRH Rekombination (siehe Kapitel A.1). Das wird in Abbildung A.4 deutlich, welche den Verlauf der externen Quanteneffizienz bei verschiedenen Temperaturen zeigt. Durch die Abnahme der nichtstrahlenden Rekombination zu tieferen Temperaturen steigt die EQE bei kleinen Stromdichten an und liegt somit oberhalb der EQE bei Raumtemperatur. Die erneute Abnahme der Effizienz im Kleinstrombereich bei sehr tiefen Temperaturen (10 K) ist möglicherweise durch eine schlechte thermische Aktivierung der p-Dotierung zu erklären. Da die Akzeptorniveaus des Magnesium sehr tief sind, stehen bei tiefen Temperaturen nur wenige Löcher zur Verfügung (siehe Kapitel 2.1.1). Dadurch könnte bei Temperaturen unter 100 K für kleine Ströme eine Barriere entstehen, welche die Löcherinjektion in den Quantenfilm verschlechtert. Diese Barriere entsteht vermutlich durch die p-seitige AlGa_{0.3}N Elektronenbarriere (siehe Kapitel 2.2.1).

Ein weiteres Problem von InGa_{0.3}N/GaN LEDs ist die starke Nichtlinearität der optischen Ausgangsleistung zu hohen Stromdichten [Baeumler2007]. In Abbildung A.5 ist die optische Leistung über der Stromdichte aufgetragen. Die schwarze Linie deutet durch Extrapolation der Steigung der optischen Leistung bei kleinen Strömen einen möglichen Verlauf der optima-

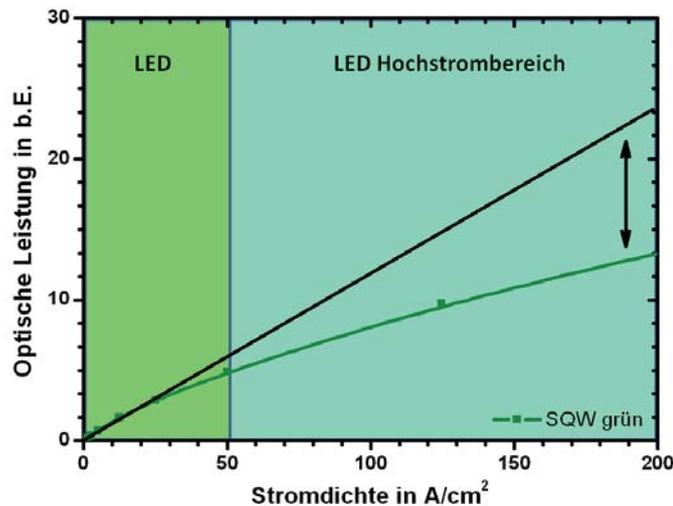


Abbildung A.5.: Die grüne SQW LED zeigt eine starke Nichtlinearität im Hochstrombereich auf. Die schwarze Linie deutet durch Extrapolation der Steigung der optischen Leistung bei kleinen Strömen einen möglichen Verlauf der optimalen Intensität an.

len Intensität an, diese wird allerdings von der SQW Struktur um ca. 40 Prozent unterboten. Die Ladungsträgerdichte ist allerdings hier bereits so hoch, dass die nichtstrahlende SRH Rekombination in diesem Bereich nicht für diesen Abfall verantwortlich ist. Dies bedeutet, dass bei den Stromdichten, in denen der Quantentrog aufgrund einer verringerten Verkippung und somit höheren Oszillatorstärke effizienter sein müsste, weitere Verlustmechanismen die Quanteneffizienz verschlechtern.

Die starke Nichtlinearität bei hohen Strömen, oft in der Literatur mit „droop“⁴ bezeichnet, deutet auf Verlustmechanismen hin, die mit dem Augerparameter C in Gleichung A.26 beschrieben werden könnten [Shen2007]. Die Augerrekombination, welche ein möglicher Ansatzpunkt für den Abfall der Hochstromeffizienz ist, bedeutet, dass bei hohen Stromdichten Augerladungsträger einen so hohen Energiezustand einnehmen, dass sie problemlos aus der aktiven Zone entkommen können (siehe Kapitel A.1). Außerhalb der aktiven Zone rekombinieren sie dann nichtstrahlend und führen somit zu einer Senkung der Linearität bei hohen Stromdichten. Ein direkter Nachweis der Augerladungsträger steht allerdings noch aus, weshalb weitere Ansätze zur Diskussion stehen.

Eine weitere Erklärung für den Abfall der Steigung könnte der Ladungsträgerverlust durch einen so genannten Carrier Overflow darstellen [Schubert2007, Kim2007c](siehe Kapitel A.1). Bei einer hohen Stromdichte reicht die Fermiverteilung der Ladungsträger über die Barrieren und ein gewisser Prozentsatz rekombiniert nichtstrahlend außerhalb der aktiven Zone. Da allerdings das Confinement für die Ladungsträger bei InGaN/GaN LEDs sehr hoch ist, ist

⁴droop bedeutet als Verb durchhängen oder ermatten

dieser Ansatz weniger wahrscheinlich. Dies würde bedeuten, dass die durch das Confinement erzeugte Barriere zu hohen Stromdichten stark durchlässig wird.

Der Ansatz, dass Elektronen bei einer hohen Stromdichte nichtstrahlende Rekombinationswege erreichen, stellt eine dritte Möglichkeit dar, den Verlustmechanismus zu erklären [Laak2007]. Die bestromte Fläche kann als eine Potentiallandschaft betrachtet werden. Beim Auffüllen dieser Landschaft erreichen die Ladungsträger nichtstrahlende Zentren, die zwischen den Potentialtälern auftreten. AFM und REM Analysen deuten auf eine erhöhte Versetzungsdichte zwischen den indiumreichen Strukturen hin. Dies könnte die hohe Effektivität von InGaN LEDs bei Strömen zwischen 1 und $10 \frac{A}{cm^2}$ - durch die hohe Lokalisation der Ladungsträger in den Potentialmulden - und den Abfall der Effizienz bei hohen Strömen erklären.

Abbildung A.6 zeigt die Auftragung der optischen Leistung über der Stromdichte in einer doppelt logarithmischen Darstellung. Dieses Diagramm veranschaulicht, dass die Daten in drei Bereiche mit unterschiedlichen Steigungen unterteilt werden können. Diese Geraden sind in das Diagramm für ihren jeweilig dominanten Bereich eingezeichnet. Da der Strom I direkt proportional zum Quadrat der Ladungsträgerdichte ist, kann man gemäß Gleichung A.26 mit Hilfe der Steigung 2 die nichtstrahlende SRH-Rekombination, der Steigung 1 die strahlende Rekombination und mit $\frac{2}{3}$ einen weiteren nichtstrahlenden Verlust identifizieren.

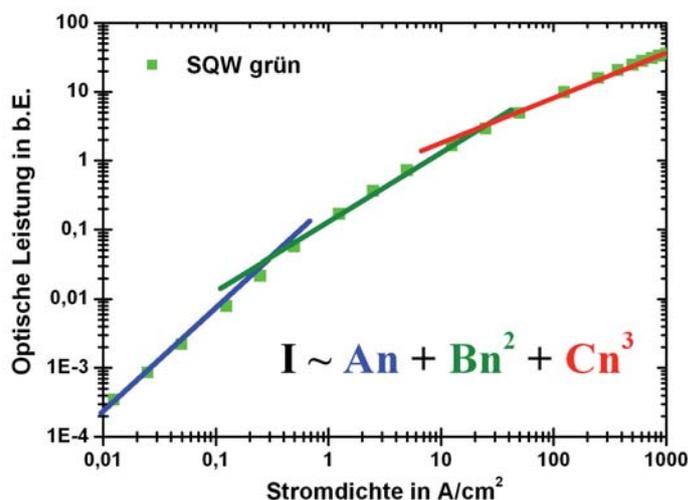


Abbildung A.6.: Doppellogarithmische Auftragung der optischen Leistung über der Stromdichte. Eingetragen sind die Steigungen für die nichtstrahlende, strahlende und Auger - Rekombination nach dem Modell aus Kapitel A.1 Gleichung A.26.

Verzeichnis verwendeter Naturkonstanten, Formelzeichen und Abkürzungen

Naturkonstanten

Verzeichnis verwendeter Naturkonstanten, Formelzeichen und Abkürzungen

c	Lichtgeschwindigkeit	$299.79246 \cdot 10^6 \frac{m}{s}$
e	Elementarladung	$1.60217646 \cdot 10^{-19} C$
h	Plancksches Wirkungsquantum	$6.62607 \cdot 10^{-34} J s$
k_B	Boltzmannkonstante	$1.3806503 \cdot 10^{-23} \frac{J}{K}$

Formelzeichen und Abkürzungen

A	Fläche / Nichtstrahlender Parameter / Abstand
α	Varshni Temperaturparameter / Absorptionskoeffizient / Akzeptanzwinkel
AFM	Atomic Force Mikroskopie
Al	Aluminium
Al_2O_3	Saphir
AlN	Aluminiumnitrid
a_{hex}	Gitterkonstante in der Basalebene beim hexagonalen Gitter
Ar	Argon
AR	Aspektverhältnis
Au	Gold
b	Biegeparameter
B	Roosbroeck-Shockley Rekombinationswahrscheinlichkeit
BCB	Benzo-Cyclo-Buten
β	Varshni Temperaturparameter
C	Augerkoeffizient
c_{hex}	Gitterkonstante senkrecht zur Basalebene beim hexagonalen Gitter
$CBED$	Convergent Beam Electron Diffraction
Cl	Chlor
Cp_2Mg	Bis(cyclopentadienyl)Magnesium
CVD	Chemical Vapour Deposition
d	Dicke
D	Diffusionskonstante / Durchmesser / Abklingkonstante
$DALI$	Digital analysis of lattice images
$D_{n/p}$	Einsteinrelation
e	Elementarladung
E_c	Energie Leitungsbandkante
E_F	Ferminiveau
E_{Fc}	Energie Quasiferminiveau Elektronen
E_{Fv}	Energie Quasiferminiveau Löcher
E_g	Bandlücke
$E(k)$	Dispersionsrelation
$EELS$	Elektronenenergieverlustspektroskopie
EQE	externe Quanteneffizienz
ϵ_r	Dielektrizitätszahl
f_G	Gitterfehlpassung
FF	Füllfaktor

<i>FIB</i>	Focused Ion Beam
G_0	Grundgenerationsrate
ΔG	Überschussgenerationsrate
δ_h	Grenzschichtdicke
<i>DHS</i>	Doppelheterostruktur
<i>Ga</i>	Gallium
<i>GaN</i>	Galliumnitrid
<i>h</i>	Höhe
<i>H</i>	Wasserstoff
\hbar	reduziertes Planck'sches Wirkungsquantum
<i>HH</i>	Schwerlochband
<i>HRTEM</i>	High Resolution Transmission Electron Microscope
<i>HSQ</i>	Hydrogensilsesquioxan
<i>HVPE</i>	Hydrid-Gasphasen-Epitaxy
<i>I</i>	Stromstärke / Intensität
I_s	Sättigungsstromstärke
<i>ICP</i>	Inductive coupled plasma
<i>In</i>	Indium
<i>InGaN</i>	Indiumgalliumnitrid
<i>InN</i>	Indiumnitrid
<i>IPS</i> [®]	Intermediate Polymer Stamp
<i>IQE</i>	interne Quanteneffizienz
<i>ITO</i>	Indiumzinnoxid
<i>J</i>	Materialtransport
<i>k</i>	Wellenzahl
<i>KL</i>	Kathodolumineszenz
<i>KOH</i>	Kaliumhydroxid
<i>KPFM</i>	Kelvin Probe Force Mikroskopie
<i>L</i>	Diffusionslänge
L_{DH}	Abschirmlänge
L_{NR}	Länge der Nanosäule
λ	Wellenlänge
<i>LED</i>	Licht emittierende Diode / Light Emitting Diode
<i>LEEB</i>	Low-Energie Electron Beam Irradiaton
<i>LH</i>	Leichtlochband
<i>LLO</i>	Laser Lift Off
<i>m</i>	Masse
m^*	effektive Masse
μ_n	Beweglichkeit der Elektronen
μ_p	Beweglichkeit der Löcher
$M_{e,h}$	Oszillatorstärke
<i>MFC</i>	Mass Flow Controller
<i>Mg</i>	Magnesium
<i>MII</i>	Molecular Imprints
<i>MQW</i>	Multiple Quantum Well
<i>MBE</i>	Molekularstrahl-Epitaxie
<i>MOVPE</i>	Metallorganische Gasphasen-Epitaxie
<i>MpN</i>	Maskenfläche pro Nanostruktur
<i>n</i>	Elektronenladungsträgerkonzentration / Brechungsindex
<i>N</i>	Stickstoff
n_0	Grundladungsträgerdichte der Elektronen
N_A	effektive Zustandsdichte Akzeptoren
N_C	effektive Zustandsdichte im Leitungsband
N_D	effektive Zustandsdichte Donatoren
n_i	intrinsische Ladungsträgerdichte
N_T	effektive Zustandsdichte der Störstellen
N_V	effektive Zustandsdichte im Valenzband
η	Idealitätsfaktor / Wirkungsgrad
η_{ext}	Externe Quanteneffizienz

η_i	Injektionseffizienz
η_q	interne Quanteneffizienz
η_{opt}	Auskoppeleffizienz
Δn	Überschussladungsträgerdichte Elektronen
NA	numerische Apertur
NH_3	Ammoniak
Ni	Nickel
NIL	Nanoimprint-Lithographie
OL	Optische Lithographie
p	Löcherladungsträgerkonzentration
P	Phosphor
p_0	Grundladungsträgerdichte der Löcher
p_D	Dampfdruck
P_{opt}	optische Leistung
Φ	elektrisches Potential
Δp	Überschussladungsträgerdichte Löcher
PL	Photolumineszenz
Pt	Platin
$QCSE$	Quantum confined Stark effect
Q_{MO}	Gasfluss Metallorganyl
Q_{TG}	Gasfluss Trägergas
QW	Quantentrog
r	Radius
R	Rekombinationsrate / Allgemeine Gaskonstante
R_0	Grundrekombinationsrate
ΔR	Überschussrekombinationsrate
REM	Rasterelektronenmikroskop
RIE	Reactive Ion Etching
σ	Standardabweichung / Leitfähigkeit
σ_n	Wirkungsquerschnitt Elektronen
σ_p	Wirkungsquerschnitt Löcher
$sccm$	Standard cubic centimeters per minute
Si	Silizium
SiC	Siliziumcarbid
SiN	Siliziumnitrid
SiO_2	Siliziumdioxid
SO	Spin-Bahn abgespaltenes Band
SOG	Spin-On-Glas
SQW	Single Quantum Well
$STU^{\text{®}}$	Imprint Resist
t	Zeit
T	Temperatur / Transmission
τ_n	Lebensdauer Elektronen
τ_{nr}	nichtstrahlende Rekombinationslebensdauer
τ_p	Lebensdauer Löcher
τ_r	strahlende Rekombinationslebensdauer
τ_s	Zeit zwischen Zusammenstößen beim Ladungsträgertransport
$TEGa$	Triethylgallium
TEM	Transmissionselektronenmikroskop
Ti	Titan
$TMIn$	Trimethylindium
$TMAI$	Trimethylaluminium
$TMGa$	Trimethylgallium
U	Spannung
U_D	Diffusionsspannung
U_T	Temperaturspannung
v_n	Thermische Geschwindigkeit Elektronen
V_{NS}	Volumen Nanosäule
v_p	Thermische Geschwindigkeit Löcher

ν	kinetische Viskosität
ω	Winkelgeschwindigkeit
WR	Wachstumsrate

Abbildungsverzeichnis

1.1.	Die schematische Darstellung einer Core-Shell Struktur. Dabei überziehen die aktiven und die p-dotierten Schichten (Mantel oder Shell) die dreidimensional gewachsenen Nanosäulen (Kern oder Core). Aufgrund dessen vergrößert sich die optisch aktive Schicht mit steigendem Aspektverhältnis der Nanosäulen.	8
1.2.	The Green Gap: Die Effizienz von Leuchtdioden auf AlInGaN- und AlInGaP-Basis hängt stark von der Wellenlänge ab. Im grünen Spektralbereich stehen derzeit noch keine hocheffizienten LEDs zur Verfügung.	9
1.3.	Die schematische Darstellung einer Nanosäule mit einer Quantenscheibe im vertikalen Verlauf. Die eingebaute InGaN-Schicht hat durch die geringen Abmessungen die Möglichkeit, einen Teil der Verspannung zu relaxieren.	9
2.1.	Definition der Kristallrichtungen der hexagonalen Wurtzitstruktur a) mit Darstellung der Gallium und Stickstoffatome [Engl2005] und b) mit Darstellung der am häufigsten verwendeten Ebenen [Hollander2006].	14
2.2.	Schematischer Verlauf der Bandstruktur von Wurtzit-GaN, adaptiert aus [Jeon1996]. Die gestrichelt dargestellte parabolische Näherung der Valenzbänder für die effektiven Massen der Löcher kann nur begrenzt in der Nähe des Gamma-Punktes zum Einsatz kommen. k_x , k_y und k_z verlaufen entlang der Hauptsymmetrierichtungen der ersten Brillouin-Zone und k_{\perp} ergibt sich aus $k_{\perp} = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$	15
2.3.	Je nach Zusammensetzung der kristallinen Schicht ändert sich die Emissionswellenlänge bei AlInGaN. Durch die Veränderung der Komposition variiert allerdings auch die Gitterkonstante des Halbleitermischkristalls, wodurch Verspannungen auftreten. Zusätzlich ist das Materialsystem AlInGaP dargestellt, welches bei der Herstellung von hocheffizienten roten Leuchtdioden zum Einsatz kommt.	17
2.4.	Schematische Darstellung der Bandstruktur a) ohne und b) mit dem Einfluss von Polarisationsladung. Eingezeichnet ist die Bandlücke E_g , sowie der Abstand E_1 der Grundzustände von Elektronen und Löchern. Aufgrund ihrer niedrigeren effektiven Masse ist der Grundzustand der Elektronen weiter von der Bandkante entfernt als derjenige der Löcher. Zu sehen ist die Rotverschiebung des optischen Übergangs, sowie die Darstellung der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten $ \Psi_e ^2$ und $ \Psi_h ^2$, die durch eine Separation der Elektronen- und Lochwellenfunktion räumlich voneinander getrennt sind.	18
2.5.	Beispiele für eine polare, semipolare und unpolare Wachstumsfacette in Anlehnung an die Veröffentlichung [Schwarz2007]. Aufgetragen ist die piezoelektrische Polarisation P'_z senkrecht zur Wachstumsrichtung als Funktion über dem Neigungswinkel der Wachstumsebene zur c-Fläche.	19
2.6.	Schematische Darstellung des Schichtverlaufes einer InGaN LED. Das dazugehörige vereinfachte Bandmodell ist rechts dargestellt.	20
2.7.	Dargestellt ist der schematische Produktionsablauf einer ThinGaN [®] LED. Nach dem Aufwachsen der LED Schichten wird die Oberfläche strukturiert und mit einem Spiegel versehen. Nach dem anschließenden Waferbondprozess auf einen geeigneten Träger wird das Wachstumssubstrat entfernt.	21
2.8.	Schematische Darstellung eines fertigen ThinGaN Chips in einem Schnittbild. Durch die strukturierte Oberfläche und die kleinflächigen Kontaktstege ist eine sehr gute Lichtauskopplung gewährleistet. Die Spiegelschicht verhindert eine Absorption im Trägersubstrat.	22
2.9.	Schematische Darstellung des Reaktordesigns mit einer realistischen, simulierten Temperaturverteilung (blau entspricht relativ niedrigen, magenta relativ hohen Temperaturen). Die Gase strömen vom Kopf des Reaktors auf den Carrier (schwarz dargestellt). Durch die hohe Rotationsgeschwindigkeit des Carriers wird ein laminarer Fluß der Gase über die Substrate (weiß hervorgehoben) ermöglicht.	26
2.10.	Schematische Darstellung von a) Volmer-Weber, b) Frank-van der Merwe und c) Stranski-Krastanov Wachstum.	32

2.11. HRTEM-Aufnahme im Bereich einer InGaN-Schicht (links), die farbcodierte In-Konzentrationskarte (Mitte) und über den Bildbereich gemittelter Verlauf der In-Konzentration (rechts) [Engl2005].	34
3.1. Abbildung der ersten GaN-Nanosäulen ohne Katalysator synthetisiert in der a) MBE [Garcia1998], b) HVPE [Kim2002] und c) MOVPE [Hersee2006].	37
3.2. REM-Bild von geordneten GaN-Nanosäulen gewachsen in einer MBE mit Hilfe einer Ti-Maske [Kishino2009].	38
3.3. Leuchtbilder InGaN/GaN-Nanosäulen bei verschiedenen Wellenlängen [Kishino2007].	40
3.4. Schematische Darstellung der Kontaktierung der Nanosäulen [Kishino2007]. Die p-Seite wird durch die Zugabe von Mg als Dotiermaterial koalesziert und bietet somit die Möglichkeit der direkten p-Kontaktierung.	42
3.5. Schematische Darstellung des Chipdesigns von Kim et al. [Kim2004]. Die Nanosäulen sind mit einem Spin-On-Glas verfüllt. Der n-Kontakt wird über den hochleitfähigen Buffer realisiert. Als p-seitige Stromaufweitung findet ein transparenter Ni/Au-Kontakt Verwendung.	44
4.1. Die schematische Darstellung der einzelnen Imprint- und Ätzschritte bis zum finalen Template des NIL Verfahrens der Firma Obducat.	48
4.2. REM-Aufnahmen von Imprintfehlern, verursacht durch die typische GaN-Morphologie resultierend aus dem Wachstum auf leicht fehlorientierten Saphirsubstraten. Durch die Morphologie des Stufenwachstums reicht der harte Stempel nicht bis in die Vertiefungen und es fehlen Maskenöffnungen (links). An Erhöhungen wird zuviel Imprintresist verdrängt, wodurch die Maske angegriffen und aufgrund dessen das GaN-Wachstum durch die damit entstandene Rauigkeit beeinträchtigt wird.	48
4.3. Schematische Darstellung des Imprintlayouts MII. Blaue Bereiche markieren den strukturierten Bereich, hellgraue maskierte Oberfläche ohne Maskenöffnungen. Die REM-Aufnahmen zeigen das Muster mit dichter und spärlicher Löcherstruktur nahe der Wafermitte, respektive dem Wafertrand.	49
4.4. GaN-Nanostrukturen gewachsen auf einem mit dem Imprintdesign MII vorstrukturierten Substrat. Durch das radialsymmetrische Maskendesign ergibt sich in Abhängigkeit des Winkels zur Saphirorientierung ein unterschiedliches Füllverhalten. Die Bilder zeigen das Wachstum bei einem hexagonalen Gitter senkrecht (links), 45° (mitte) und parallel zum Flat (rechts).	51
4.5. REM-Aufnahme des Imprintfeldes D400 P1200 des Imprintdesings OBDU nach dem Wachstum von GaN-Nanostrukturen (links). Die roten Linien markieren die Spur der 10 äquidistanten Messpunkte zur Bestimmung des Füllfaktors. Die drei kleinen Bilder unterstreichen exemplarisch den Unterschied im Füllfaktor. Die Werte des Füllfaktors fallen exponentiell mit dem Abstand zur Feldgrenze ab (rechts). Dabei ergibt der exponentielle Fit eine Abklingkonstante von etwa 140 µm.	51
4.6. REM-Aufnahmen von GaN-Nanostrukturen bei einem H_2/N_2 Trägergasgemisch von 0, 0,5 und 2. Mit zunehmendem H_2 -Gehalt im Trägergas ändert sich die pyramidale Form der Nanostrukturen hin zu Nanosäulen. Die Verkipfung der Proben im REM beträgt 45°.	53
4.7. REM-Draufsicht von GaN-Nanostrukturen (links). Ungeachtet der Form der Maskenöffnung bildet sich stets eine hexagonale Grundform aus. Der Inset zeigt die runde Form der Maskenöffnung und die hexagonale der Nanostruktur. Bei geeignetem Kontrast des Bildes kann mit Hilfe digitaler Bildbearbeitung eine statistische Aussage über den Durchmesser der Nanostrukturen getroffen werden (rechts).	54
4.8. Auftragung des durchschnittlichen Durchmessers der Nanosäulen über dem H_2/N_2 -Quotienten des Trägergasgemisches für verschiedene Abstände (links) und Auftragung des durchschnittlichen Durchmessers über dem Abstand für unterschiedliche H_2/N_2 -Trägergasgemische (rechts).	55
4.9. Auftragung des durchschnittlichen Durchmessers einer Nanosäule über der pro Nanosäule verfügbaren Maskenoberfläche MpN, welche direkt proportional zu A^2 ist. Es zeigt sich deutlich ein linearer Verlauf für verschiedene Trägergaskompositionen.	56
4.10. REM-Aufnahme eines Querschnittes der Proben mit einem H_2/N_2 -Quotienten von 0,5 (links) und 2 (rechts). Die Zunahme der Höhe mit steigendem Wasserstoffgehalt ist deutlich zu sehen.	57
4.11. Auftragung der Höhe über dem Abstand der Nanosäulen für H_2/N_2 von 0,5, 1,25, 2 und 5 (links) und die entsprechenden aus Durchmesser und Höhe errechneten Aspektverhältnisse (rechts).	58

4.12. Die Auftragung des Volumens einer durchschnittlichen Nanosäule über dem Abstand für H_2/N_2 von 0,5, 1,25, 2 und 5 und der verfügbaren Maskenfläche pro Nanorod über dem Abstand (links). Die doppelt logarithmische Auftragung des Volumens über der verfügbaren Maskenfläche zeigt für größere Abstände ein lineares Verhalten, das durch die graue Hilfslinie hervorgehoben wird (rechts).	59
4.13. REM-Seitenansichten der Nanosäulen nach einer Wachstumszeit von 30 s, 150 s, 300 s und 900 s. Die Höhe nimmt mit dem zeitlichen Verlauf zu. Allerdings steigt auch die Inhomogenität der Verteilung.	60
4.14. Auftragung der Höhe der Nanosäulen für Abstände zwischen 650 nm und 1600 nm. Die Höhe der Nanosäulen steigt für alle Abstände monoton mit der Zeit (links). In der Zeitspanne zwischen 30 s und 300 s nimmt die Höhe näherungsweise linear zu. Die Steigung zwischen den Punkten 300 s und 900 s zeigt eine deutlich flachere Steigung.	61
4.15. Der Durchmesser der Nanosäulen steigt zu Beginn für alle Abstände zwischen den Nanostrukturen an, zeigt dann im weiteren zeitlichen Verlauf keine zusätzliche signifikante Zunahme (links). Bei der Auftragung der Durchmesser über dem Abstand zeigt sich eine vergleichbare monotone Zunahme des Durchmessers für alle zeitlichen Stützpunkte.	62
4.16. REM-Draufsichten auf in der MOVPE gewachsene Nanostrukturen in der Mitte des Imprintfeldes D400 P1200 des Designs OBDU bei 940 °C, 980 °C, 1020 °C, 1050 °C, 1080 °C und 1100 °C.	63
4.17. Auftragung des Medians der Durchmesser der Nanostrukturen über der räumlichen Distanz zur Grenze des strukturierten Feldes (links). Die Durchmesser sinken für alle Temperaturen in Richtung Feldmitte ab und sättigen in etwa im Zentrum des Feldes. Die Standardabweichung der Durchmesser (rechts) zeigt eine deutliche Temperaturabhängigkeit und steigt bei hohen Temperaturen an.	64
4.18. Der Median und die Standardabweichung zeigen über der Temperatur ein gegenläufiges Verhalten. Die aufgetragenen Daten zeigen die Mittelwerte zwischen 500 μm und 700 μm Abstand zur Feldgrenze.	65
4.19. REM-Aufnahmen von GaN-Nanostrukturen gewachsen auf vorstrukturiertem Saphirsubstrat vor (links) und nach (rechts) der Behandlung mit KOH. Die für N-determinierte Oberflächen charakteristische pyramidale Morphologie durch das Ätzen weist die Wachstumsrichtung $[000\bar{1}]$ nach. Einzelne senkrechte Säulen sind Hinweise auf Inversionsdomänen innerhalb der GaN-Nanostrukturen.	67
4.20. a) Beim Wachstum auf $[000\bar{1}]$ orientierter GaN-Oberfläche treten vermehrt unpolare $\{10\bar{1}0\}$ Seitenflächen auf, b) bei gleichen Wachstumsbedingungen auf $[0001]$ orientierter GaN-Oberfläche sind diese nicht zu beobachten [SFLi2010]. Der Inset der Teilabbildung b) zeigt den für die semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ Ebenen charakteristischen Winkel von $58,4^\circ$. Bei kleineren Strukturgrößen zeigen die Nanostrukturen auf nitridierter Saphiroberfläche (Wachstumsrichtung $[000\bar{1}]$) die gewünschte Säulenform c), während beim Wachstum auf äquivalent strukturiertem GaN die pyramidale Form dominiert d).	69
4.21. REM-Aufnahme von Nanostrukturen auf einer GaN-Zwischenschicht bei einer Wachstumstemperatur von 1080 °C und einem V/III-Verhältnis von etwa 100. Erst bei diesen sehr niedrigen Werten für das V/III-Verhältnis treten hier unpolare Seitenebenen senkrecht zur Substratoberfläche auf.	70
4.22. Auftragung der Wachstumsrate der GaN-Schicht auf Standardtemplaten über dem logarithmischen V/III-Verhältnis. Bei V/III-Verhältnissen unter 300 beginnt die Wachstumsrate deutlich abzunehmen und ist somit ein Hinweis auf ein durch Stickstoff limitiertes Wachstum. Die senkrechte rote Linie zeigt das mit den gegebenen Anlagenbedingungen minimal einstellbare V/III-Verhältnis von 85.	71
4.23. REM-Aufnahme von GaN-Nanosäulen gewachsen auf einer GaN-Zwischenschicht. Links: Nanosäulen im Imprintfeld D200P600 der OBDU-Maske. Rechts: Nanosäulen auf der MII-Maske	72
4.24. Links: Auftragung des auf die Differenz zwischen dem Randmesspunkt und dem Messpunkt bei 600 μm normierten Füllfaktors für die Temperaturen 940 °C, 980 °C, 1020 °C, 1050 °C, 1080 °C und 1100 °C über dem Abstand zur Grenze des strukturierten Feldes. Die gepunkteten Linien zeigen den Fit der Messwerte mittels einer einfachen exponentiellen Abklingfunktion. Rechts: Auftragung der Abklingkonstanten der Exponentialfunktionen.	74

4.25. Schematische Darstellung der GaN-Kristalle in Ga-polarer $[000\bar{1}]$ (links) und N-polarer $[000\bar{1}]$ (rechts) Wachstumsrichtung. Die semipolare $(10\bar{1}1)$ und die polare $(000\bar{1})$ Ebene, die bei Wachstum in $[000\bar{1}]$, respektive $[000\bar{1}]$ Richtung, auftreten, können mit Wasserstoff passiviert werden (rot gekennzeichnet).	77
4.26. TEM-Aufnahme von GaN-Nanosäulen auf vorstrukturiertem Saphirsubstrat [Bergbauer2010]. Der TEM-Querschnitt zeigt im unteren Teil das Saphirsubstrat, die ca. 100 nm dicke SiO ₂ Maskierschicht und die Öffnungen der Maske bis zum Substrat. Die Oberfläche der Säulen wird von den unpolaren $\{10\bar{1}0\}$ Ebenen dominiert. Daneben treten die semipolaren $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ und $\{10\bar{1}\bar{2}\}$ Ebenen schräg zur Substratoberfläche auf. Die polare $(000\bar{1})$ bildet die Spitze der Nanosäule.	80
4.27. Links: TEM-Dunkelfeldaufnahme des Grenzbereiches zwischen Saphirsubstrat, Maskenöffnung und Nanosäule entlang der Kristallrichtung $\langle 0002 \rangle$ [Bergbauer2010]. In diesem Bereich zeigt sich eine deutlich erhöhte Anzahl von Defekten. Rechts: TEM-Aufnahme des Säulenwachstums nach deutlichem Überätzen beim Öffnen der SiO ₂ -Wachstumsmaske. Die Nukleation beginnt in verschiedene Kristallrichtungen, wobei die bevorzugte Wachstumsrichtung $[000\bar{1}]$ letztendlich dominiert [Roder2010].	81
4.28. Links: TEM-Dunkelfeldaufnahme des substratnahen Bereiches der Nanosäule entlang der Kristallrichtung $\langle 12\bar{2}0 \rangle$ [Bergbauer2010]. Mit zunehmendem Verlauf der Nanosäule nehmen die Defekte ab. Nach ca. 200 nm kann das Abbiegen einer Schraubenversetzung zur Oberfläche der Nanosäule senkrecht zur Substratoberfläche beobachtet werden. Rechts: TEM-Dunkelfeldaufnahme einer Schraubenversetzung, welche die komplette Nanosäule durchstößt. Die Wachstumsrichtung der Nanosäule war in diesem Fall von links oben nach rechts unten.	83
4.29. Links: REM-Aufnahme eines Querschnitts einer verfüllten GaN-Nanosäule. Innerhalb der Säule befinden sich zwei Hohlräume, welche ihren Ursprung in der Maskenöffnung haben. Rechts: REM-Aufnahme des Substrates nach dem Entfernen der Nanosäulen durch einen Diamantritzer. Die Füllung der Löcher zeigt Fehlstellen auf, welche bei unzureichender Koaleszenz zu Hohlräumen führen können.	84
4.30. Raumtemperaturphotolumineszenzspektren von Nanosäulen, in einer MBE und in einer MOVPE gewachsen. Die MBE-Nanosäulen sind frei von gelber Defektlumineszenz, während die Nanosäulen aus der MOVPE deutlich die für GaN typische breite Defektbande im gelben Spektralbereich zeigen.	87
4.31. Intensitätsverteilung einer Kathodolumineszenzaufnahme (in rot) einer GaN-Nanosäule bei 364 nm (oben) und 560 nm (unten) [Laehmann2010]. Die Intensität der breiten Defektbande im gelben Spektralbereich konzentriert sich auf den substratnahen Bereich, während die Intensität der bandkantennahen GaN-Lumineszenz dem entgegengesetzt verteilt ist.	87
5.1. Links: PL- und KL-Spektrum der N-polaren Probe NAE_01752. Rechts: Örtliche Verteilung der Intensität für verschiedene Wellenlängen in Falschfarbendarstellung [Bergbauer2010]. Die örtliche Verteilung der Emission für die Wellenlängen 384 nm (grün) und 414 nm (blau) ist den semipolaren, pyramidalen $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ Flächen zuzuordnen. Die längerwellige Emission bei 455 nm (rot) steht in klarer Beziehung zu der polaren Fläche auf der Spitze der Nanosäulen.	93
5.2. REM-Aufnahme a) und KL-Intensitätsverteilung der Ga-polaren Probe NAE_02633 in Falschfarbendarstellung für b) 364 nm c) 400 nm d) 450 nm e) 500 nm und f) 550 nm [Laehmann2010].	95
5.3. Links: Kathodolumineszenzspektren einzelner Nanostrukturen mit einem Durchmesser von 650 nm, 600 nm und 520 nm (respektive Nanostruktur 1, 2 und 3) [Laehmann2010]. Rechts: PL-Spektren bei verschiedenen Abständen zum Zentrum des Wafers. Die Wellenlänge zeigt mit steigendem Abstand der Nanostrukturen eine Rotverschiebung. Die Emissionswellenlänge des Anregungslasers des PL-Mappers liegt bei 375 nm. Durch den Kantenfilter wird die Emission unterhalb von 390 nm abgeschnitten.	96
5.4. Links: Die örtliche Verteilung der Hauptemissionswellenlänge. Der radialsymmetrische Verlauf ist ein Hinweis auf einen erhöhten Indiumeinbau. Im Zentrum ohne Strukturierung dominiert die gelbe Defektlumineszenz der parasitären Nukleationen. Rechts: Dreidimensionale Darstellung der Wellenlängenverteilung.	97

5.5. TEM-Dunkelfeldaufnahme der Probe NAE_01752 [Bergbauer2010]. Der 5-fache MQW ist sowohl auf der polaren Spitze der Nanosäule als auch auf den semipolaren Seitenfacetten deutlich zu erkennen. Die Qualität der Quantenfilme auf der c-Ebene ist durch Schraubenversetzungen, welche die komplette Nanosäule durchziehen, beeinträchtigt. Der Kontrastunterschied am Rand der Säule resultiert aus Schichtdickeninterferenzen. Die HRTEM-Aufnahme der Quantenfilme auf der semipolaren Seitenfacette ermöglicht, das Übergitter der Quantenfilme zu bestimmen.	99
5.6. TEM-Aufnahme einer Nanosäule auf GaN-Template der Probe NAE_02633 (links) mit der Vergrößerung des substratnahen Bereiches der unpolaren Seitenfläche (rechts) [Roder2010]. Der 6-fache MQW und eine dünne, undotierte Deckschicht über den Quantenfilmen sind deutlich zu erkennen.	101
5.7. Links: Die TEM-Aufnahme zeigt den Verlauf der Quantenfilme an einer Nanostruktur mit verschiedenen Facetten [Roder2010]. Diese ziehen sich wie ein Mantel um den gesamten GaN-Kristall. Rechts: Die Dicke der InGaN-Schichten auf den beiden semipolaren $\{10\bar{1}1\}$ und $\{10\bar{1}2\}$ Orientierungen sind sehr vergleichbar. Sowohl die Wachstumsrate als auch der Indiumeinbau variieren nur in geringem Maße.	102
5.8. Links: Hochauflösende TEM-Aufnahme der Quantenfilme auf einer semipolaren Seitenfacette der Probe NAE_03166 [Roder2010]. Die Quantenfilmdicken sind sehr homogen und zeigen im Verlauf nur geringe Schwankungen. Rechts: Aufnahme von Quantenfilmen auf einer unpolaren Seitenfläche bei der gleichen Probe. Die InGaN-Schichten sind im Vergleich zu den semipolaren Flächen deutlich dicker.	103
5.9. Links: Abbildung des Nanonadel-Messplatzes der Technischen Universität Braunschweig bei geöffneter REM-Kammer [Ledig2010]. Die Nadeln kontaktieren hier eine geätzte Nanosäule. Rechts: REM-Aufnahme von zwei Nanonadeln kurz vor dem Kontaktieren der Nanosäule in der Mitte des Bildes. Die Punkte A, B und C markieren die Messpunkte der Nadeln bei der Messung an einer Nanosäule der Probe NAE_01665 mit einer nominellen Si-Dotierung von $3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$	105
5.10. Links: REM-Aufnahme der Probe NAE_02733. Die p-Schicht ist noch nicht vollständig koalesziert. Die Oberflächenbedeckung leidet zusätzlich unter der begrenzten Imprintqualität aufgrund der GaN-Morphologie (siehe Abschnitt 4.1.1). Rechts: Kontaktierung der Probe NAE_02733 mit einem Standardnadelmessplatz. Der milchig erscheinende Bereich entspricht der Vorstrukturierung durch den Imprintprozess.	106
5.11. EL - Spektren eines Messpunktes auf der Probe NAE_02733. Zunächst füllen sich die tieferen Zustände auf. Es ergibt sich mit steigender Stromdichte eine starke Blauverschiebung.	107
6.1. Schematische Darstellung der grundlegenden Prozessschritte für die Herstellung einer Nano-LED. Nach dem Aufdampfen einer SiO ₂ -Schutzschicht für das p-dotierte GaN mit einem CVD-Prozess wird die Säulenstruktur mit einem Spin-On Prozess verfüllt. Nach dem Entfernen der Schutzschicht kann die p-Seite kontaktiert werden.	112
6.2. Links: REM-Aufnahme der strukturierten SiO ₂ -Hartmaske. Der Zieldurchmesser war hier 1000 nm bei einem Abstand von ebenfalls 1000 nm. Rechts: Die mit Hilfe der SiO ₂ -Hartmaske geätzten GaN-Säulen. Durchmesser und Abstand entsprechen 1000 nm. Die dunkle Abdeckung auf den Spitzen der Nanosäulen ist der Rest der Hartmaske.	113
6.3. Wellenlängen- und Intensitätsverteilung der Photolumineszenzspektren von geätzten Nano-LEDs. Die vier Quadranten der verwendeten Maske BS1 sind durch die gestrichelte Linie hervorgehoben.	114
6.4. Links: REM-Aufnahme von mit Epoxydharz verfüllten Si-Nanosäulen. Das Material sammelt sich in der Mitte des Feldes an und bildet einen Dom mit sehr hoher Schichtdicke. Rechts: FIB-Querschnitt durch ein mit Epoxydharz verfülltes Feld. Das Epoxydharz benetzt die komplette Oberfläche gut, zeigt allerdings Lufteinschlüsse (durch rote Kreise im Bild gekennzeichnet). Die Lufteinschlüsse sind häufig direkt an der Nanosäule zu beobachten.	116
6.5. Links: REM-Aufnahmen von mit BCB verfüllten Si-Nanosäulen mit einem Abstand von 1 μm und 5 μm . Das Material verfüllt über das gesamte Feld bei konstantem Füllfaktor der Nanosäulen mit annähernd konstanter Höhe und bildet keinen Dom in der Mitte des Feldes aus. Allerdings hängt die Verfüllhöhe signifikant vom Füllfaktor ab. Rechts: FIB-Querschnitt durch ein mit BCB verfülltes Feld. Die Säulen sind perfekt verfüllt und es zeigen sich keine Lufteinschlüsse.	117

6.6.	Links: Überblicksaufnahme von Al_2O_3 -Sol verfüllten Säulen. Die Säulen werden stark deformiert und beim Aushärten des Materials statistisch in verschiedene Richtungen gedrückt. Rechts: Großaufnahme des FIB-Schnittes. Die Ausflockungen der Nanopartikel drücken die Säulen in verschiedene Richtungen.	118
6.7.	Links: REM-Aufnahme von mit $\text{FOx}^{\text{®}}$ verfüllten Säulen. Die Verfüllung ist statistisch inhomogen über den strukturierten Feldern verteilt. Die verfüllten Bereiche werden stark kompressiv verspannt und die Nanosäulen werden verbogen. Rechts: REM-Aufnahme von GaN-Nanosäulen, die nach dem Verfüllen mit einem verbesserten Ausheizprozess behandelt wurden. Trotz der deutlich gesteigerten Homogenität zeigen sich aufgrund der Schrumpfung des Materials beim Aushärten Risse im SiO_2	119
6.8.	Links: Die gemessene Transmission für BCB und Epoxydharz. Während BCB unterhalb etwa 450 nm absorbiert, ist das Epoxydharz über den gesamten Bereich gleich transparent. Rechts: Der Absorptionskoeffizient von BCB und Epoxydharz aus den Transmissionsdaten gemäß Formel 6.1 berechnet.	121
6.9.	Lichtmikroskopaufnahme einer Aussparung im Ag-Spiegel. Die Kanten zeigen eine leichte Welligkeit im Bereich weniger μm . Dies hätte bei einem späteren Bauteil keine Relevanz.	122
6.10.	Links: FIB Querschnitt von GaN-Nanosäulen verfüllt mit BCB. Die Spitzen der Säulen, welche noch mit der SiO_2 -Hartmaske bedeckt sind, sind etwa 700 nm tief vergraben. Rechts: REM-Aufnahme der verfüllten GaN-Nanosäulen nach dem Freilegen der Spitzen durch einen gezielten BCB-Ätzschritt.	123
6.11.	Links: Metallkontakte auf GaN-Säulen mit einer nominellen n-Dotierung von $3\text{E}18 \text{ 1/cm}^3$. Die Säulen zeigen in dem gewählten Bereich sowohl einen Durchmesser als auch einen Abstand von 5 μm . Rechts: Strom-Spannungskennlinien zwischen zwei Kontakten. Die Steigungen der linearen Interpolation geben den Wert für den ohmschen Widerstand.	123
6.12.	Links: Auflichtaufnahme eines Metallkontaktes auf GaN-NanoLEDs. Sowohl der Durchmesser als auch der Abstand der einzelnen LEDs beträgt 5 μm . Rechts: Mikroskopaufnahme bei einem Strom von 1 mA. Aufgrund des undurchsichtigen Metallkontaktes sind nur die Reflektionen des erzeugten Lichtes an den geätzten Flanken der Säulen zu erkennen.	125
6.13.	Links: Auftragung der Spannung über der logarithmischen Stromdichte für Nanosäulen mit einem Durchmesser von 1000 nm und 2000 nm. Die kontaktierten NanoLEDs mit einem Durchmesser von 2000 nm zeigen einen signifikanten Nebenschluss. Die graue gestrichelte Linie kennzeichnet die Nennstromdichte von 35 A/cm^2 . Hier liegt die Vorwärtsspannung bei etwa 3,3V. Rechts: Die lineare Approximation der Strom-Spannungskennlinie ergibt den Serienwiderstand der kontaktierten NanoLEDs.	126
6.14.	Links: Auflichtaufnahme der Kombination aus einem undurchsichtigen Metallkontakt auf einem transparenten ITO-Kontakt. Die NanoLEDs mit einem Durchmesser von 700 nm und einem Abstand von 2000 nm sind unter dem transparenten Kontakt noch eindeutig zu erkennen. Rechts: Mikroskopaufnahme bei einem Strom von 20 mA. Mit Hilfe des transparenten Kontaktes kann die Funktion einzelner NanoLEDs überprüft werden.	126
6.15.	Lichtmikroskopaufnahme von 3D NanoLEDs mit einem Durchmesser von 500 nm und einem Abstand von 2000 nm. Die Lumineszenz der einzelnen NanoLEDs ist sehr gut unterscheidbar. Nur sehr wenige angeschlossene NanoLEDs zeigen eine verminderte oder gar keine Emission.	127
7.1.	Auftragung des Aspektverhältnisses der Nanosäulen für verschiedene Trägergasgemische H_2/N_2 und Abstände zwischen den Maskenöffnungen bei einer konstanten Wachstumszeit von 300 s.	132
A.1.	Schematische Darstellung der Band-Band, der Shockley-Read-Hall Rekombination über Störstellen und der Auger Rekombination.	139
A.2.	Peakwellenlänge des grünen SQW über einen weiten logarithmisch aufgetragenen Stromdichtebereich. Die Wellenlänge schiebt aufgrund der Abschirmung der piezoelektrischen Polarisation im Quantentrog in Richtung blau. Die kleinen schematischen Darstellungen der Energiebandkanten zeigen die Abschirmung der Piezofelder und den daraus resultierenden größeren energetischen Abstand der Grundenergieniveaus.	145
A.3.	Doppellogarithmische Auftragung der Zeitkonstante der strahlenden Ladungsträgerlebensdauer über der Stromdichte. Aufgrund des besseren Überlapps der Wellenfunktionen für Elektronen und Löcher steigt die Oszillatorstärke und die Zeitkonstante sinkt. Dies ist schematisch in den kleinen Energieauftragungen dargestellt.	145
A.4.	Doppellogarithmische Darstellung der externen Quanteneffizienz für 10 K, 150 K und 300 K. Man sieht deutlich die Abnahme der nichtstrahlenden Rekombination zu tiefen Temperaturen.	146

A.5. Die grüne SQW LED zeigt eine starke Nichtlinearität im Hochstrombereich auf. Die schwarze Linie deutet durch Extrapolation der Steigung der optischen Leistung bei kleinen Strömen einen möglichen Verlauf der optimalen Intensität an.	147
A.6. Doppellogarithmische Auftragung der optischen Leistung über der Stromdichte. Eingetragen sind die Steigungen für die nichtstrahlende, strahlende und Auger - Rekombination nach dem Modell aus Kapitel A.1 Gleichung A.26.	148

Tabellenverzeichnis

2.1.	Grundlegende Materialparameter der III-V Halbleiter GaN, InN, und AlN laut [Vurgaftman2003].	14
2.2.	Materialparameter der für das AlInGaN-Wachstum gängigen Metallorganyle. Angegeben sind neben dem Materialnamen die chemische Formel, die atomare Masse m , die Schmelztemperatur T_S und die Dampfdruckparameter a und b [SAFC2010].	28
2.3.	Die Gitterkonstante a , der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient α_a bei Raumtemperatur und die Wärmeleitfähigkeit λ für GaN, Saphir, SiC und Si [Kyocera2010, Leszczynski1994, Ambacher1998, Cree2010, Okaji1988, Glassbrenner1964].	29
4.1.	Verteilung der Durchmesser- und Abstandsvarianten beim Stempeldesign OBDU.	50
4.2.	Verteilung der Durchmesser- und Abstandsvarianten der Photomaske BS1.	50
4.3.	MOVPE Grundparameter für das Wachstum von GaN-Nanosäulen.	53
4.4.	Vertikale Wachstumsrate (WR) und die Standardabweichung σ berechnet aus der linearen Approximation der Werte für die Höhe zwischen 30 s und 300 s für verschiedene Abstände zwischen den Nanosäulen.	61
4.5.	Gleichbedeutende Bezeichnungen für das Wachstum von GaN in $[0001]$ - und $[000\bar{1}]$ -Richtung.	66
4.6.	Berechnung des relativen Anstiegs von V/III_{lokal} für verschiedene Abstände A zwischen den Nanosäulen laut Formel 4.10. Als Referenzpunkt wird V/III_{lokal} beim kleinsten auf dem MII-Stempeldesign vorhandenen Abstand von etwa 400 nm verwendet.	79
5.1.	Auflistung der Proben für die elektrooptischen und strukturellen Untersuchungen des Indiumeinbaus in GaN-Nanostrukturen. Das angegebene V/III-Verhältnis ist nur für die Dauer des Nanosäulenwachstums gültig. Die Quantenfilme sowie die p-Seite wurden mit konventionellen Wachstumseinstellungen gewachsen. Die aufgeführten QW-Temperaturen beziehen sich relativ auf den Referenzpunkt bei 700 °C. Die Angabe der Dicke der Abdeckschicht (Cap) und der p-GaN Schicht entspricht der äquivalenten Dicke bei zweidimensionalem Wachstum.	92
5.2.	Abschätzung der Quantenfilm- und Barrierendicken für die Probe NAE_02633 in Abbildung 5.6. Die Dicke der Quantenfilme (QW) sowie auch der Barrieren (QB) nimmt nach außen ab.	100
5.3.	Abschätzung der Quantenfilm-, Barrieren-, und Abdeckschichtdicken für die im TEM analysierte Nanostruktur auf der Probe NAE_03166 in Abbildung 5.8. Die Abmessungen entsprechen den durchschnittlichen Dicken entlang eines einzelnen Quantenfilmes sowie einer Mittelung über mehrere Nanostrukturen.	103

Literaturverzeichnis

- [Akasaka1997] T. Akasaka, Y. Kobayashi, S. Ando, N. Kobayashi *GaN hexagonal microprisms with smooth vertical facets fabricated by selective metalorganic vapor phase epitaxy*. Applied Physics Letters, 71, 2196 - 2198, 1997
- [Amano1988] H. Amano, I. Akasaki, K. Hiramatsu, N. Koide, N. Sawaki *Effects of the buffer layer in metalorganic vapour phase epitaxy of GaN on sapphire substrate*. Thin solid films, 163, 415 - 420, 1988
- [Amano1989] H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu, I. Akasaki *P-Type conduction in Mg-Doped GaN Treated with Low-Energy Electron Beam Irradiation*. Japanese Journal of Applied Physics, 28, L2112-L2114, 1989
- [Ambacher1998] O. Ambacher *Growth and applications of Group III-nitrides*. Journal of Physics D, 31, 2653-2710, 1998
- [Aschenbrenner2009] T. Aschenbrenner, C. Kruse, G. Kunert, S. Figge, K. Sebald, J. Kalden, T. Voss, J. Gutowski, D. Hommel *Highly ordered catalyst-free and mask-free GaN nanorods on r-plane sapphire*. Nanotechnology, Vol. 20, 075604, 2009
- [Baeumler2007] M. Baeumler, M. Kunzer, R. Schmidt, S. Liu, W. Pletschen, P. Schlotter, K. Köhler, U. Kaufmann, J. Wagner *Thermal and non-thermal saturation effects in the output characteristic of UV-to-violet emitting (AlGaIn)N LEDs*. phys. stat. sol. (a) 204, Nr. 4, June 2007
- [Baillargeon1991] J. N. Baillargeon, K. Y. Cheng, S. L. Jackson, G. E. Stillman *Investigation of the thermal dissociation of PH₃ and NH₃ using quadrupole mass spectrometry*. Journal of Applied Physics, Vol 69, 8025, 1991
- [Barker1973] A.S. Barker, Jr. and M. Ilegems *Infrared Lattice Vibrations and Free-Electron Dispersion in GaN*. Physical Review B, Volume 7, Number 2, 15. January 1973
- [Bastard1983] G. Bastard, E.E. Mendez, L.L. Chang, L. Esaki *Variational calculations on a quantum well in an electric field*. Physical Review B, Volume 28, Number 6, 15. September 1983
- [Bavencove2010] A.L. Bavencove, G. Tourbot, E. Pougéoise, J. Garcia, P. Gillet, F. Levy, B. Andre, G. Feuillet, B. Gayral, L.S. Dang *GaN-based nanowires: From characterization to light emitting diodes*. Physica Status Solidi A, 207, No. 6, 1425-1427, 2010
- [Beaumont1998] B. Beaumont, S. Haffouz, P. Gibart *Magnesium induced changes in the selective growth of GaN by metalorganic vapor phase epitaxy*. Applied Physics Letters, Volume 72, No. 8, 1998
- [Bergbauer2008] W. Bergbauer *Untersuchungen zur Hochstromeffizienz von InGaN/GaN basierten Lichtemitterstrukturen*. Masterarbeit an der Hochschule Deggendorf, 2008
- [Bergbauer2009] W. Bergbauer, M. Strassburg, K. Streubel, S. Fündling, SF Li, H.-H. Wehmann, A. Waag *Growth results on patterned sapphire*. Private communication, MONALISA BMBF project, July 2009
- [Bergbauer2010] W. Bergbauer, M. Strassburg, Ch. Kölper, N. Linder, C. Roder, J. Lähnemann, A. Trampert, S. Fündling, SF Li, H.-H. Wehmann, A. Waag *Continuous-flux MOVPE growth of position-controlled N-face GaN nanorods and embedded InGaN quantum wells*. Nanotechnology 21, 305201, 2010
- [Bergbauer2010b] W. Bergbauer, M. Strassburg, Ch. Kölper, N. Linder, C. Roder, J. Lähnemann, A. Trampert, S. Fündling, S.F. Li, H.-H. Wehmann, A. Waag *N-face GaN nanorods: Continuous-flux MOVPE growth and morphological properties*. Journal of Crystal Growth, doi:10.1016/j.jcrysgro.2010.07.067, 2010
- [Berkowicz2000] E. Berkowicz, D. Gershoni, G. Bahir, E. Lakin, D. Shilo, E. Zolotoyababko, A.C. Abare, S.P. Denbaars, L.A. Coldren *Measured and calculated radiative lifetime and optical absorption of InGaN/GaN quantum structures*. Physical Review B, Volume 61, Number 16, 15. April 2000

- [Bernardini2001] Fabio Bernardini, Vincenzo Fiorentini, David Verderbilt *Accurate calculation of polarization-related quantities in semiconductor devices*. Physical Review B, Volume 63, 193201, 26. April 2001
- [Bertram2010] F. Bertram, S. Metzner, J. Christen, M. Jetter, C. Wächter, P. Michler *Cathodoluminescence Microscopy of Self-Organized InGaN Nano-Structures on GaN Pyramids*. Microscopy and Microanalysis 16, 822-823, 2010
- [Bludau1995] Wolfgang Bludau *Halbleiter-Optoelektronik: die physikalischen Grundlagen der LED's*. Carl Hanser Verlag München Wien, 1995
- [Bougrov2001] Bougrov V., Levinshtein M.E., Rumyantsev S.L., Zubrilov A. *Properties of Advanced Semiconductor Materials GaN, AlN, InN, BN, SiC, SiGe*. John Wiley & Sons Inc., New York, 2001
- [Calleja2000] E. Calleja, M.A. Sanchez-Garcia, F.J. Sanchez, F. Calle, F.B. Naranjo, E. Munoz, U. Jahn, K. Ploog *Luminescence properties and defects in GaN nanocolumns grown by molecular beam epitaxy*. Physical Review B, Volume 62, Number 24, 2000
- [Chen2009] Y.S. Chen, W.Y. Shiao, T.Y. Tang, W.M. Chang, C.H. Liao, C.H. Lin, K.C. Shen, C.C. Yang, M.C. Hsu, J.H. Yeh, T.C. Hsu *Threading dislocation evolution in patterned GaN nanocolumn growth and coalescence overgrowth*. Journal of Applied Physics, 106, 023521, 2009
- [Chen2010] L.Y. Chen, Y.Y. Huang, C.H. Chang, Y.H. Sun, Y.W. Cheng, M.Y. Ke, C.P. Chen, J.J. Huang *High performance InGaN/GaN nanorod light emitting diode arrays fabricated by nanosphere lithography and chemical mechanical polishing processes*. Optics Express, Vol. 18, No. 8, 7664-7669, 2010
- [Cheng2009] Y.W. Cheng, T.C. Lu, M.Y. Ke, K.M. Pan, L.Y. Chen, H.L. Chiang, Y.Y. Huang, J.J. Huang *Application of nanosphere lithography to the fabrication of nanorod LEDs and to the performance enhancement of conventional LEDs*. Proceedings of SPIE-OSA-IEEE Asia Communications and Photonics, SPIE Vol. 7635, 763506, 2009
- [Calarco2005] R. Calarco, M. Marso, T. Richter, A.I. Aykanat, R. Meijers, A. v.d.Hart, T. Stoica, H. Lüth *Size-dependent Photoconductivity in MBE-Grown GaN-Nanowires*. Nano Letters, Vol. 5, No. 5, 981-984, 2005
- [Cherns1997] D. Cherns, W.T. Young, J.W. Steeds, F.A. Ponce, S. Nakamura *Observation of coreless dislocations in α -GaN*. Journal of Crystal Growth 178, 201-206, 1997
- [Cherns2010] D. Cherns, L. Meshi, I. Griffiths, S. Khongphetsak, S.V. Novikov, R.P. Champion, C.T. Foxon, C. Liu, P. Shields, W.N. Wang *GaN devices based on nanorods*. Journal of Physics, Conference Series 209, 012001, 2010
- [Cheze2010] C. Chèze, L. Geelhaar, O. Brandt, W. M. Weber, H. Riechert, S. Münch, R. Rothmund, S. Reitzenstein, A. Forchel, T. Kehagias, P. Komninou, G. P. Dimitrakopoulos, and T. Karakostas *Direct Comparison of Catalyst-Free and Catalyst-Induced GaN Nanowires*. Nano Research 3, 528-536, 2010
- [Colby2010] R. Colby, Z. Liang, I.H. Wildeson, D.A. Ewoldt, T.D. Sands, R.E. Garcia, E.A. Stach *Dislocation Filtering in GaN Nanostructures*. Nano Letters, Vol. 10, 1568-1573, 2010
- [Cree2010] Cree *Silicon Carbide Substrates and Epitaxy*. <http://www.cree.com/products/pdf/MAT-CATALOG.pdf>
- [Daudin1997] B. Daudin, J.L. Rouviere, M. Arlery *The key role of polarity in the growth process of (0001) nitrides*. Material Science and Engineering, Volume 43, 157-160, 1997
- [Daiminger2006] F. Daiminger *Spezialgebiete Optoelektronik, Lasertechnologie*. Vorlesung an der University of Applied Sciences Deggendorf, 2006
- [Dadgar2000] A. Dadgar, J. Bläsing, A. Diez, A. Alam, M. Heuken and A. Krost *Metalorganic Chemical Vapor Phase Epitaxy of Crack-Free GaN on Si (111) Exceeding 1 μ m in Thickness*. Japanese Journal of Applied Physics, Volume 39, L1183-L1185, 2000
- [Dadgar2007] A. Dadgar, F. Schulze, M. Wienecke, A. Gadanez, J. Bläsing, P. Veit, T. Hempel, A. Diez, J. Christen and A. Krost *Epitaxy of GaN on silicon - impact of symmetry and surface reconstruction*. New Journal of Physics, 9, 389, 2007

- [Degave2002] F. Degave, P. Ruterana, G. Nouet, J.H. Je, C.C. Kim *Analysis of the nucleation layer of GaN layers on 0001 sapphire*. Materials Science and Engineering, Volume 93, 177-180, 2002
- [Dingle1955] R.B. Dingle *Scattering of Electrons and Holes by Charged Donors and Acceptors in Semiconductors*. Philosophical Magazine 46, 831 - 840, 1955
- [Dwikusuma2003] F. Dwikusuma, J. Mayer, T.F. Kuech *Nucleation and initial growth kinetics of GaN on sapphire substrate by hydride vapor phase epitaxy*. Journal of Crystal Growth, 258, 65-74, 2003
- [Edwards2003] P.R. Edwards, R.W. Martin, K.P. O'Donnell, I.M. Watson *Simultaneous composition mapping and hyperspectral cathodoluminescence imaging of InGaN epilayers*. phys. stat. sol. (a) 201, No. 4, 665-672 (2004)
- [Eliseev1999] Petr. G. Eliseev, Marek Osin'ski, Hua Li, Irina V. Akimova *Recombination balance in green-light-emitting GaN/InGaN/AlGaIn quantum wells*. Applied physics letters, volume 74, Number 24, 13 December 1999
- [Engl2005] Karl Engl *TEM-Analysen an Gruppe III-Nitrid Heterostrukturen*. Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades, Dezember 2005
- [Eshelby1953] J.D. Eshelby *Screw Dislocations in Thin Rods*. Journal of Applied Physics, volume 24, Number 2, 1953
- [Feneberg2006] M. Feneberg, F. Lipski, R. Sauer, K. Thonke, T. Wunderer, B. Neubert, P. Brückner and F. Scholz *Piezoelectric fields in GaInN/GaN quantum wells on different crystal facets*. Applied physics letters, Volume 89, 242112, 17. August 2006
- [Fichtenbaum2007] N.A. Fichtenbaum, C.J. Neufeld, S. Schaake, Y. Wu, M.H. Wong, M. Grundmann, S. Keller, S.P. DenBaars, J.S. Speck, U.K. Mishra *MOCVD regrowth in InGaIn on N-polar and Ga-polar pillar and stripe nanostructures*. physica status solidi (b), No. 6, 1802 - 1805, 2007
- [Firsching2006] P. Firsching *Modellbildung und Simulation, Vertiefung*. Vorlesung an der University of Applied Sciences Deggendorf, 2006
- [Frank1949] F.C. Frank, J. van der Merwe *One-Dimensional Dislocations. II. Misfitting Monolayers and Oriented Overgrowth* Proceedings of the Royal Society A, 198, 216-225, 1949
- [Frank1951] F.C. Frank *Capillary Equilibria of Dislocated Crystals* Acta Crystallographica, Volume 4, Issue 6, pages 497-501, 1951
- [Fuendling2009] S. Li, S. Fuendling, U. Soekmen, S. Merzsch, R. Neumann, P. Hinze, T. Weimann, U. Jahn, A. Trampert, H. Riechert, E. Peiner, H.H. Wehmann, A. Waag *GaN and LED structures grown on pre-patterned silicon pillar arrays* Physica Status Solidi C 7, No. 1, 84-87, 2010
- [Garcia1998] M.A. Sanchez-Garcia, E. Calleja, E. Monroya, F.J. Sanchezza, F. Callea, E. Munoz and R. Beresford *The effect of the III/V ratio and substrate temperature on the morphology and properties of GaN- and AlN-layers grown by molecular beam epitaxy on Si(1 1 1)*. Journal of Crystal Growth 183, 23-30, 1998
- [Geelhaar2007] L. Geelhaar, C. Cheze, W.M. Weber, R. Averbeck, H. Riechert, Th. Kehagias, Ph. Kominou, G. P. Dimitrakopoulos, and Th. Karakostas *Axial and radial growth of Ni-induced GaN nanowires*. Applied Physics Letters 91, 093113, 2007
- [Glassbrenner1964] C.J. Glassbrenner, G.A. Slack *Thermal conductivity of Silicon and Germanium from 3 K to the Melting Point*. Physical Review, Volume 134, Number 4A, May 1964
- [Gmeinwieser2006] Nikolaus Gmeinwieser *Hochaufgelöste spektroskopische Untersuchungen an Galliumnitrid*. Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades, Juli 2006
- [Goetz1996] W. Götz, N.M. Johnson, C. Chen, H. Liu, C. Kuo, W. Imler *Activation energies of Si donors in GaN*. Applied Physics Letters 68, 22, 3144-3146, 1996
- [Hangleiter1998] Andreas Hangleiter, Jin Seo Im, H. Kollmer, S. Heppel, J. Off, Ferdinand Scholz *The role of piezoelectric fields in GaN-based quantum wells*. MRS Internet J. Nitride Semiconductors Research 3, 15, 1998

- [Haerle2004] V. Haerle, B. Hahn, S. Kaiser, A. Weimar, S. Bader, F. Eberhard, A. Plössl, D. Eisert *High brightness LEDs für general lighting applications using the new ThinGaN-Technology*. phys. stat. sol. (a) 201, No.12, 2736-2739, September 2004
- [Hersee2006] S. D. Hersee, X. Sun, X. Wang *The Controlled Growth of GaN Nanowires*. Nano Letters, Vol. 6, No. 8, 1808 - 1811
- [Hersee2008] S.D. Hersee, M. Fairchild, A.K. Rishinaramangalam *MOVPE Grown GaN Nanowires and Nanowire Devices*. Invited Talk and private communication, IWN Montreux, 2009
- [Hersee2009] S.D. Hersee, M. Fairchild, A.K. Rishinaramangalam, M.S. Ferdous, L. Zhang, P.M. Varangis, B.S. Swartzentruber, A.A. Talin *GaN nanowire light emitting diodes based on templated and scaleable nanowire growth process*. Electronic Letters, Vol. 45, No. 1, 2009
- [Hiramatsu1991] K. Hiramatsu, S. Itho, H. Amano, I. Akasaki, N. Kuwano, T. Shiraishi, K. Oki *Growth mechanism of GaN grown on sapphire with AlN buffer layer by MOVPE*. Journal of Crystal Growth 115, 628 - 633, 1991
- [Hollander2006] J.L. Hollander, M.J. Kappers, C. Johnston, C. McAleese, C.J. Humphreys *Growth of (11 $\bar{2}$ 0) and (11 $\bar{2}$ 2) GaN on r- and m-plane Sapphire*. Präsentation UKNC 2006 Conference, Glasgow Januar 2006
- [Illek2003] S. Illek, I. Pietzonka, A. Plössl, P. Stauss, W. Wegleiter, R. Windisch, R. Wirth, H. Zull, K. Streubel *Scalability of buried micro-reflector light emitting diodes for high-current applications*. Proceedings of SPIE Vol. 4996, 2003
- [Im1998] Jin Seo Im, H. Kollmer, J. Off, A. Sohmer, F. Scholz, A. Hangleiter *Reduction of oscillator strength due to piezoelectric fields in GaN/AlGaIn quantum wells*. Physical Review B, Volume 57, Number 16, 15. April 1998
- [Jain2000] S. C. Jain, M. Willander, J. Narayan, R. Van Overstraeten *III-nitrides: Growth, characterisation and properties*. Journal of Applied Physics, Vol. 87, No. 3, 965-1006, 2000
- [Jeon1996] J. B. Jeon, Yu. M. Sirenko, K.W. Kim, M. A. Littlejohn, M. A. Strosio *Valence Band parameters of wurtzite materials*. Solid State Communications, Vol. 99, No. 6, pp. 423-426, 1996
- [Kato1994] Y.Kato, S. Kitamura, K. Hiramatsu, N. Sawaki *Selective growth of wurtzite GaN and Al-GaN on GaN/sapphire substrates by metalorganic vapor phase epitaxy*. Journal of Crystal Growth, Number 144, 133-140, 27. May 2004
- [Kapolnek1997] D. Kapolnek, S. Keller, R. Vetury, R.D. Underwood, P. Kozodoy *Anisotropic epitaxial lateral growth in GaN selective area epitaxy*. Applied Physics Letters, Vol. 71, 1204-1206, 1997
- [Karpov2004] S.Yu. Karpov, K.A. Bulashevich, I.A. Zhmakin, M.O. Nestoklon, V.F. Mymrin, Yu.N. Makarov *Carrier injection and light emission in visible and UV nitride LEDs by modeling*. phys. stat. sol. (b) 241, Number 12, 2668-2671, 14. September 2004
- [Keller1996] S. Keller, B.P. Keller, D. Kapolnek, A.C. Abare, H. Masui, L.A. Coldren, U.K. Mishra, S.P. DenBaars *Growth and characterisation of bulk InGaIn films and quantum wells*. Applied Physics Letters, Vol. 68, 3147-3149, 1996
- [Kikuchi2004] A. Kikuchi, M. Kawai, M. Tada, K. Kishino *InGaIn/GaN Multiple Quantum Disk Nanocolumns Light-Emitting Diodes Grown on (111) Si Substrate*. Japanese Journal of Applied Physics, Vol 43, No. 12A, L1524-L1526, 2004
- [Kim2002] H. Kim, D. S. Kim, D.Y. Kim, T.W. Kang, Y. Cho, and K. S. Chung *Growth and characterization of single-crystal GaN nanorods by hydride vapor phase epitaxy*. Applied physics letters, Volume 81, 2193, 2002
- [Kim2004] H. Kim, Y. Cho, H. Lee, S. Kim, S. Ryu, D.Y. Kim, T.W. Kang, K.S. Chung *High-Brightness Light Emitting Diodes Using Dislocation-Free Indium Gallium Nitride / Gallium Nitride Multi-quantum-Well Nanorod Arrays*. Applied physics letters, Volume 81, 2193, 2002
- [Kim2007] Kwang-Choon Kim, Mathew C. Schmidt, Hitoshi Sato, Feng Wu, Natalie Fellows, Makoto Saito, Kenji Fujito, James S. Speck, Shuji Nakamura, Stefen P. DenBaars *Improved electroluminescence on nonpolar m-plane InGaIn/GaN quantum wells LEDs*. Rapid research letters, phys. stat. sol. (RRL) 1, Number 3, 125-127, 12. April 2007

- [Kim2007b] Kwang-Choon Kim, Mathew C. Schmidt, Hitoshi Sato, Feng Wu, Natalie Fellows, Makoto Saito, Kenji Fujito, James S. Speck, Shuji Nakamura, Stefan P. DenBaars *Study of nonpolar m-plane InGaN/GaN multi-quantum well light emitting diodes grown by homoepitaxial metal-organic chemical vapor deposition*. Applied physics letters, Volume 91, 181120, 2. November 2007
- [Kim2007c] Min-Ho Kim, Martin F. Schubert, Qi Dai, Jong Kyu Kim, E. Fred. Schubert *Origin of efficiency droop in GaN-based light-emitting diodes*. Applied physics letters, Volume 91, 183507, 2007
- [Kishino2007] K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi, S. Ishizawa *InGaN/GaN Nanocolumn LEDs Emitting from Blue to Red*. Proceedings of SPIE, Vol. 6473, 64730T, 2007
- [Kishino2008] K. Kishino, T. Hoshino, S. Ishizawa, A. Kikuchi *Selective-area growth of GaN nanocolumns on titanium-mask-patterned silicon (111) substrates by RF-plasma-assisted molecular-beam epitaxy*. Electronic Letters, Volume 44, Issue 13, p819-821, 2008
- [Kishino2009] K. Kishino, H. Sekiguchi, A. Kikuchi *Improved Ti-mask selective-area growth (SAG) by rf-plasma-assisted molecular beam epitaxy demonstrating extremely uniform GaN nanocolumn arrays*. Journal of Crystal Growth 311, 2063-2068, 2009
- [Klingshirn2005] Claus Klingshirn *Semiconductor Optics*. Springer Verlag Berlin Heidelberg, 2005
- [Koelper2010] Christopher Kölper, Werner Bergbauer, Philipp Drechsel, Matthias Sabathil, Martin Straßburg, Hans-Jürgen Lugauer, Bernd Witzigmann, Sönke Fündling, Shunfeng Li, Hergo-Heinrich Wehmann, Andreas Waag *Towards nanorod LEDs - Numerical predictions and controlled growth*. Physica status solidi C, pssc.201000922.R1, 2010
- [Koester2010] R. Koester, J.S. Hwang, C. Durand, D. Le Si Dang, J. Eymery *Self-assembled growth of catalyst-free GaN wires by metal-organic vapour phase epitaxy*. Nanotechnology 21, 015602, 2010
- [Koleske1998] D. D. Koleske, A. E. Wickenden, R. L. Henry, W. J. DeSisto, R. J. Gorman *Growth model for GaN with comparison to structural, optical, and electrical properties*. Journal of Applied Physics, 84, 1998, 1998
- [Koleske2001] D. D. Koleske, A. E. Wickenden, R. L. Henry, J.C. Culbertson, M.E. Twigg *GaN decomposition in H₂ and N₂ at MOVPE temperatures and pressures*. Journal of Crystal Growth, 223, 466-483, 2001
- [Koleske2002] D. D. Koleske, A. E. Wickenden, R. L. Henry, M.E. Twigg *Influence of MOVPE growth conditions on carbon and silicon concentrations in GaN*. Journal of Crystal Growth, 242, 55-69, 2002
- [Kuchling2001] Horst Kuchling *Taschenbuch der Physik*. Carl Hanser Verlag München, Wien, 2001
- [Kuykendall2003] T. Kuykendall, P. Pauzuskie, S. Lee, Y. Zhang, J. Goldberger, and P. Yang *Metalorganic Chemical Vapor Deposition Route to GaN Nanowires with Triangular Cross Sections*. Nano Letters 3, 8, pp 1063-1066, 2003
- [Kuykendall2004] T. Kuykendall, P. Pauzuskie, Y. Zhang, J. Goldberger, D. Sirbuly, J. Denlinger and P. Yang *Crystallographic alignment of high-density gallium nitride nanowire arrays*. Nature materials, Vol. 3, 824-828, 2004
- [Kuykendall2007] T. Kuykendall, P. Ulrich, A. Aloni, P. Yang *Complete composition tunability of InGaN nanowires using a combinatorial approach*. Nature materials, Vol. 6, 951-956, 2007
- [Kyocera2010] Kyocera *Single Crystal Sapphire*. americas.kyocera.com/kicc/pdf/Kyocera%20Sapphire.pdf, 19.10.2010
- [Laak2007] N. K. van der Laak, R. A. Oliver, M. J. Kappers, C. J. Humphreys *Role of gross well-width fluctuations in bright, green emitting single InGaN/GaN quantum well structures*. Applied physics letters, Volume 91, 181120, 2. November 2007
- [Laubsch2009] A. Laubsch, M. Sabathil, W. Bergbauer, M. Strassburg, H.J. Lugauer, M. Peter, S. Lutgen, N. Linder, K. Streubel, J. Hader, J.V. Moloney, B. Pasenow and S.W. Koch *On the origin of IQE-droop in InGaNLEDs*. Phys. Status Solidi C 6(S2), 913-916, 2009
- [Laehnemann2010] J. Lähnemann, W. Bergbauer, M. Strassburg, C. Roder, A. Trampert *CL results on MOVPE grown nanostructures*. Private communication, MONALISA BMBF project, 2010

- [Lee2009] K.H. Lee, J.Y. Lee, Y.H. Kwon, T.W. Kang, J.H. You, D.U. Lee, T. Kim *Effects of defects on the morphologies of GaN nanorods grown on Si(111) substrates*. Journal of Material Research, Volume 24, No. 10, 2009
- [Lee2009b] Y.J. Lee, S.Y. Lin, C.H. Chiu, T.C. Lu, H.C. Kuo, S.C. Wang, S. Chhajed, J.K. Kim, E.F. Schubert *High output power density from GaN-based two-dimensional nanorod light-emitting diode arrays*. Applied Physics Letters, 94, 141111, 2009
- [Ledig2010] J. Ledig, S. Merzsch, W. Bergbauer, M. Straßburg, M. Al-Suleiman, M. Erenburg, S.-F. Li, R. Neumann, H.-H. Wehmann, A. Waag *Spectrally resolved electroluminescence of single InGaN/GaN nano-LEDs*. Präsentation International Workshop on Nitride Semiconductors, USA, Tampa, 2010
- [Leszczynski1994] M. Leszczynski, T. Suski, H. Teisseyre, P. Perlin, I. Grzegory, J. Jun, S. Porowski, and T. D. Moustakas *Thermal expansion of Gallium Nitride*. Journal of Applied Physics, 76, 4904, 1994
- [Li2001] D. Li, S. Fuke, D. Yang, D. Que, Y. Suzuki, Y. Fukuda *Selective etching of GaN polar surface in potassium hydroxide solution studied by x-ray photoelectron spectroscopy*. Journal of Applied Physics, Volume 90, Number 8, 2001
- [Liliental1997] Z. Liliental-Weber, Y. Chen, S. Ruvimov, J. Washborg *Formation Mechanism of Nanotubes in GaN*. Physical Review Letters, Volume 79, Number 15, 1997
- [Lin2010] H.W. Lin, Y.J. Lu, H.Y. Chen, H.M. Lee, S. Gwo *InGaN/GaN nanorod array white light-emitting diode*. Applied Physics Letters, 97, 073101, 2010
- [Liu1972] S.S. Liu, D.A. Stevenson *Growth Kinetics and Catalytic Effects in the Vapor Phase Epitaxy of Gallium Nitride*. Journal of Electrochemical Society, Solid-State Science and Technology, Vol. 125, No. 7, 1161- 1169, 1972
- [Liu2004] H.-P. Liu, I.-G. Chen, J.-D. Tsay, W.-Y. Liu, Y.-D. Guo, J.-T. Hsu *Influence of Growth Temperature on Surface Morphologies of GaN Crystals Grown on Dot-Patterned Substrate by Hydride Vapor Phase Epitaxy*. Journal of Electroceramics, 13, 839-846, 2004
- [Loboda1998] M.J. Loboda, C.M. Grove, R.F. Schneider *Properties of a - SiO_x : H Thin Films Deposited from Hydrogen Silsesquioxane Resins*. Journal of Electrochemical Society, Vol. 145, No. 8, 2861-2866, 1998
- [Lyons2010] J.L. Lyons, A. Janotti, C.G. Van de Walle *Carbon impurities and the yellow luminescence in GaN*. Applied Physics Letters, 97, 152108, 2010
- [Martin1996] G. Martin, A. Botchkarev, A. Rockett, H. Morcoc *Valence-band discontinuities of wurtzite GaN, AlN, and InN heterojunctions measured by x-ray photoemission spectroscopy*. Applied physics letters 68(18), 29. April 1996
- [Martin2004] R.W. Martin, P.R. Edwards, K.P. O'Donnell, M.D. Dawson, C.-W. Jeon, C. Liu, R.R. Rice, I.M. Watson *Cathodoluminescence spectral mapping of III-nitride structures*. phys. stat. sol. (a) 201, No. 4, 665-672 (2004)
- [Mamutin2000] V.V. Mamutin, V.A. Vekshin, V.N. Jmerik, V.V. Ratnikov, V.Yu. Davydov, N.A. Cherkashin, S.V. Ivanov, G. Pozina, J.P. Bergman, B. Monemar *Growth of Self-Organized GaN Nanostructures on Al₂O₃ (0001) by RF MBE*. Proceedings International Workshop on Nitride Semiconductors, IPAP Conf. Series 1, pp. 413-416, 2000
- [Manasreh2003] M.O. Manasreh, E.T. Yu *III-V NITRIDE SEMICONDUCTORS Applications and Devices*. Taylor and Francis Verlag New York, 2003
- [Micheletto2006] Ruggero Micheletto, Masayoshi Abiko, Akio Kaneta, Yoichi Kawakami, Yukio Narakawa, Takashi Mukai *Observation of optical instabilities in the photoluminescence of InGaN single quantum well*. Applied physics letters, 88, 061118, 2006
- [Miller2005] Stephan Erich Miller *Methoden zur Defektreduzierung in optoelektronischen GaInN-Bauelementen - Epitaxie und Charakterisierung*. Dissertation, ISBN 3-86537-925-7, 2005
- [Mnatsakanov2002] Tigran T. Mnatsakanov, Michael E. Levinshtein, Lubov I. Pomortseva, Sergey N. Yurkov, Grigory S. Simin, M. Asif Khan *Carrier mobility model for GaN*. Solid-State Electronics 47, 111-115, 2003
- [Morkoc1994] H. Morkoc, S. Strite, G.B. Gao, M.E. Lin, B. Sverdlov, M.Burns *Large-band-gap SiC, III-V nitride, and II-VI ZnSe-based semiconductor device technologies*. J. Appl. Phys. 76 (3), 1 August 1994

- [Nam1998] Ok-Hyun Nam, Tsevetanka S. Zheleva, Michael D. Bremser, Robert F. Davis *Lateral Epitaxial Overgrowth of GaN Films on SiO₂ Areas via Metalorganic Vapor Phase Epitaxy*. Journal of Electronic Materials, Vol. 27, No. 4, 1998
- [Nonnenmacher1991] M. Nonnenmacher, M. P. O'Boyle, H. K. Wickramasinghe *Kelvin probe force microscopy Lateral Epitaxial Overgrowth of GaN Films on SiO₂ Areas via Metalorganic Vapor Phase Epitaxy*. Applied Physics Letters, Vol. 58, No. 25, pp. 2921-2923, 1991
- [Northrup1999] J.E. Northrup, L.T. Romano, J. Neugebauer *Surface energetics, pit formation, and chemical ordering in InGaN alloys*. Applied Physics Letters, Vol. 74, No. 16, pp. 2319-2321, 1999
- [Northrup2004] J.E. Northrup, J. Neugebauer *Strong affinity of hydrogen for the GaN (000-1) surface: Implications for molecular beam epitaxy and metalorganic chemical vapor deposition*. Applied Physics Letters, Vol. 85, No. 165, pp. 3429-3431, 2004
- [Northrup2009] J.E. Northrup *Impact of hydrogen on indium incorporation at m-plane and c-plane In_{0.25}Ga_{0.75}N surfaces: First-principles calculations*. Physical Review B, Vol. 79, 041305(R), 2009
- [Okaji1988] M. Okaji *Absolute Thermal Expansion Measurements of Single-Crystal Silicon in the Range 300-1300 K with and Interferometric Dilatometer*. International Journal of Thermophysics, Vol. 9, No. 6, 1988
- [Piner1996] E.L. Piner, M.K. Behbehani, N.A. El-Masry, F.G. McIntosh, J.C. Roberts, K.S. Boutros, S.M. Bedair *Effect of hydrogen on the indium incorporation in InGaN epitaxial films*. Applied Physics Letters, 70, 461-463, 1996
- [Pollmann1983] J. Pollmann, A. Mazur *Theory of semiconductor Heterojunctions*. Thin Solid Films, 104 (257-276), March 1983
- [Ponce1996] F.A. Ponce, D.P. Bour, W.T. Young, M. Saunders, J.W. Steeds *Determination of lattice polarity for growth of GaN bulk single crystals and epitaxial layers*. Applied Physics Letters, 69, 337, 1996
- [Qian1995] W. Qian, M. Skowronski, K. Doverspike, L.B. Rowland, D.K. Gaskill *Observation of nanopipes in α -GaN crystals*. Journal of Crystal Growth, Volume 151, 396-400, 1995
- [Qian2004] F. Qian, Y. Li, S. Gradecak, D. Wang, C.J. Barrelet, C.M. Lieber *Gallium Nitride-Based Nanowire Radial Heterostructures for Nanophotonics*. Nano Letters, Vol. 4, No. 10, 1975-1979, 2004
- [Qian2005] F. Qian, S. Gradecak, Y. Li, C.Y. Wen, C.M. Lieber *Core/Multishell Nanowire Heterostructures as Multicolor, High-Efficiency Light-Emitting Diodes*. Nano Letters, Vol. 5, No. 11, 2287-2291, 2005
- [Qian2008] F. Qian, S. Gradecak, H.G. Park, Y. Dong, Y. Ding, Z.L. Wang and C.M. Lieber *Multi-quantum-well nanowire heterostructures for wavelength-controlled lasers*. Nature materials, Vol. 7, 701-706, 2008
- [Ramachandran1999] V. Ramachandran, R. M. Feenstra, W. L. Sarney, L. Salamanca-Riba, J. E. Northrup, L. T. Romano, and D. W. Greve *Inversion of wurtzite GaN(0001) by exposure to magnesium*. Applied Physics Letters, Volume 75, 808, 1999
- [Reshchikov2005] M.A. Reshchikov, H. Morkoc *Luminescence properties of defects in GaN*. Journal of Applied Physics, Volume 97, 061301, 2005
- [Roder2010] C. Roder, W. Bergbauer, M. Strassburg, J. Lähnemann, A. Trampert *TEM results on MOVPE grown nanostructures*. Private communication, MONALISA BMBF project, 2010
- [Rosenauer1996] Rosenauer A., Kaiser S., Reisinger T., Zweck J., Gebhardt W., Gerthsen D. *Digital analysis of high resolution transmission electron microscopy*. Optik, ISSN 0030-4026, 1996
- [SAFC2010] SAFC® *Deposition Precursor Products*. <http://www.safcglobal.com/safc-hitech/en-us/home/overview/products.html>, 18.10.2010
- [Sacconi2010] F. Sacconi, G. Penazzi, A. Pecchia, M. Auf der Maur, A. Di Carlo *Optoelectronic and transport properties of Nanocolumnar InGaN/GaN quantum disk LEDs*. Proceedings of SPIE, Vol. 7597, 75970D-1, 2010

- [Schubert2006] E.F. Schubert *Light-Emitting Diodes, 2nd Edititon*. Cambridge University Press, Cambridge, 2006
- [Schubert2007] Martin F. Schubert, Sameer Chhajed, Jong Kyu Kim, E. Fred Schubert, Daniel D. Koleske, Mary H. Crawford, Stephen R. Lee, Arthur J. Fischer, Gerald Thaler, Michael A. Banas *Effect of dislocation density on efficiency droop in GaInN/GaN light-emitting diodes*. Applied physics letters, Volume 91, 231114, 2007
- [Schwarz2007] Ulrich T. Schwarz, Michael Kneissl *Nitride emitters go nonpolar*. Rapid research letters, phys. stat. sol (RRL) 1, Number 3, A44-A46, 2007
- [Sekiguchi2010] H. Sekiguchi, K. Kishino, A. Kikuchi *Emission colour from blue to red with nanocolumn diameter of InGaN/GaN nanocolumn arrays grown on same substrate*. Applied physics letters, Volume 96, 231104, 2010
- [Seguin2004] R. Seguin, S. Rodt, A. Strittmatter, L. Reißmann, T. Bartel, A. Hoffmann, D. Bimberg, E. Hahn, D. Gerthsen *Multi-excitonic complexes in single InGaN quantum dots*. Applied physics letters, Volume 84, Number 20, 2004
- [Seryogin2005] G. Seryogin, I. Shalish, W. Moberlychan and V. Narayanamurti *Catalytic hydride vapour phase epitaxy growth of GaN nanowires*. Nanotechnology 16, 2342-2345, 2005
- [Shen2007] Y.C. Shen, G.O. Mueller, S. Watanabe, N.F. Gardner, A. Munkholm, M.R. Krames *Auger recombination in InGaN measured by photoluminescence*. Applied physics letters, Volume 91, 141101, 2007
- [Shibata1987] N. Shibata, S. Zembutsu *A Boundary Layer Model for the MOCVD Process in a Vertical Cylinder Reactor*. Applied Physics Letters, Volume 91, 141101, 2007
- [Shields2010] P. Shields, C. Liu, A. Satka, A. Trampert, J. Zuniga-Perez, B. Alloing, D. Hasko, F. Uherek, W. Wang, F. Causa, D. Allsopp *Nanopendoe coalescence overgrowth of GaN on etched nanorod array*. Eingereicht bei physica status solidi, 2010
- [SFLi2010] S.F. Li, S. Fuendling, X. Wang, S. Merzsch, M. Suleiman, J. D. Wei, H.-H. Wehmann, A. Waag, W. Bergbauer, M. Strassburg *Polarity and its Influence on Growth Mechanism during MOVPE Growth of GaN Nanorods*. Crystal Growth and Design, cg-2010-01537m.R2, 2011
- [SFLi2010b] S.F. Li, S. Fuendling, X. Wang, M. Erenburg, M. Suleiman, J. D. Wei, W. Bergbauer, M. Strassburg, H.-H. Wehmann, A. Waag *Selective Area Growth of GaN Nanorods by MOVPE: Dependence on Growth conditions*. Physica status solidi C, pssc.201001003.R1, IWN Proceedings, 2010
- [Singh1997] R. Singh, D. Doppalapudi, T.D. Moustakas, L.T. Romano *Phase separation in InGaN thick films and formation of InGaN/GaN double heterostructures in the entire alloy composition*. Applied Physics Letters, Volume 70, 1089-1091, 1997
- [Sitar1994] Z. Sitar, L.L. Smith, R.F. Davis *Interface chemistry and surface morphology in the initial stages of growth of GaN and AlN on α -SiC and sapphire*. Journal of Crystal Growth 141, 11-21, 1994
- [Stephan2003] Thilo Stephan *Einfluss der Lumineszenzmechanismen und der elektrischen Kontakte auf die Effizienz von InGaN Leuchtdioden*. Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades, Dezember 2003
- [Stranski1939] I.N. Stranski *Über Wachstumserscheinungen an Cd-Einkristallen und deren Bedeutung für die Ermittlung der zwischen den Gitteratomen wirksamen Kräften*. Berichte der Deutschen Chemischen Gesellschaft, 72. Jahrgang. Nr. 12, 141-150, 1939
- [Streubel2002] Klaus Streubel, Norbert Linder, Ralph Wirth, Arndt Jaeger *High Brightness AlGaInP Light-Emitting Diodes*. IEEE Journal on selected topics in quantum electronics, Vol. 8, No.2, March/April 2002
- [Stringfellow1989] G.B. Stringfellow *Organometallic Vapor-Phase Epitaxy*. Academic Press Inc. (London) Ltd., ISBN 0-12-673840-8
- [Sumiya2000] M. Sumiya, K. Yoshimura, T. Ito, K. Ohtsuka, S. Fuke, K. Mizuno, M. Yoshimoto, H. Koinuma, A. Ohtomo, M. Kawasaki *Growth mode and surface morphology of a GaN film deposited along the N-face polar direction on c-plane sapphire substrates*. Journal of Applied Physics, Vol. 88, Number 2, 2000

- [Tang2008] T.Y. Tang, W.Y. Shiao, C.H. Lin, K.C. Shen, J.J. Huang, S.Y. Ting, T.C. Liu, C.C. Yang, C.L. Yao, J.H. Yeh, T.C. Hsu, W.C. Chen, H.C. Hsu, L.C. Chen *Coalescence overgrowth of GaN nanocolumns on sapphire with patterned metal organic vapor phase epitaxy* Journal of Applied Physics, 105, 023501
- [Tavernier2004] P.R. Tavernier, T. Margalith, J. Williams, D.S. Green, S. Keller, S.P. DenBaars, U.K. Mishra, S. Nakamura, D.R. Clarke *The growth of N-face GaN by MOCVD: effect of Mg, Si and In* Journal of Crystal Growth 264, 150-158, 2004
- [Theije1998] F.K de Theije, A.R.A. Zauner, P.R. Hageman, W.J.P. van Enckevort, P.K. Larsen *An atomic force microscopy study of a temperature dependent morphology transition of GaN grown on sapphire by MOCVD* Journal of Crystal Growth 197, 37-47, 1999
- [Tipler1994] Paul A. Tipler *Physik*. Spektrum Akademischer Verlag GmbH, 1994
- [Varshni1967] Y. P. Varshni *Temperature dependence of the energy gap in semiconductors*. Physica Vol. 34, 149-154, 1967
- [Vennegues1997] P. Vennegues, B. Beaumont, S. Haffouz, M. Vaille, P. Gibart *Influence of in situ sapphire surface preparation and carrier gas on the growth mode of GaN in MOVPE*. Journal of Crystal Growth 187, 167-177, 1997
- [Vennegues1997b] P. Vennegues, B. Beaumont, M. Vaille, P. Gibart *Study of open-core dislocations in GaN films on (0001) sapphire*. Applied Physics Letters, Volume 70, Number 18, 1997
- [Vennegues1999] P. Vennegues, B. Beaumont *Transmission electron microscopy study of the nitridation of the (0001) sapphire surface*. Applied Physics Letters, Volume 75, Number 26, 1999
- [Vurgaftman2003] I. Vurgaftman and J. R. Meyer *Band parameters for nitrogen-containing semiconductors*. Journal of Applied Physics, Volume 94, Number 6, 15. September 2003
- [Volmer1926] M. Volmer, A. Weber *Keimbildung in übersättigten Gebilden*. Zeitschrift für Physikalische Chemie, 1926
- [Waag2010] A. Waag, X. Wang, S. Fündling, J. Ledig, M. Erenburg, R. Neumann, M. Suleiman, S. Merzsch, J. Wei, S. Li, H. H. Wehmann, W. Bergbauer, M. Straßburg, A. Trampert, U. Jahn, H. Riechert *The Nanorod Approach : GaN NanoLEDs for Solid State Lighting*. Physica status solidi, Proceedings IWN, pssc.201000989.R1, 2010
- [Walle1997] Chris G. Van de Walle, Jörg Neugebauer *Small valence-band offsets at GaN/InGaN heterojunctions*. Applied Physics Letters, Volume 70, 2577, 1997
- [Walle2004] C.G. Van de Walle, J. Neugebauer *First-principles calculations for defects and impurities: Applications to III-nitrides*. Journal of Applied Physics, Vol. 95, No. 8, 2004
- [Wagner1965] R.S. Wagner, W.C. Ellis *The Vapor-Liquid-Solid Mechanism of Crystal Growth and Its Application to Silicon*. Transactions of the Metallurgic Society of Aime, Volume 233, 1053-1064, 1965
- [Wang2008] C.Y. Wang, L.Y. Chen, C.P. Chen, Y.W. Cheng, M.Y. Ke, M.Y. Hsieh, H.M. Wu, L.H. Peng, J.J. Huang *GaN nanorod light emitting diode arrays with a nearly constant electroluminescent peak wavelength*. Optics Express, Vol. 16, No. 14, 10549-10556, 2008
- [Wei2010] Jiandong Wei, Richard Neumann, Xue Wang, Shunfeng Li, Sönke Fündling, Stephan Merzsch, Mo-hamed M.-A Suleiman, Ünsal Sökmen, Hergo -H. Wehmann and Andreas Waag *Polarity analysis of GaN nanorods by photo-assisted Kelvin probe force microscopy*. Eingereicht bei physica status solidi, Proceedings IWN, 2010
- [Wu1996] X.H. Wu, P. Fini, S. Keller, E. J. Tarsa, B. Heying, U. K. Mishra, S. P. DenBaars, J.S. Speck *Morphological and Structural Transitions in GaN Films Grown on Sapphire by Metal-Organic Chemical Vapor Deposition*. Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 35, L1648-L1651, 1996
- [Wulff1901] G. Wulff *Zur Frage der Geschwindigkeit des Wachstums und der Auflösung der Kristallflächen*. Zeitschrift für Kristallographie und Mineralogie, 34, 449-530, 1901
- [Wunderer2010] T. Wunderer, M. Feneberg, F. Lipski, J. Wang, R.A.R. Leute, S. Schwaiger, K. Thonke, A. Chuvillin, U. Kaiser, S. Metzner, F. Bertram, J. Christen, G.J. Beirne, M. Jetter, P. Michler, L. Schade, C. Vierheilg, U.T. Scharz, A.D. Dräger, A. Hangleiter, F. Scholz *Three-dimensional GaN for semipolar light emitters*. Physica Status Solidi B, 1-12, 2010

- [Yoshizawa1998] M. Yoshizawa, A. Kikuchi, N. Fujita, K. Kushi, H. Sasamoto and K. Kishino *Self-organization of GaN/Al_{0.18}Ga_{0.82}N multi-layer nano-columns on (0 0 0 1) Al₂O₃ by RF molecular beam epitaxy for fabricating GaN quantum disks*. Journal of Crystal Growth 189-190, 138-141, 1998
- [Zhuang2005] D. Zhuang, J.H. Edgar *Wet etching of GaN, AlN, and SiC: a review*. Materials Science and Engineering R48, 2005

Lebenslauf und Veröffentlichungen

Persönliche Angaben

Name: Werner Bergbauer
Geburtsdatum: 28.07.1982
Geburtsort: Regensburg
Familienstand: verheiratet

Ausbildung

04/2008 - 05/2011 Promotion bei der OSRAM Opto Semiconductors GmbH in Regensburg in der Abteilung Advanced Concepts and Engineering in enger Kooperation mit dem Institut für Halbleitertechnik der TU Braunschweig. Betreuung: Prof. Dr. Andreas Waag
Thema: „3-dimensionale GaN Nanostrukturen - Grundlagen neuartiger Leuchtdioden“

10/2006 - 03/2008 Studium an der Hochschule Deggendorf
Master of Electrical Engineering in Micro- and Optoelectronics

10/2002 - 09/2006 Studium an der Hochschule Deggendorf
Diplomingenieur für Elektro- und Informationstechnik in Nachrichtentechnik, Mikro- und Optoelektronik

09/1998 - 07/2001 Duale Berufsausbildung mit Fachhochschulreife bei der BMW Group Dingolfing
Juli 2001: Fachabitur
Januar 2001: Berufsabschluss Energieelektroniker

09/1994 - 07/1998 Ludmilla - Realschule Bogen

Veröffentlichungen und Vorträge

- eingereicht T. Eriksson, K. D. Lee, B. Heidari, P. Rode, **W. Bergbauer**, M. Mandl, C. Kölper and M. Strassburg
Fabrication of hole pattern for position-controlled MOVPE grown GaN nanorods with highly precise nanoimprint technology
Proceedings SPIE, Advanced Lithography
- eingereicht C. Kölper, M. Sabathil, B. Witzigmann, F. Römer, **W. Bergbauer**, M. Strassburg
Optical Properties of Individual GaN Nanorods for Light Emitting Diodes: Influence of Geometry, Materials and Facets
Proceedings SPIE, Photonics West
- akzeptiert A. Waag, S. Fündling, J. Ledig, M. Erenburg, R. Neumann, M. Suleiman, X. Wang, J. Wei, S.F. Li, H.-H. Wehmann, **W. Bergbauer**, M. Strassburg, A. Trampert, H. Riechert
The Nanorod Approach: GaN NanoLEDs for Solid State Lighting
Physica status solidi C, pssc.201000989.R1
- akzeptiert S.F. Li, S. Fündling, X. Wang, M. Erenburg, M. Suleiman, J. Wei, **W. Bergbauer**, M. Strassburg, H.-H. Wehmann, A. Waag
Selective Area Growth of GaN Nanorods by MOVPE: Dependence on Growth Conditions
Physica status solidi C, pssc.201001003.R1
- akzeptiert C. Kölper, **W. Bergbauer**, P. Drechsel, M. Sabathil, M. Strassburg, H.-J. Lugauer, B. Witzigmann, S. Fündling, S. Li, H.-H. Wehmann and A. Waag
Towards nanorod LEDs - Numerical predictions and controlled growth
Physica status solidi C, pssc.201000922.R1
- akzeptiert S. F. Li, S. Fuendling, X. Wang, S. Merzsch, M. Suleiman, J. D. Wei, H.-H. Wehmann, A. Waag, **W. Bergbauer** and M. Strassburg
Polarity and its Influence on Growth Mechanism during MOVPE Growth of GaN Nanorods
Crystal Growth and Design, cg-2010-01537m.R2
- 03/2011 C. Kölper, **W. Bergbauer**, M. Strassburg, N. Linder
LEDs: Die Licht(r)evolution
Physik in unserer Zeit, ISSN 0031-9252
- 08/2010 **W. Bergbauer**, M. Strassburg, Ch. Kölper, N. Linder, C. Roder, J. Lähmann, A. Trampert, S. Fündling, SF Li, H.-H. Wehmann, A. Waag
GaN-nanoworld shaped to optimize optoelectronics
Lab talk, <http://nanotechweb.org/cws/article/lab/43638>

- 08/2010 **W. Bergbauer**, M. Strassburg, Ch. Kölper, N. Linder, C. Roder, J. Lähmann, A. Trampert, S. Fündling, S.F. Li, H.-H. Wehmann, A. Waag
N-face GaN nanorods: Continuous-flux MOVPE growth and morphological properties
Journal of Crystal Growth 315, 164-167
- 08/2010 **W. Bergbauer**, M. Strassburg, Ch. Kölper, N. Linder, C. Roder, J. Lähmann, A. Trampert, S. Fündling, S.F. Li, H.-H. Wehmann, A. Waag
Continuous-flux MOVPE growth of position-controlled N-face GaN nanorods and embedded InGaN quantum wells
Nanotechnology 21, 305201
- 05/2010 **W. Bergbauer**, M. Strassburg, Ch. Kölper, N. Linder, C. Roder, J. Lähmann, A. Trampert, S. Fündling, S.F. Li, H.-H. Wehmann, A. Waag
Continuous-flow MOVPE growth of position-controlled GaN nanorods
Präsentation bei der „International Conference of MOVPE“ in Lake Tahoe, USA
- 05/2009 A. Laubsch, M. Sabathil, **W. Bergbauer**, M. Strassburg, H. Lugauer, M. Peter, S. Lutgen, N. Linder, K. Streubel, J. Hader, J. V. Moloney, B. Pasenow, S. W. Koch
On the origin of IQE-’droop’ in InGaN LEDs
Physica status solidi C, Volume 6, Issue S2, Pages S913 - S916
- 04/2009 A. Laubsch, M. Sabathil, M. Strassburg, **W. Bergbauer**, H. Lugauer, M. Peter, S. Lutgen, N. Linder, B. Hahn, K. Streubel
Improving the high-current efficiency of LEDs
SPIE newsroom, <http://spie.org/x34705.xml?ArticleID=x34705>
- 03/2009 M. Peter, A. Laubsch, **W. Bergbauer**, T. Meyer, M. Sabathil, J. Baur, B. Hahn
New developments in green LEDs
Physica status solidi A, Volume 206, Issue 6, Pages 1125 - 1129
- 01/2009 A. Laubsch, **W. Bergbauer**, M. Sabathil, M. Strassburg, H. Lugauer, M. Peter, T. Meyer, G. Brüderl, J. Wagner, N. Linder, K. Streubel, B. Hahn
Luminescence Properties of Thick InGaN Quantum-Wells
Physica status solidi C, Volume 6, Issue S2, Pages S885 - S888
- 02/2008 **W. Bergbauer**, A. Laubsch, M. Peter, T. Meyer, S. Bader, G. Benstetter, R. Oberschmid, B. Hahn
Temperature and current dependent electroluminescence measurements on colour coded Multiple Quantum Well Light Emitting Diodes
Präsentation bei der „Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2008“ in Berlin

07/2006

W. Bergbauer, T. Lutz, W. Frammelsberger, G. Benstetter
*Kelvin Probe Force Microscopy - An appropriate tool for the electrical
characterisation of LED heterostructures*
Microelectronics and Reliability, Volume 46, Pages 1736-1740

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen, die zu einem Gelingen dieser Dissertation beigetragen haben, herzlich bedanken. Die große Vielzahl an Forschungskollegen und Freunden, die durch ihre Arbeit und Diskussionen wertvolle Beiträge geleistet haben, macht es unmöglich, jeden namentlich zu erwähnen. Mein ehrlicher Dank ist ihnen allen jedoch gewiss.

Ein ganz besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. Andreas Waag für die Übernahme dieser Industriepromotion. Seine ausgezeichnete Betreuung und die wertvollen Diskussionen und Ratschläge waren die Grundlage für ideale Rahmenbedingungen. Die stets offene Tür und die Gelegenheit, in seiner Braunschweiger Arbeitsgruppe aktiv an der Forschung teilzunehmen, ermöglichten mir eine perfekte Verbindung zum universitären Umfeld.

Herrn Prof. Dr. Meinhard Schilling danke ich für die Bereitschaft, diese Arbeit zu begutachten.

Herrn Prof. Dr. Marc Tornow möchte ich für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes danken.

Ein herzliches Dankeschön gilt insbesondere Dr. Martin Strassburg für die hervorragende Betreuung bei OSRAM OS. Seine beständige Unterstützung und Motivation - sowohl in fachlicher als auch in menschlicher Hinsicht - ermöglichten es mir, diese Arbeit so erfolgreich und stringent durchzuführen.

Dr. Hans-Jürgen Lugauer möchte ich für die Einführung in die Künste der Epitaxie und für die Unterstützung bei vielen Fragestellungen danken. Das kreative Arbeitsumfeld in der Abteilung Novel Technologies war und ist der ideale Nährboden für das Wachstum von Nanosäulen.

Dr. Ulrich Steegmüller danke ich für die Chance, dieses spannende Forschungsthema mit vielen Freiheiten in der Abteilung Advanced Concepts and Engineering bei Osram OS durchführen zu können. Des Weiteren danke ich Dr. Klaus Streubel dafür, dass er dieses Vorfeldthema damals in die Abteilung Conceptual Engineering mit aufgenommen hat.

Bei allen meinen Epitaktikerkollegen, denen kein Epitaxieexperiment zu extravagant ist, bedanke ich mich für die zahlreichen Diskussionen und „Fachsimeleien“.

Ein herzliches Dankeschön an Philipp Drechsel und Christopher Kölper für die gemeinsamen Experimente, die vielen Literaturstunden, Diskussionen und für die gegenseitige Motivation.

Den Chipentwicklern der Abteilung OS ACE, allen voran Patrick Rode, Dr. Lutz Höppel und Dr. Norwin von Malm, möchte ich für die Unterstützung bei der Entwicklung von NanoLED-Chips danken.

Dr. Heribert Zull danke ich für die Unterstützung beim Ätzen der kleinen NanoLEDs.

Vielen Dank an Dr. Ansgar Laubsch, Dr. Jens Ebbecke und Bastian Galler für die messtechnische Unterstützung bei den kleinsten Strukturen.

Für die theoretische Unterstützung und für Simulationen möchte ich meinen Dank an Dr. Matthias Sabathil, Dr. Alvaro Gomez-Iglesias und besonders Christopher Kölper richten.

Allen Mitarbeitern am IHT in Braunschweig möchte ich für die herzliche Aufnahme in ihrer Arbeitsgruppe danken. Für zahlreiche Diskussionen über mögliche Epitaxieexperimente möchte ich PD Dr. Heinrich-Hergo Wehmann, Dr. Shunfeng Li, Sönke Fündling und Xue Wang danken. Ein Dankeschön für das Messen der kleinen Säulen mit dem Nanonadelmessplatz möchte ich an Johannes Ledig richten. Für die Analytik und die Prozessentwicklung in Braunschweig danke ich Dr. Jiandong Wei, Richard Neumann, Milena Erenburg, Ünsal Soekmen, Stephan Merzsch und Mohammed Al-Suleiman.

Für die ausgezeichneten KL- und TEM-Messungen und die aufschlussreichen fachlichen Diskussionen danke ich Jonas Lähnemann, Dr. Claudia Roder und Dr. Achim Trampert vom PDI in Berlin.

Heike Fegerl, Daniela Schöttl und Stefan Hartauer gilt mein Dank für die tatkräftige Unterstützung in der Produktionslinie.

Nadja Wurm möchte ich für die äußerst hilfreiche Unterstützung bei allen Büro- und Antragsaktivitäten herzlich danken.

Ein Dankeschön auch an Dr. Norbert Stath für die hilfreiche Unterstützung und die wertvollen Ratschläge bei allen Veröffentlichungen und der Dissertation.

Dr. Philip Shields und Prof. Duncan Allsop danke ich für die Möglichkeit, an University of Bath bei der Prozessentwicklung mitzuarbeiten.

Dem BMBF und der EU danke ich für die Förderung der Projekte MONALISA und SMASH, in denen mit den beitragenden Partnern ein ausgezeichnetes Forschungsumfeld gegeben war. Selbstverständlich danke ich allen Mitarbeitern dieser beiden Projekte für den regen Ideen- und Informationsaustausch.

Meinen Korrekturlesern Martin Mandl, Mario Ehrnböck und meiner Frau Manuela danke ich für die viele Zeit, durch die sie zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben.

Meiner Familie, insbesondere meiner Frau Manuela und meiner Mutter möchte ich herzlich für die bedingungslose und unerschöpfliche Unterstützung während der gesamten Ausbildungszeit danken. Ihre Liebe gab mir Kraft in anstrengenden Stunden.

