

1 Einleitung

1.1 Motivation

Ende der fünfziger Jahre, Anfang der sechziger Jahre des letzten Jahrhunderts existierten die ersten Licht emittierenden Dioden (LEDs) in der Forschung. Diese wurden seitdem und bis heute kontinuierlich weiter entwickelt. Zunächst gab es allerdings nur langwellig (rot, gelb) emittierende Materialien und lange Zeit wurde nach einem Halbleiter gesucht, der kurzwelliges Licht (blau, ultraviolett) effizient erzeugen kann. Weit über zwanzig Jahre war dabei vor allem die p-Dotierung und die Materialqualität das Problem. Während in der Gruppe um Isamu Akasaki Ende der achtziger Jahre die ersten qualitativ hochwertigen Galliumnitridschichten (GaN) durch Einführung von speziellen Startschichten (Nukleation) hergestellt wurden, gelang es Anfang der neunziger Jahre der Gruppe um Shuji Nakamura p-dotiertes GaN zu produzieren [Ama86, Nak91a]. Damit konnten erste kommerzielle blaue LEDs realisiert werden, und der Siegeszug der LEDs wurde allgemein eingeläutet. Schon kurze Zeit später wurden blaue Laser und weiß emittierende LEDs mithilfe von Konversionsfarbstoffen möglich.

Die kleinen Abmessungen solcher Leuchtdioden, ihre Robustheit gegen äußere Einflüsse und vor allem die hohe Effizienz halfen ihnen viele Gebiete des täglichen Lebens zu erobern. So werden LEDs mittlerweile nicht mehr nur als Signalleuchten eingesetzt, sondern finden in Fernsehern, Handys und anderen Displays als Hintergrundbeleuchtung Verwendung. Die Wartungsarmut macht sie zudem zu idealen Beleuchtungsmitteln für Ampelanlagen oder Autorückleuchten. Selbst LED-Scheinwerfer wurden schon bis zur Serienreife gebracht. Auch GaN-basierte Laserdioden haben den Weg in unseren Alltag geschafft, befinden sie sich doch beispielsweise in jedem Blu-Ray-Spieler. In Zukunft werden blaue Laser eine erhöhte Geschwindigkeit industrieller Druckmaschinen oder neuartige medizinische Behandlungen ermöglichen [Bun10].

Neben der Herstellung von GaN-basierten blauen Lasern und sehr effizienten LEDs können gelbe und vor allem rote Laser und LEDs heutzutage sehr effizient mit ande-

1 Einleitung

ren Materialien (Phosphid-basiert) hergestellt werden. Allerdings gibt es bisher kommerziell keine grün emittierenden Laserdioden; und auch die grünen LEDs weisen deutlich reduzierte Effizienzen auf. Effiziente grüne LEDs und Laser jedoch, würden erst den Weg zur wirtschaftlichen Herstellung von Voll-LED-Bildschirmen (Fernseher) und Projektoren auf Basis von Halbleiterlasern ermöglichen, da zur vollständigen Darstellung realistischer Farben mindestens drei unterschiedliche Emittierender benötigt werden: Rot, Blau und Grün. Weiterhin könnten grüne Hochleistungsdioden bei der DNA-Sequenzierung, der industriellen Fertigungskontrolle oder der Unterwasserkommunikation eingesetzt werden [Nak10].

Diese „Grüne Lücke“ – oder englisch „green gap“, wie das Problem in Forschungskreisen genannt wird, ist dabei auf zwei wesentliche Ursachen zurück zu führen: Indiumgalliumnitrid (InGaN), das für die aktive Zone von GaN-basierten Bauelementen meist verwendet wird, bildet bei den aktuellen Prozessen und Prozessbedingungen bei der Herstellung relativ viele Kristalldefekte aus. Die dadurch resultierende geringere Qualität jedoch limitiert die Effizienz der Bauteile. Weiterhin existiert bisher keine Methode GaN in hoher Qualität als Volumenmaterial zu züchten, so dass – vergleichbar zur Siliziumtechnologie – Bauelemente homoepitaktisch auf großen Wafern produziert werden könnten. Deshalb muss auf Fremdmaterialien als Startsubstrat ausgewichen werden („Substratproblematik“) – einer weiteren Ursache für viele Defekte. Zusätzlich dazu kommt es zur Ausbildung (piezo)elektrischer Felder im Inneren der aktiven Zone der Bauelemente, welche schließlich ebenfalls deren Effizienz reduziert. Dieser Effekt ist im Vergleich zu anderen Materialien sehr groß und hängt von der Verspannung ab. Er wird damit noch größer, wenn die Wellenlänge der emittierenden Diode langwelliger (von UV zu blau und grün) eingestellt wird. Außerdem führen diese Felder zu weiteren Effekten wie beispielsweise einer Rotverschiebung der Emissionswellenlänge. Die Auswirkungen werden allgemein unter dem Begriff „quantum confined Stark effect (QCSE)“¹ zusammengefasst [Ber97].

Abhilfe schafft das Wachstum in sogenannte semi- oder nichtpolare Kristallrichtungen. Diese erlauben eine Herstellung von Strukturen mit reduziertem Feld und größerer Dicke der aktiven Zone. Beides ermöglicht effizientere und längerwellige Lichtemitter. Zudem vereinfachen dickere aktive Schichten den Produktionsprozess. Allerdings sind für solch ein Wachstum andere Ausgangssubstrate nötig, da Galliumnitrid nicht in ausreichender Größe und Menge als Volumenmaterial (engl. „bulk“) zur Verfügung steht. Die kommerziell erhältlichen GaN-Ausgangssubstrate für die Homoepitaxie werden aktuell aus heteroepitaktisch gewachsenen „dicken“ GaN-Schichten heraus gesägt. Die maxi-

¹auf deutsch in etwa: Stark-Effekt bei Quanteneinschluss

male Größe beträgt dabei einige Millimeter auf wenige Zentimeter ($\leq 2 \text{ cm}^2$) [Fuj09]. Auf den wenigen und kleinen Stückchen jedoch wurden vor allem in den letzten beiden Jahren herausragende Erfolge erzielt und erste grüne Laser publiziert [Eny09]. Für die industrielle Realisierung ist dies momentan kein gangbarer Weg, da neben der geringen Verfügbarkeit auch die immens hohen Kosten für „bulk“-Substrate einer Kommerzialisierung entgegen stehen. Bisherige alternative Substrate führen zu vielen Defekten im Material und erlauben deshalb kein erfolgreiches Wachstum von Bauelementen.

An diesem Punkt setzt die vorliegende Arbeit an. Es soll untersucht werden, wie die Qualität auf alternativen Substraten so weit verbessert werden kann, dass ein Wachstum von Bauelementen darauf möglich wird. Dazu wird zum Einen ein gängiger Ansatz verfolgt, indem a-orientiertes GaN auf r-orientiertem Saphir abgeschieden wird. Desweiteren wird eine neu entwickelte Methode vorgestellt, wie semipolares Galliumnitrid verschiedenster Orientierung auf strukturierten Saphirsubstraten epitaxiert werden kann. Beide Ansätze kombinieren den Vorteil des günstigen Substrates und der großflächigen sowie planaren Abscheidung mit dem Vorteil des reduzierten piezoelektrischen Feldes in den aktiven Zonen der späteren Bauelemente.

1.2 Gliederung

Für das genaue Verständnis der Problemstellung wird in Kapitel 2 zunächst auf die physikalischen Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride eingegangen. Insbesondere die Polarisation (Abschnitt 2.3.2) der aktiven Schichten (Abschnitt 2.4) ist dabei von Bedeutung. Daraus resultierend ergeben sich die Effekte des QCSE (Abschnitt 2.4.1) und das Problem des „green gap“ (Abschnitt 2.7). Zusammen mit der Substratproblematik (Abschnitt 2.6) bildet dies die Grundlage der Motivation dieser Arbeit. Desweiteren werden in diesem Kapitel die verschiedenen auftretenden Defekte bei heteroepitaktisch abgeschiedenem GaN vorgestellt (Abschnitt 2.5).

Anschließend folgt eine kurze Einführung in die verschiedenen Methoden des Wachstums von Gruppe-III-Nitriden (Abschnitt 3.2) mit einem Schwerpunkt auf die während dieser Arbeit verwendete metallorganische Gasphasenepitaxie (MOVPE) und die Hybridgasphasenepitaxie. Die momentan in der Entwicklung befindlichen Methoden für die Herstellung von GaN-Volumenkristallen werden in Abschnitt 3.2.3 beschrieben, da sie gewissermaßen in Konkurrenz zu dem hier vorgestellten Ansatz zur Epitaxie auf Fremdsubstraten stehen. Zudem werden in diesem Kapitel die verschiedenen bekannten Substrate aufgezeigt (Abschnitt 3.1).

1 Einleitung

Danach werden die eigentlichen Ergebnisse dieser Arbeit präsentiert und diskutiert. Das nichtpolare Wachstum von a-orientiertem GaN in Kapitel 4 beginnt mit dem Wachstum von einfachen Schichten mittels MOVPE und deren Optimierung (Abschnitt 4.1). Ein weiterer Abschnitt befasst sich mit dem Wachstum mittels Hydrid-Gasphasenepitaxie (HVPE), welche die Möglichkeit bietet, dicke Schichten als Quasi-substrate herzustellen (Abschnitt 4.2). Der letzte Abschnitt dieses Kapitels widmet sich der Überprüfung der Schichten auf deren Eignung für eine spätere Bauelementepitaxie. Dazu werden einfache Quantenfilmstrukturen darauf abgeschieden und untersucht. Die Ergebnisse führen zum Übergang zu semipolarem GaN (Abschnitt 4.4).

In Kapitel 5 wird eine neue Idee zur Realisierung semipolarer Schichten vorgestellt sowie deren Umsetzung für $(11\bar{2}2)$ -orientiertes GaN (Abschnitt 5.3) und $(10\bar{1}1)$ -orientiertes GaN (Abschnitt 5.4) präsentiert. Ortsaufgelöste Untersuchungen von Quantenfilmstrukturen (Abschnitt 5.3.5 bzw. 5.4.4) komplettieren abschließend das Bild. Zuletzt werden die gewonnenen Ergebnisse in Kapitel 6 zusammengefasst und ein kurzer Ausblick gegeben.