



**Phasenseparation von dünnen
InGaN-Schichten in der
metallorganischen Gasphasenepitaxie**

-

**Realisierung und Anwendung von
InGaN Quantenpunkten**

Christian Tessarek

**Phasenseparation von dünnen
InGaN-Schichten in der
metallorganischen Gasphasenepitaxie**

-

**Realisierung und Anwendung von
InGaN Quantenpunkten**

**Dissertation
zur Erlangung des akademischen Grades
Doktor der Naturwissenschaften
- Dr. rer. nat. -
am Fachbereich 1
der Universität Bremen**

**vorgelegt von
Dipl. Phys. Christian Tessarek**

Dissertation eingereicht am: 27.05.2011

Tag des Promotionskolloquiums: 06.07.2011

1. Gutachter: Prof. Detlef Hommel
2. Gutachter: Dr. Thomas Schmidt

18. Juli 2011

Abstract

InGaN quantum dots bare a great potential for many kinds of applications. They can improve the device performance of LEDs and laser diodes which are used e.g. for illumination and projection. With a single photon source, technologies as a quantum computer or a quantum cryptograph can be realized. Furthermore, due to a large band gap range InGaN can be utilized as an efficient light absorber for photovoltaic devices. Basically, all these aspects will be addressed in this work. Quantum dot based single color and multicolor LEDs will be presented. For that purpose the dot emission can be tuned over a large wavelength range of almost 100 nm from violett to green. The integration into laser structures will be discussed and progress towards electrically driven single quantum dots in a micro cavity for single photon emission will be shown. For successful operation of such different devices an appropriate density of quantum dots is needed which can be adjusted over a range of three orders of magnitude. Furthermore, respectable photovoltaic properties of quantum dot based LEDs were achieved.

Since the growth of InGaN quantum dots is not trivial a large part of this work is devoted to the understanding and realization of the quantum dots formation process. The growth is performed on an n-doped GaN layer in a metal organic vapor phase epitaxy reactor. Evidence has been found that spinodal and binodal decomposition are driving a separation process of a thin InGaN layer into two phases with different InN concentrations. The region with low InN content is forming the quantum dots on the surface of a GaN layer. The spinodal phase diagram has been calculated for the case of a strained InGaN layer on GaN showing a reduced miscibility gap. The accordance between theoretical and experimental results is shown.

For device application it is necessary to cap these structures with a p-doped GaN layer. The influence of a GaN capping on the phase separated InGaN structures is discussed. The GaN cap is optimized in terms of high quality of the GaN while being non-destructive for the InGaN quantum dots.

Inhaltsverzeichnis

Abstract	4
Abbildungsverzeichnis	9
Tabellenverzeichnis	11
Einleitung	13
1 Grundlagen	17
1.1 Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride	17
1.2 Thermodynamisches Modell zum Einbau von InN in InGaN	19
1.3 Verspannung und Wachstumsmoden in der Heteroepitaxie	22
1.4 Spinodale und binodale Entmischung	26
1.4.1 Das spinodale und binodale Phasendiagramm für InGaN	30
1.4.2 Spinodale und Binodale für verspanntes InGaN auf GaN	32
1.4.3 Anordnung der entmischten Phasen	35
1.5 Niederdimensionale Strukturen	37
1.6 “Quantum-Confined Stark Effect”	39
1.7 Mikrokavitäten	40
2 Methoden zur Herstellung und Charakterisierung von InGaN	43
2.1 Metallorganische Gasphasenepitaxie	43
2.2 Charakterisierung	46
2.2.1 Photolumineszenz	46
2.2.2 Bauelementeprozessierung und elektrische Charakterisierung	49
2.2.3 Röntgendiffraktometrie	52
2.2.4 Rasterkraftmikroskopie	53
2.2.5 Rasterelektronenmikroskopie	55
2.2.6 Transmissionselektronenmikroskopie	56
3 Wachstum von InGaN Quantenpunkten	61
3.1 Stand der Forschung	61
3.2 Abscheidung und Evolution von dünnen InGaN-Schichten auf GaN	63
3.3 Bestimmung des phasenseparierenden Bereichs	74
3.4 Variation der Quantenpunktdichte	77
3.5 Dynamik der Phasenseparation	80
3.6 “Zwei-Stufen Wachstumsmodus”	81
3.7 Modell zur Bildung von InGaN Quantenpunktstrukturen	84

4	Auswirkung von Deckschichten auf die InGaN Strukturen	87
4.1	Wachstum einer GaN-Deckschicht bei 700°C	87
4.2	Einfluss der Temperatur beim Wachstum der ersten Deckschicht	90
4.3	Auflösung der InN-reichen Inseln und Bildung eines Quantenfilms	91
4.4	Variation der Dicke der GaN-Deckschicht	95
4.5	Einfluss von InGaN-Deckschichten auf die Emissionswellenlänge	97
4.6	Optimierung der zweiten GaN-Deckschicht	98
4.6.1	Einfluss der Atmosphäre	98
4.6.2	Wachstum einer Hochtemperatur-Deckschicht	101
5	Elektrisch betriebene Lichtemitter auf Basis von InGaN Quantenpunkten	105
5.1	InGaN Quantenpunkt LEDs	105
5.1.1	Variation der Emissionswellenlänge	106
5.1.2	InGaN Quantenpunkte in Vielfachschichten	110
5.1.3	Mehrfarbige LED	112
5.2	InGaN Quantenpunkte in Laserstrukturen	118
5.3	Fortschritt auf dem Gebiet der Einzelphotonenemission	123
5.3.1	Nachweis des elektrischen Betriebs eines Quantenpunkts	123
5.3.2	InGaN Quantenpunkte in einer monolithischen Kavität	125
5.3.3	Elektrischer Betrieb von Quantenpunkten in einer Kavität	127
5.4	Ausblick: Ansätze zur Steigerung der InGaN Quantenpunktemission	129
5.4.1	Einsatz einer n-AlGaN-Loch-Sperrschicht	130
5.4.2	Einfluss des Gradienten der Dotierkonzentration	133
5.4.3	InGaN Quantenpunkte auf InN-Unterlagen	135
5.4.4	Erhöhung des Ladungsträgerereinschluss durch AlN-Barrieren	137
5.4.5	InGaN auf unpolarem GaN	141
6	Lichtabsorbierende InGaN Strukturen - Photovoltaik	149
6.1	InGaN Quantenpunkt-basierte Solarzelle	154
7	Zusammenfassung	159
	Abkürzungsverzeichnis	163
	Literaturverzeichnis	165
	Probenverzeichnis	185
	Liste der Veröffentlichungen	187

Abbildungsverzeichnis

1.1	Hexagonale Kristallstruktur; Kristallebenen	18
1.2	Bandlückendiagramm der Gruppe-III-Nitride.	19
1.3	InN-Gehalt in InGaN in Abhängigkeit vom Gasphasenverhältnis	22
1.4	Wachstumsmoden	23
1.5	Simulierte Spannungsfelder für InGaN-Strukturen	25
1.6	Graphische Herleitung von Spinodale/Binodale aus freier Enthalpie . .	28
1.7	Spinodales und binodales Phasendiagramm für InGaN	30
1.8	Verspannungsabhängige Spinodale und Binodale für InGaN auf GaN .	34
1.9	Anordnung der entmischten Phasen	36
1.10	Zustandsdichte in unterschiedlichen Dimensionen	37
1.11	Valenz- und Leitungsband für einen $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{N}$ Quantenfilm	40
1.12	Berechnetes Stopppband eines DBR-Spiegels; Kavitätsmode	41
2.1	Gassystem und Reaktor einer MOVPE	43
2.2	TMI-Konzentration im Trägergas	45
2.3	Zeitabhängiges Reflektivitätssignal beim Wachstum einer GaN-Schicht .	46
2.4	Prinzipieller Aufbau des Photolumineszenzmessstands	47
2.5	Optische Anregung mit unterschiedlichen Wellenlängen.	47
2.6	Typische PL-Spektren einer GaN-Probe	48
2.7	Bandverlauf im Metall-Halbleiter-Übergang	50
2.8	Ewaldkonstruktion	53
2.9	Lennard-Jones-Potential	54
2.10	Verschiebung der Resonanzfrequenz	54
2.11	Schematischer Aufbau eines AFM	55
2.12	Schematischer Aufbau eines REM	56
2.13	Aufbau und Messmodus des Transmissionselektronenmikroskops	57
2.14	Konzentrations-Probendicke-Matrix für InGaN	58
2.15	Ionenschäden verursacht durch TEM-Messungen	59
2.16	Vermeidung von Ionenschäden durch STEM-Messungen	59
3.1	REM von phasenseparierten InGaN-Schichten	65
3.2	STM von InGaN-Inseln	66
3.3	HRSTEM-Messungen der Probe C	67
3.4	TEM von unsym. kraterförmigen und sym. runden InGaN Inseln	68
3.5	REM von InN-Inseln	68
3.6	Röntgendiffraktometriespektren	69
3.7	XRD mit Synchrotronstrahlen unter streifenden Einfall	70
3.8	Oberflächenzustände	71

3.9	PL-Spektren der Proben A-D	72
3.10	PL-Spektren von unbedeckten phasenseparierten InGaN-Strukturen . .	73
3.11	PL-Spektren der Proben E-I	75
3.12	μ -PL-Spektren der Proben G und H	76
3.13	AFM von einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht abgeschieden bei 650°C	78
3.14	XRD von einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht abgeschieden bei 650°C	78
3.15	PL von einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht abgeschieden bei 650°C	78
3.16	RT-PL: unterschiedliche Wachstumstemperatur der InGaN-Schicht . . .	79
3.17	PL bei RT von Proben mit GaN-Deckschicht bei 600°C und 650°C . .	81
3.18	Probenaufbau beim Zwei-Stufen Wachstumsmodus	82
3.19	PL-Vergleich von ein- und dreifach gestapelten InGaN-Lagen	82
3.20	μ -PL einer dreifach gestapelten Probe im Zwei-Stufen Wachstumsmodus	83
3.21	Reziproke Gitterkarte einer dreifach gestapelten Probe	84
3.22	Modell zur Bildung von InGaN Quantenpunktstrukturen	85
4.1	AFM der InGaN-Proben mit einer 7 nm- und 20 nm-GaN-Deckschicht .	88
4.2	Röntgen-/PL-Spektren von Proben unterschiedlicher Deckschichtdicke .	89
4.3	RT-PL der überwachsenen phasenseparierten InGaN-Schichten	90
4.4	HRSTEM Z-Kontrast Bild; farbkodierte InN-Konzentrations-Karten . .	92
4.5	InN-Konzentration und das reale Temperaturprofil	93
4.6	μ -PL von Proben mit unterschiedlicher Deckschicht-Temperatur	94
4.7	Macro-PL-Spektren	95
4.8	PL von Proben mit unterschiedlichen GaN-Deckschichtdicken	96
4.9	PL-Spektren von Proben mit GaN- oder InGaN-Deckschicht	97
4.10	Probenaufbau	99
4.11	REM der Oberfläche von Proben mit unterschiedlicher Atmosphäre . .	100
4.12	PL-Spektren von Proben mit unterschiedlicher Atmosphäre	100
4.13	PL-Spektren von Proben mit und ohne Hochtemperatur-Rampe	102
4.14	AFM von GaN-Oberflächen	103
4.15	Einfluss eines Ausheizschrittes; Strom-Spannungskurven von LEDs . . .	104
5.1	Probenaufbau einer LED	105
5.2	Variation der Emissionswellenlänge	107
5.3	Anregung der LED-Proben mit einem 406nm-Laser	108
5.4	Grenzen der Emissionswellenlänge	109
5.5	PL und Lichtstärkemessungen von gestapelten Quantenpunktlagen . . .	111
5.6	PL von zwei mehrfarbigen InGaN Quantenpunktstapeln	114
5.7	Stromstärkeabhängige Elektrolumineszenzspektren mehrfarbiger LEDs .	116
5.8	Kurzwellige EL und DAP-Rekombination	117
5.9	Laserstruktur	120
5.10	EL-Spektren von zwei Laserdioden und einer LED	121
5.11	Aufbau der Probe mit nanoporöser Metallmaske; μ -EL	124
5.12	Mikrokavität mit Quantenpunkten; Reflektionsspektrum; μ -PL-Messung	126
5.13	Schema der prozessierten Kavität; Reflektivität, PL und EL	128
5.14	Aufbau einer Mikrokavität mit Intrakavitätskontakten	129
5.15	Bandschema von Proben mit und ohne Loch-Sperrschicht	132

5.16	Verlauf der Magnesiumkonzentration in p-dotierten GaN-Schichten . . .	134
5.17	Wellenfunktionen im Quantentrog ohne und mit InN-Unterlage	136
5.18	PL-Spektren von Proben mit und ohne InN-Unterlage	137
5.19	AlN-Barrieren um InGaN Quantentröge	138
5.20	Photolumineszenz von InGaN-Proben mit AlN-Barrieren	140
5.21	Piezoelektrische Polarisierung in Abhängigkeit des Winkels	141
5.22	Spinodale von InGaN auf Ebenen senkrecht zur c -Richtung	143
5.23	REM von InGaN auf a -Ebenen GaN	144
5.24	XRD von a -Ebenen InGaN/GaN	145
5.25	PL-Untersuchungen von a -Ebenen InGaN/GaN	146
6.1	Prinzip einer Solarzelle	149
6.2	Spektralteilnutzung von Si und InGaN; Tandemzelle; Tunnelübergang .	151
6.3	Stoßionisation	153
6.4	Anordnung der bestrahlten Bauelemente	154
6.5	Stromstärke-Spannungs-Kennlinien unter Halogenlampenbeleuchtung .	155
6.6	Schwarzkörperstrahlung einer Halogenlampe	157

Tabellenverzeichnis

1.1	Die Gitterparameter der Gruppe-III-Nitride	17
1.2	Bandlückenenergien von AlN, GaN und InN	19
1.3	Gleichgewichtskonstanten	20
1.4	Elastische Konstanten von GaN und InN	33
2.1	Materialspezifische Konstanten der Metallorganika	44
3.1	Wachstumsparameter der InGaN-Schichten der Proben A, B, C und D	64
3.2	InN-Gehalt der InGaN-Schichten	74
3.3	Dichte der Quantenpunkte	80
5.1	Emissionswellenlänge und Lichtausgangsleistung von drei LEDs	107
5.2	Emissionswellenlänge, Halbwertsbreite und integrierte Intensität	110
5.3	Positive und negative Effekte auf die jeweiligen Schichten	115
5.4	Ausgangsleistungswerte für LEDs mit Si-Dotiergradient	133
6.1	Photovoltaische Eigenschaften einiger ausgewählter LEDs	156

Einleitung

Mitte des neunzehnten Jahrhunderts wurden die ersten Glühlampen für Beleuchtungszwecke entwickelt. Diese Technik, basierend auf einem leitfähigen Faden in einem evakuierten Glaskolben, ist noch bis heute in vielen Einrichtungen für die Beleuchtung zuständig. Der Glühfaden besteht heutzutage aus Wolfram aufgrund der verglichen mit anderen Materialien hohen Schmelzpunkttemperatur von über $3400\text{ }^{\circ}\text{C}$. Ein mit elektrischen Strom durchflossener und dadurch erhitzter Faden einer Glühlampe emittiert thermische Strahlung, welche dem Planckschen Strahlungsgesetz gehorcht. Aufgrund der Betriebstemperatur liegt ein Großteil der Strahlung im langwelligen infraroten Spektralbereich. Bezogen auf die Empfindlichkeitskurve eines menschlichen Auges wird nur ein relativ geringer Teil von etwa 5 % der elektrischen Energie in sichtbares Licht umgewandelt, die Lichtausbeute beträgt 15 lm/W für Standardglühlampen und bis zu 35 lm/W für Halogenglühlampen. Ein thermischer Strahler würde selbst dann nur Wirkungsgrade von etwa 15 % erreichen, wenn es Materialien mit einer Schmelzpunkttemperatur höher als $5500\text{ }^{\circ}\text{C}$ geben würde.

Eine Erhöhung des Wirkungsgrads kann erreicht werden, wenn Strahlung nicht thermisch sondern aufgrund von elektronischen Übergängen erzeugt wird. In Leuchtröhren können Lichtausbeuten von 60 lm/W erreicht werden. Mit Licht emittierenden Dioden, kurz LEDs, wurden Lichtausbeuten von fast 250 lm/W erreicht, was sehr dicht an die theoretisch erreichbare Grenze von etwa 300 lm/W heranreicht [NIS⁺10]. Diese LEDs sind basierend auf dem Halbleitermaterial InGaN in Zusammenspiel mit einer Lichtkonverterschicht bestehend aus Phosphor.

Der Markt für Halbleiter-LEDs ist in den letzten Jahren kontinuierlich gestiegen und die Nachfrage wird weiterhin steigen. Es ist davon auszugehen, dass in naher Zukunft die komplette Lichterzeugung von LED-Systemen erzeugt wird. Dabei ist jedoch noch nicht abzusehen, ob Halbleiter-LEDs oder organische LEDs, sogenannte OLEDs das Rennen machen werden. Vorteile von OLED-Systemen sind die günstige Herstellung flexibler Systeme, z.B. der Druck von OLED-Bildschirmen auf dehnbaren Folien. Vorteile von Halbleiter-LEDs sind z.B. die hohe Leuchtdichte, die erzeugt werden kann. Ein großer Vorteil beider Systeme ist die Lebensdauer¹, die für Halbleiter-LEDs bis zu 100.000 Stunden beträgt und bei OLEDs stark von der emittierten Wellenlänge abhängt. Damit werden konventionelle Leuchtmittel wie die Glüh- oder Energiesparlampe weit in den Schatten gestellt.

Für die Erzeugung von weiß emittierenden LEDs gibt es unterschiedliche Ansätze. Zum einen werden blaue LEDs benutzt, um eine Phosphorschicht zur gelben Lumineszenz anzuregen. Die Farbmischung aus einem scharfbandigen blau und breitbandigen gelb gibt weiß. Eine weitere Möglichkeit ist der Einsatz von drei LEDs, die nebeneinander platziert, blau, grün und rot, in der Summe also weiß emittieren. Die kompakteste

¹Die Lebensdauer beschreibt dabei die Abnahme der Anfangsleistung um 50 %

Lösung ist ein einzelnes Bauelement, bestehend aus einer aktiven Region, welche unterschiedliche Wellenlängen und in der Summe weiß emittieren kann [SLT⁺08, TLS⁺10]. Diese aktive Region kann z.B. aus mehreren Quantenfilmen oder Quantenpunkteschichten bestehen.

Die hohe Leuchtdichte in Halbleiterstrukturen kann zur Realisierung einer Laserdiode (LD) genutzt werden. Diese LDs ergeben sehr kompakte Bauelemente, die ihre Anwendung z.B. in optischen Auslesegeräten, in der Laserprojektion, in der Vermessungstechnik oder in wissenschaftlichen Analysemethoden finden. Optische Auslesegeräte wie z.B. ein Blu-Ray-Abspielgerät benutzt eine bei 405 nm emittierende LD. Für die Laserprojektion sind blaue, grüne und rote LDs notwendig, um in der Farbmischung weiß zu ergeben. Rote Laserdioden auf Basis von AlGaAs werden seit Anfang der 90er Jahre des letzten Jahrhunderts in DVD-Spielern eingesetzt. Die Entwicklung von blauen Laserdioden im sichtbaren 450 nm-Bereich ist in den letzten Jahren rasant angestiegen; derartige Bauelemente sind inzwischen schon kommerziell erhältlich. Die ersten grünen Laserdioden oberhalb von 500 nm wurden erst 2009 entwickelt [QAB⁺09]. Die Entwicklung schreitet seitdem voran und wissenschaftliche Veröffentlichungen behandeln grüne LDs bis zu 531 nm mitunter auf unterschiedlichen Substratorientierungen [EYK⁺09, ALM⁺09, LYH⁺10]. Alle hier genannten LDs haben gemeinsam, dass sie basierend auf dem Materialsystem der Gruppe-III-Nitride sind und die optisch aktive Region aus InGaN Quantenfilmen besteht.

Was macht InGaN interessant für technologische Anwendungen wie LDs und welche weiteren Anwendungen sind realisierbar bzw. schon realisiert? Mit InGaN ist es möglich, abhängig vom InN-Gehalt in InGaN, einen weiten energetischen Bereich abzudecken, welcher vom ultravioletten Spektralbereich im Fall von GaN bis ins Infrarote für das InN reicht. Es kann also u.a. das komplette visuelle Spektrum abgedeckt werden und damit auch weiß durch die Mischung der Grundfarben blau, grün und rot erzeugt werden. Dies ist eine einzigartige Eigenschaft dieses Materials und wird von keinem weiteren ternären Halbleitermaterial erreicht. InGaN ist ein direkter Halbleiter, dies bedeutet, dass die strahlende Rekombination von Elektronen und Löchern im Impulsraum direkt und ohne Zuhilfenahme von Phononen abläuft. Es wird die Energie der angeregten Ladungsträger somit effizient in Photonenenergie umgewandelt ohne dass dabei Gitterschwingungen, sprich Wärme, erzeugt wird. Diese Eigenschaft ist essentiell, um effiziente Licht emittierende Bauelemente zu erzeugen. Auch können prinzipiell hocheffiziente Licht absorbierende Strukturen für die Photovoltaik realisiert werden. Verglichen mit einer auf dem indirekten Halbleiter Silizium basierten Solarzelle sind theoretisch weitaus höhere Wirkungsgrade möglich.

Wie der Titel dieser Schrift verrät, liegt der Schwerpunkt dieser Arbeit in der Herstellung und Anwendung von InGaN Quantenpunkten. Verglichen mit Quantenfilmen oder dicken Schichten können Quantenpunkte die Eigenschaften von optoelektronischen Strukturen verändern und zu neuartigen Technologien führen. Hier an der Universität Bremen wurde bereits am II-VI-Materialsystem die Erniedrigung der Schwellstromdichte durch den Einsatz von Quantenpunkten demonstriert [Pas02]. Mit InGaN Quantenpunkten als aktives Material wird bei LDs u.a. eine Reduktion der Schwellstromdichte, ein höherer Materialgewinn und ein temperaturabhängiger Schwellstrom erwartet [AS82, LUS⁺97]. Die als künstliche Atome wirkenden Quantenpunkte können

sich in zukünftigen Technologien wie dem Quantencomputer oder in der abhörsicheren Quantenkryptographie wiederfinden. Eingebaut in einer elektrisch betreibbaren Mikrosäulenkavität könnten InGaN Quantenpunkte als Einzelphotonenemitter einen großen Schritt in die Verwirklichung dieser Technologien machen.

Neben ZnO und (dotierten) Diamant ist GaN einer der wenigen Halbleitermaterialien, dessen Curie-Temperatur oberhalb der Raumtemperatur liegt [DOM⁺00]. Unterhalb der Curie-Temperatur ist ein Material ferromagnetisch, oberhalb paramagnetisch. Für GaN bedeutet dies, dass der Spin des Elektrons für quantenspintronische Anwendungen selbst bei Raumtemperatur genutzt werden kann, d.h. es müssen keine aufwendigen Kühlprozesse eingesetzt werden. Der Spin eines Elektrons eingesperrt in einem InGaN Quantenpunkt wäre ein vielversprechender Kandidat für die Realisierung eines Quantencomputers oder Quantenkryptographs.

Diese Arbeit beschäftigt sich mit dem Wachstum von InGaN Quantenpunkten in der metallorganischen Gasphasenepitaxie. Der Quantenpunktbildungsprozess basiert auf der spinodalen und binodalen Entmischung von InGaN. Die so hergestellten Quantenpunkte können überwachsen und in einen p-n-Übergang integriert werden, so dass elektronische Bauelemente realisiert werden können.

Kapitel 1 dieser Arbeit beschäftigt sich mit einigen Grundlagen zum besseren Verständnis des experimentellen Teils. Es werden die wesentlichen Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride aufgelistet und ein thermodynamisches Modell zum Einbau von Indium, Gallium und Stickstoff aus der Gasphase in den Festkörper InGaN vorgestellt und explizite Beispiele durchgerechnet. Nach der Diskussion der unterschiedlichen Wachstumsmoden in der Heteroepitaxie wird ausführlich auf die spinodale und binodale Entmischung eingegangen, die einen zentralen Punkt in dieser Arbeit einnimmt. Es werden spinodale und binodale Kurven für InGaN für unterschiedliche Verspannungsgrade berechnet, die InGaN auf GaN annehmen kann. Weiterhin wird gezeigt, welche Anordnung die phasenseparierten Gebiete unter gewissen Bedingungen bilden können. Das Kapitel schließt mit den Eigenschaften von niederdimensionalen Strukturen, dem “Quantum-Confined Stark Effect” und dem Prinzip der Mikrokavitäten ab.

Das 2. Kapitel stellt die Methoden zur Herstellung und Charakterisierung von InGaN vor. Mit der metallorganischen Gasphasenepitaxie wurde das InGaN gewachsen. Zur Charakterisierung diente die Photo- und Elektrolumineszenz, die Röntgendiffraktometrie sowie die Raster-Kraft-, Raster-Elektronen und Transmissionselektronenmikroskopie.

Das 3. Kapitel beginnt mit der Abscheidung und Evolution von dünnen InGaN-Schichten auf GaN und zeigt, dass nach dem Wachstum zwei Phasen auf der Oberfläche vorhanden sind und die für spinodale und binodale Entmischung charakteristischen meanderartigen Strukturen auftreten. Ein phasenseparierter Bereich abhängig von der InN-Konzentration in InGaN wird festgestellt und es wird gezeigt, über welchen Parameter die Quantenpunktdichte eingestellt werden kann. Mit der bis dahin erhaltenen Erkenntnis wird der Erfolg des Zwei-Stufen-Wachstumsmodus zur Bildung von Quantenpunkten in Stapelproben erklärt. Dieser Modus wurde von Tomohiro Yamaguchi entwickelt und ist das Ausgangsmodell, auf dessen Basis die Quantenpunktbildung aus spinodaler Entmischung entwickelt wurde. Abschließend wird basierend auf die voran-

gegangenen experimentellen Ergebnisse ein Modell zur Bildung von InGaN Quantenpunktstrukturen vorgestellt.

Kapitel 4 befasst sich mit den Auswirkungen von Deckschichten auf die phasenseparierten InGaN-Strukturen. Hierbei werden unterschiedliche Wachstumsparameter wie Temperatur, Atmosphäre und Zeit untersucht. Es wird gezeigt werden, unter welchen Bedingungen die Quantenpunkte erhalten bleiben und inwiefern wieder optimale Wachstumsbedingungen für GaN erreicht werden können.

Das 5. Kapitel zeigt die Anwendbarkeit von InGaN Quantenpunkten in Licht emittierenden Strukturen. Es wird gezeigt, wie die Wellenlänge von elektrisch betriebenen LEDs eingestellt und inwiefern die Intensität über mehrere Quantenpunktschichten gesteigert werden kann. Aus diesen Erkenntnissen lassen sich mehrfarbige LEDs herstellen, die eine Vorstufe zu einer weiß emittierenden phosphorfreien LED sind. Es wird gezeigt, dass InGaN Quantenpunkte in Laserstrukturen und Mikrokavitäten eingebettet werden können. Mehrere Ansätze werden gegeben, inwiefern sich eine Struktur bezüglich der Intensität optimieren lässt. Es werden z.B. experimentelle Ergebnisse bezüglich dem Einsatz einer AlGaIn-Loch-Sperrschicht gezeigt. Zur Reduktion des "Quantum-Confined Stark Effect" werden erste Versuche von Quantenpunkten auf unpolaren a -Ebenen GaN vorgestellt.

Das 6. Kapitel widmet sich der Eigenschaft von InGaN, Licht zu absorbieren. Es wird eine einfache LED-Struktur, basierend auf einer InGaN Quantenpunkt-Struktur, mit Hinblick auf eine photovoltaische Anwendungen untersucht und erste vielversprechende Ergebnisse präsentiert.

Die Arbeit endet mit einer Zusammenfassung (Kapitel 7) der wesentlichen Ergebnisse.

1 Grundlagen

1.1 Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride

Bei den Gruppe-III-Nitriden handelt es sich um kristalline Verbindungen bestehend aus Elementen der III. Hauptgruppe des Periodensystems und Stickstoff. Im Blickpunkt der Forschung steht dabei das AlInGaN. Auf das TiN, für das eine verschwindende Bandlücke postuliert wird [dSDdA⁺05], sowie das BN mit einer Bandlücke von etwa 5,8 eV [EYSB⁺01] soll in dieser Arbeit nicht näher eingegangen werden. Üblicherweise liegt bei AlInGaN eine hexagonale Kristallstruktur vor, welche in Abb. 1.1 (links) dargestellt ist. Jedes Gitteratom ist in einer tetraedrischen Anordnung mit den vier Nachbaratomen verbunden, wobei auf ein Stickstoffatom ein Gruppe-III-Atom folgt und umgekehrt. In der c -Kristallrichtung [0001] findet man abwechselnd eine Ebene mit Stickstoffatomen und eine Ebene mit Gruppe-III-Atomen vor, welche zusammengefasst als Bilage bezeichnet werden. Die Stapelfolge lautet ABABAB, d.h. die Gitteratome liegen alle zwei Bilagen übereinander. Der Abstand von einer Lage A zur nächsten Lage A definiert die c -Gitterkonstante, während die a -Gitterkonstante in der Ebene senkrecht zur c -Richtung den Abstand zwischen zwei Gitteratomen gleichen Typs beschreibt. In Tab. 1.1 sind die Gitterparameter angegeben. AlN hat die kleinste und InN die größte Gitterkonstante.

Für ternäre Materialien wird zur Bestimmung der Gitterkonstanten das Vegard'sche Gesetz [Veg21] herangezogen. Es gilt ein linearer Zusammenhang zwischen den Gitterkonstanten a_A des Materials A (z.B. InN) und a_B des Materials B (z.B. GaN) und der Komposition x in A_xB_{1-x} (z.B. InGaN) mit der Gitterkonstanten a_{AB} :

$$a_{AB} = a_B + (a_A - a_B) \cdot x \quad (1.1)$$

Für quaternäre Materialien kann das Vegard'sche Gesetz entsprechend erweitert werden. Neben der Realisierung der hexagonalen Kristallstruktur werden auch Anstrengungen unternommen, GaN-Substrate in der kubischen Zinkblende-Struktur herzustellen [FNS⁺08], wobei die Verbesserung der Materialqualität nach wie vor im Vordergrund der aktuellen Forschung steht. Ein Vorteil ist, dass es aufgrund der kubischen Anordnung der Gitteratome keine internen piezoelektrischen Felder gibt, wodurch der

Material	c -Gitterkonstante [Å]	a -Gitterkonstante [Å]
AlN	3,112	4,982
GaN	3,189	5,185
InN	3,545	5,703

Tabelle 1.1: Die Gitterparameter der Gruppe-III-Nitride, aus [VM03].

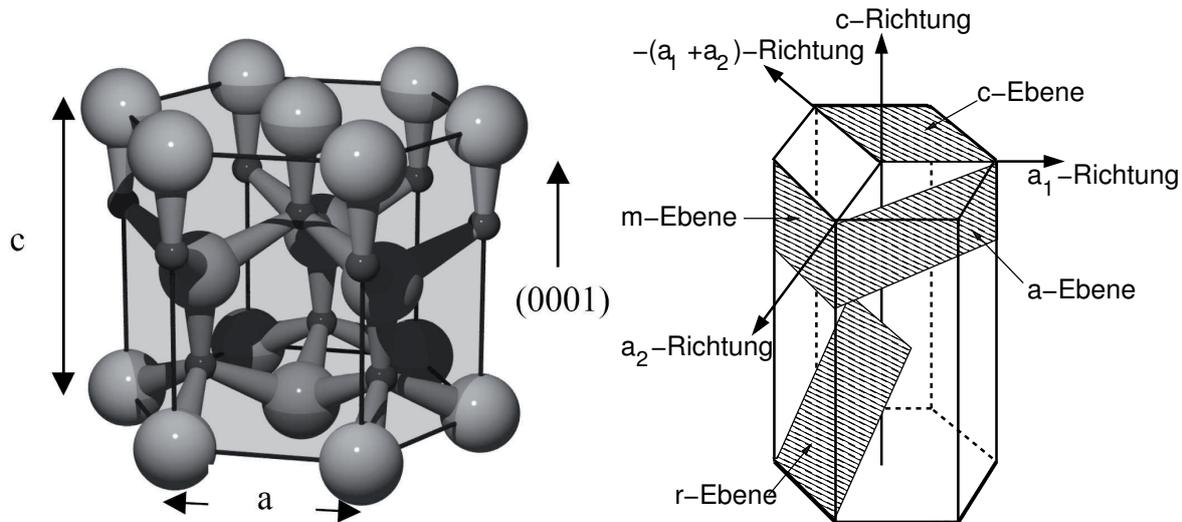


Abbildung 1.1: Links abgebildet ist die hexagonale Kristallstruktur der Gruppe-III-Nitride (aus [Kuh02]). Im rechten Teilbild sind die unterschiedlichen Kristallebenen dargestellt.

“Quantum-Confined Stark Effect” (kurz: QCSE) vermieden werden kann (mehr zum Thema siehe Abschn. 1.6). Der QCSE im GaN wird mitunter für die “grüne Lücke” (“Green Gap” [HBK07]) verantwortlich gemacht, welche den Effizienzeinbruch von Licht emittierenden Bauelementen im grünen Spektralbereich beschreibt.

Eine Besonderheit des AlGaInN-Materialsystems ist der weite Energiebereich vom Infraroten bis zum Ultravioletten, der durch die entsprechenden Bandlücken abgedeckt wird. In Abb. 1.2 ist ein Bandlückendiagramm dargestellt. Für InN war die Bandlücke erst im Jahre 2002 von etwa 1,9 eV [ONM72, IIT98] auf Werte unterhalb von 1 eV [DKS⁺02] und schließlich auf 0,7 eV korrigiert worden [WWY⁺02]. Dies macht speziell das InGaN zu einem besonderem Material. Prinzipiell kann alleine durch den InN-Gehalt in InGaN¹ die Bandlücke des Materials auf jede Wellenlänge im sichtbaren Spektralbereich eingestellt werden. Die Bandlückenenergie E_{AB} des ternären Materials A_xB_{1-x} hängt dabei nichtlinear von der Zusammensetzung der Materialien ab. Deren Verlauf lässt sich durch die folgende empirische Formel beschreiben:

$$E_{AB} = E_B + (E_A - E_B) \cdot x - x \cdot (1 - x) \cdot b_{A,B} \quad (1.2)$$

Hierbei beschreibt $b_{A,B}$ den Biegeparameter, E_A und E_B sind die jeweiligen Bandlückenenergien der binären Materialien. In Tabelle 1.2 sind die Bandlückenenergien der binären Nitride und die Biegeparameter der ternären Nitride wiedergegeben.

¹An dieser Stelle soll darauf hingewiesen werden, dass in dieser Arbeit nicht die übliche Schreibweise “In-Gehalt” sondern “InN-Gehalt” verwendet wird. Dadurch soll klargemacht werden, dass es sich stets um die wurzite Kristallstruktur und nicht um Indium-Metall handelt. Das x in $In_xGa_{1-x}N$ entspricht somit dem InN-Gehalt/der InN-Konzentration im InGaN.

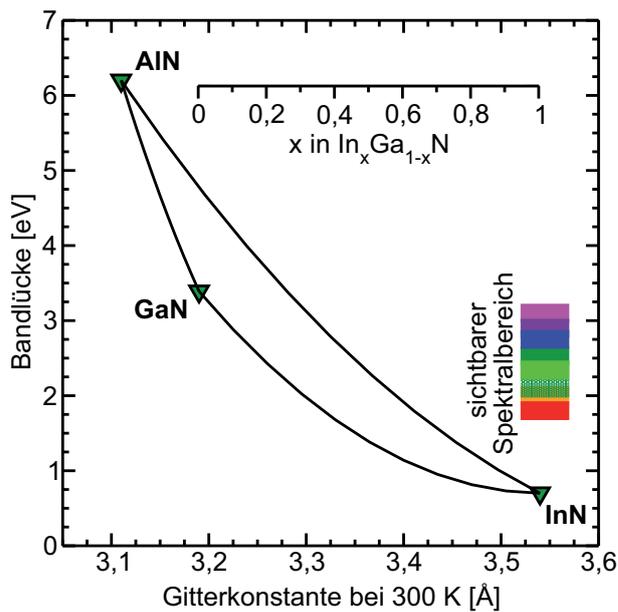


Abbildung 1.2: Bandlückendiagramm der Gruppe-III-Nitride.

binäres Material	Bandlücke [eV]	ternäres Material	Biegeparameter [eV]
AlN	6,25	AlGaN	0,7
GaN	3,510	AlInN	2,5
InN	0,78	InGaN	1,4

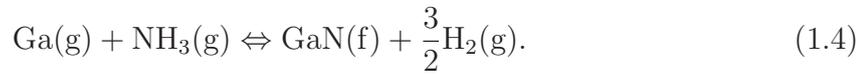
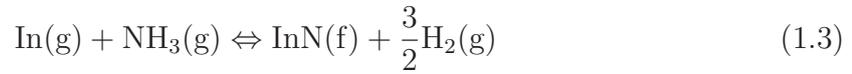
Tabelle 1.2: Bandlückenenergien von AlN, GaN und InN und die Biegeparameter für die jeweiligen ternären Materialien, aus [VM03].

1.2 Thermodynamisches Modell zum Einbau von InN in InGaN

Das Wachstum von qualitativ hochwertigen GaN-Schichten findet im Rahmen der metallorganischen Gasphasenepitaxie (englisch: metalorganic vapour phase epitaxy, MOVPE) üblicherweise bei Temperaturen über 1000 °C statt. Im Gegensatz dazu wird das Wachstum von InN häufig unterhalb von 600 °C durchgeführt. Dieser große Temperaturunterschied lässt sich auf die unterschiedlichen Bindungsenergien zwischen Indium und Stickstoff und Gallium und Stickstoff zurückführen [CSC⁺04, KPB⁺00]. Bei erhöhten Temperaturen brechen die In-N-Bindungen eher auf als die Ga-N-Bindungen. Das Wachstum von InGaN findet bei mittleren Temperaturen statt, wobei generell der Trend vorliegt, dass mit ansteigender Temperatur weniger InN in InGaN eingebaut wird. Im Folgenden soll ein thermodynamisches Modell basierend auf den Arbeiten von Stringfellow [Str99] und Koukitu [KKS00] erläutert werden. Aus dem Modell lässt sich prinzipiell der Einbau von Indium aus der Gasphase in die feste InGaN-Phase bestimmen. Dieses Modell soll zuerst alleinstehend betrachtet werden ohne die Berücksichtigung von anderen Effekten, die das Wachstum von InGaN wesentlich beeinflussen wie z.B. Verspannung (siehe Abschn. 1.3) und der daraus resultierende "Composition

Pulling Effect”² (siehe auch Abschn. 1.3) oder spinodale und binodale Entmischung (Abschn. 1.4).

Die chemischen Prozesse in der MOVPE sind vielfältig. In [KHTO04] findet man ein Schema, in dem dargestellt wird, welche chemischen Reaktionen in der Gasphase ablaufen, bis sich aus den Metallorganika und Ammoniak (NH₃) schließlich der GaN-Kristall abscheidet. Die Vielzahl der chemischen Prozesse führt dazu, dass eine komplette theoretische Beschreibung nicht realistisch erscheint. Es wird deshalb vereinfachend eine resultierende reversible chemische Reaktion angenommen, in der das Metall Indium oder Gallium mit Ammoniak zu InN oder GaN mit Wasserstoff reagiert:



Hierbei steht (g) für den gasförmigen und (f) für den festen Aggregatzustand. Die gasförmige Metallphase entsteht durch die thermische Dissoziation des Ausgangsstoffes Trimethylindium (TMI) oder -gallium (TMG). Laut [Str99] ist das TMG unter N₂-Atmosphäre oberhalb von 540 °C vollständig dissoziiert. Unter H₂-Atmosphäre beträgt die Dissoziationstemperatur sogar nur 480 °C. Für TMI ist nur die Dissoziation in H₂-Atmosphäre angegeben, vollständige Dissoziation liegt oberhalb von 350 °C vor. Für die N₂-Atmosphäre kann erwartet werden, dass vollständige Dissoziation noch unterhalb von 400 °C stattfindet.

Für die reversiblen Reaktionen in den Reaktionsgleichungen (1.3) und (1.4) kann das Massenwirkungsgesetz definiert werden:

$$K_{\text{In}} = \frac{a_{\text{InN}} \cdot P_{\text{H}_2}^{3/2}}{P_{\text{In}} \cdot P_{\text{NH}_3}} \quad (1.5)$$

$$K_{\text{Ga}} = \frac{a_{\text{GaN}} \cdot P_{\text{H}_2}^{3/2}}{P_{\text{Ga}} \cdot P_{\text{NH}_3}}. \quad (1.6)$$

Hierbei ist $K_{\text{In,Ga}}$ die Gleichgewichtskonstante, $a_{\text{InN,GaN}}$ die Aktivität und P die jeweiligen Partialdrücke der gasförmigen Komponenten. Die Gleichgewichtskonstanten sind in Tab. 1.3 angegeben.

Gleichgewichtskonstante	$\log_{10} K_{\text{In,Ga}}$ (Temperatur T in K)
K_{In}	$-13,1 + 1,13 \cdot 10^4/T + 2,29 \log_{10}(T)$
K_{Ga}	$-12,2 + 1,78 \cdot 10^4/T + 1,79 \log_{10}(T)$
K_{Al}	$-14,2 + 3,17 \cdot 10^4/T + 2,33 \log_{10}(T)$

Tabelle 1.3: Gleichgewichtskonstanten für die Gleichungen (1.5) und (1.6), aus [KTS97]. Der Vollständigkeit halber, auch wenn hier nicht gebraucht, ist die Konstante einer entsprechenden AlN-Reaktion angegeben.

²Für den “Composition Pulling Effect” gibt es in der deutschen Sprache keine geeignete Übersetzung, weshalb hier der Englische Begriff genannt wird.

Die Aktivitäten berechnen sich zu:

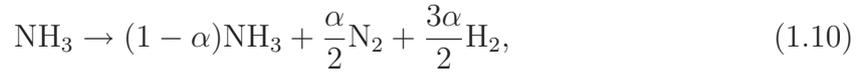
$$a_{\text{InN}} = x \cdot e^{\frac{(1-x)^2 \cdot \Omega}{RT}} \quad (1.7)$$

$$a_{\text{GaN}} = (1-x) \cdot e^{\frac{x^2 \cdot \Omega}{RT}} \quad (1.8)$$

Hierbei beschreibt x die Komposition des $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, R ist die allgemeine Gaskonstante und T die Temperatur. Der Interaktionsparameter Ω wird als x -abhängiger Parameter angenommen [SA99] und lautet:

$$\Omega(x) = (-2,11 \cdot x + 7,41) \cdot 4186,8 \frac{\text{J}}{\text{mol}} \quad (1.9)$$

Eine nicht vernachlässigbare Größe ist die Dissoziation von Ammoniak, die das Gleichgewicht von Gleichung (1.3) und (1.4) stark beeinflussen kann. Es gilt:



wobei α den Grad der Dissoziation von Ammoniak angibt. Dieser ist nicht nur stark abhängig von der Temperatur, sondern auch von der Reaktorform und den verwendeten Materialien im Reaktor, die als Katalysator dienen können. Deshalb können sich Literaturangaben stark unterscheiden (vergleiche z.B. [KKS00, LS78, Ban72]). Die Dissoziation von Ammoniak in Abhängigkeit von der Temperatur in der MOVPE-Anlage der Universität Bremen ließe sich prinzipiell mit einem Ammoniaksensor in der Reaktorabgasleitung feststellen, der allerdings nicht zur Verfügung steht. Als α -Parameter wird daher eine bezogen auf [KKS00] leicht modifizierte lineare Konstante gewählt, die den praktischen Gegebenheiten der Anlage besser entsprechen. Sie lautet: $\alpha = 0,0015 \text{ K}^{-1} \cdot T - 1,16$ (Temperatur T in Einheiten von Kelvin).

Das Einbauverhältnis von Indium zu Gallium aus der Gasphase in den Kristall lässt sich aus der Differenz des Ausgangsdrucks P_{In}^0 und dem Gleichgewichtsdruck P_{In} geteilt durch die Gesamtdifferenz der Gruppe-III-Ausgangsdrücke und Gleichgewichtsdrücke errechnen:

$$x = \frac{P_{\text{In}}^0 - P_{\text{In}}}{P_{\text{In}}^0 - P_{\text{In}} + P_{\text{Ga}}^0 - P_{\text{Ga}}} \quad (1.11)$$

Das Gasphasenverhältnis lässt sich einfach aus den Ausgangsdrücken berechnen:

$$\frac{\text{In}}{\text{In+Ga}} = \frac{P_{\text{In}}^0}{P_{\text{In}}^0 + P_{\text{Ga}}^0} \quad (1.12)$$

In Fig. 1.3 zeigt der Graph die Kristallzusammensetzung x in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ in Abhängigkeit vom Gasphasenverhältnis für Temperaturen zwischen 600 °C und 750 °C. Bei 600 °C entspricht x dem Gasphasenverhältnis der Ausgangsmaterialien von $\text{In}/(\text{In}+\text{Ga})$. Bei Temperaturen zwischen 650 °C und 700 °C nimmt bei niedrigen Gasphasenverhältnissen die Komposition x stärker ab als bei höheren Gasphasenverhältnissen. Durch ein Gasphasenverhältnis von 0,82³ sollte nach dieser Theorie selbst bei 700 °C noch fast

³Der Wert von 0,82 wird hier genannt, da viele Proben in dieser Arbeit mit diesem Gasphasenverhältnis hergestellt wurden.

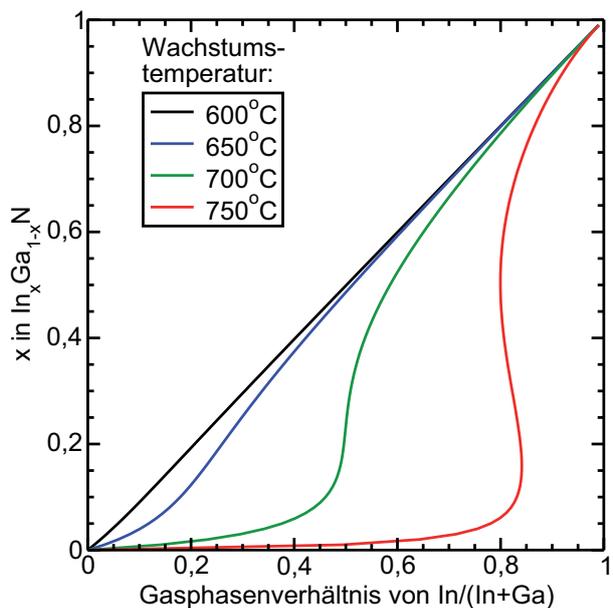


Abbildung 1.3: Der InN-Gehalt x in der festen $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Phase ist dargestellt in Abhängigkeit von dem Gasphasenverhältnis $\text{In}/(\text{In}+\text{Ga})$. Im Temperaturbereich unterhalb von 700°C würde ein Gasphasenverhältnis von $\text{In}/(\text{In}+\text{Ga})=0,82$ etwa zu einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht führen. Diese Erkenntnis ist wichtig, da im weiteren Verlauf dieser Arbeit Proben diskutiert werden, in denen das InGa₃N mit einem derart hohem Gasphasenverhältnis bei Temperaturen unterhalb von 700°C gewachsen wurde.

82 % InN in die InGa₃N-Schicht eingebaut werden. Bei 750°C kann ein derart hoher InN-Gehalt nicht gehalten werden, wodurch es zu einer starken Reduktion des InN-Gehalts in der InGa₃N-Schicht kommt. Mit Hilfe dieses thermodynamischen Modells kann prinzipiell davon ausgegangen werden, dass unterhalb von 700°C ein $\text{In}/(\text{In}+\text{Ga})$ -Gasphasenverhältnis $> 0,7$ zu einem gleichen Wert für den InN-Gehalt x führt. Weiterhin lässt der Graph die Schlussfolgerung zu, dass eine InN-reiche Phase oberhalb von 750°C nicht stabil wäre.

Im Folgenden sollen weitere wichtige Prozesse besprochen werden, die das Wachstum von InGa₃N beeinflussen.

1.3 Verspannung und Wachstumsmoden in der Heteroepitaxie

Die Gitterkonstanten von GaN und InN unterscheiden sich stark (siehe Abb. 1.2 und Tab. 1.1). Dies führt zu einer relativ großen maximalen Gitterfehlانpassung von $(a_{\text{InN}} - a_{\text{GaN}})/a_{\text{GaN}} = 0,112$. Eine derart hohe Gitterfehlانpassung führt zu einer hochgradig verspannten InN- oder InGa₃N-Schicht auf dem GaN-Substrat. Dies kann sich bei polaren Materialien ungünstig auswirken: je höher die Verspannung, umso mehr werden die Ladungsschwerpunkte getrennt. Dies führt zu einem ansteigenden piezoelektrischen Feld, wodurch sich der QCSE (siehe Abschn. 1.6) verstärkt. Zum Anderen können sich durch eine hohe Gitterfehlانpassung leicht Versetzungen bilden, wodurch die Verspannung in der Schicht abgebaut wird. Die Versetzungen bilden Defektzentren, die als nichtstrahlende Rekombinationskanäle die Effizienz von Lichtemittern negativ beeinflussen können [Che00].

Die Verspannung ist ein wesentlicher Parameter mit weitreichenden Folgen für die Materialeigenschaften. Es werden dabei zwei Arten von Verspannung betrachtet. Die interne Verspannung wird verursacht, wenn z.B. ein Indiumatom ein Galliumatom im

GaN-Gitter substituiert. Die größere Gitterkonstante von InN verursacht lokal eine Auslenkung der Gitteratome von ihrer Ruheposition. Die interne Verspannung führt dazu, dass das InGaN nicht komplett mischbar ist. Es kann zur Phasenseparation aufgrund von spinodaler und binodaler Entmischung führen (siehe ausführliche Diskussion in Abschn. 1.4.2).

Die externe Verspannung dagegen wird von einem Substrat auf eine Schicht mit unterschiedlicher Gitterkonstante ausgeübt. Dabei unterscheidet man zwischen tensiler und kompressiver Verspannung:

- tensile Verspannung: Schichtgitterkonstante $<$ Substratgitterkonstante
- kompressive Verspannung: Schichtgitterkonstante $>$ Substratgitterkonstante

Das Wachstum einer kompressiv verspannten InGaN-Schicht kann u.U. zu einem verringerten In-Einbau aufgrund des “Composition Pulling Effect” führen (siehe übernächsten Unterabschnitt). Weiterhin kann es zu einem dreidimensionalen Wachstum anstelle eines Schichtwachstums kommen (siehe nächster Unterabschnitt). Eine tensil verspannte Schicht dagegen würde zur Rissbildung neigen [EKH⁺00, EHKH01]. Auch die optischen Eigenschaften werden beeinflusst: eine Kompression würde zu einer Bandlückenerhöhung führen, während eine Tension eine Bandlückenverringering zur Folge hat [Str10].

Wachstumsmoden bei kompressiv verspannten Schichten

Beim Wachstum einer Schicht mit größerer Gitterkonstante a_{Schicht} als die Substratgitterkonstante a_{Substrat} können unterschiedliche Wachstumsmoden auftreten. Diese sind abhängig von der Größe der Gitterfehlpassung. Im Wesentlichen wird zwischen drei Wachstumsmoden unterschieden (siehe auch Abb. 1.4):

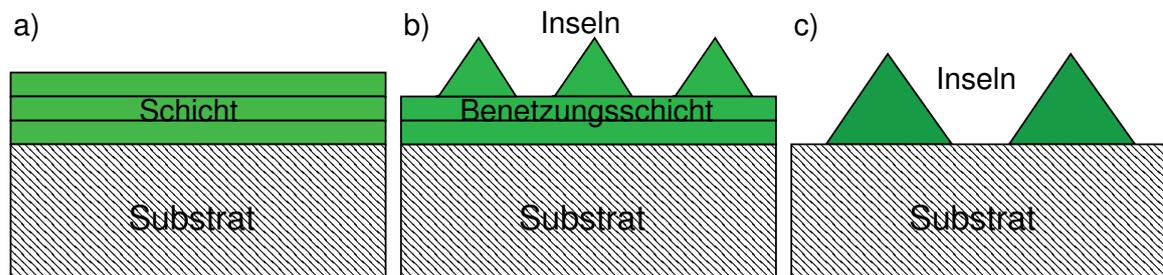


Abbildung 1.4: Wiedergegeben ist ein Schema der drei Wachstumsmoden. a) zeigt den Franck-van-der-Merve Modus mit dem Schicht-für-Schicht-Wachstum, wobei $a_{\text{Schicht}}/a_{\text{Substrat}} \approx 1$ gilt. Der Stranski-Krastanov Modus in b) ist gültig für $1 < a_{\text{Schicht}}/a_{\text{Substrat}} \lesssim 1,1$. Nach Überschreiten einer kritischen Schichtdicke kommt es zur Bildung von Inseln. In c) ist der Volmer-Weber Modus dargestellt. Wenn $a_{\text{Schicht}}/a_{\text{Substrat}} \gtrsim 1,1$ kommt es sofort zur Bildung von Inseln. Die Inseln in b) und c) sind beispielhaft als Pyramiden dargestellt.

1. **Franck-van-der-Merve Modus:** $a_{\text{Schicht}}/a_{\text{Substrat}} \approx 1$

Aufgrund des geringen Gitterkonstantenunterschieds kommt es zum zweidimensionalen Schicht-für-Schicht Wachstum. Dieser Modus tritt z.B. beim Wachstum von InGaN Quantenfilmen auf, wenn der InN-Gehalt relativ gering ist.

2. **Stranski-Krastanov Modus:** $1 < a_{\text{Schicht}}/a_{\text{Substrat}} \lesssim 1,1$

Der mittlere Gitterkonstantenunterschied führt zu Beginn zu einem Frank-van-der-Merve-artigen Schicht-für-Schicht Wachstum. Mit jeder weiteren Schicht baut sich zusätzliche Verspannungsenergie auf. Ab einer bestimmten kritischen Schichtdicke, die abhängig von der Gitterfehlpassung ist kommt es zum Übergang von zweidimensionalen zum dreidimensionalen Wachstum. Es bilden sich Inseln auf der Oberfläche der verspannten "Benetzungsschicht", wodurch keine zusätzliche Verspannungsenergie aufgebaut wird. Im InGaAs [LKR⁺93] und im AlGaIn [WDF⁺98] Materialsystem werden mit dem Stranski-Krastanov Modus [SK39] erfolgreich lichtemittierende Quantenpunktstrukturen hergestellt.

3. **Volmer-Weber Modus:** $a_{\text{Schicht}}/a_{\text{Substrat}} \gtrsim 1,1$

In diesem Modus ist die Gitterfehlpassung sehr groß. Es kommt zu keinem zweidimensionalen Wachstum, es bilden sich dreidimensionale Inseln auf der Oberfläche des Substrats. Dieser Modus tritt z.B. beim Wachstum von InN auf GaN auf [MPPK09].

Verspannungsanalyse

Eine komplett geschlossene und homogene Schicht, wie sie z.B. in Abb. 1.4 a) dargestellt ist, hat einen Verspannungsgrad von 100%, d.h. die Schicht hat die laterale Gitterkonstante des Substrates angenommen. Die Verspannung kann z.B. über Versetzungen abgebaut werden. Aber auch freistehende Bereiche, wie sie z.B. in Abb. 1.4 b) und c) dargestellt sind, können durch Relaxation ihren Grad der Verspannung reduzieren. Die resultierende Verspannung σ_i in einer Schicht oder in einem freistehenden Bereich kann über das Hooksche Gesetz bestimmt werden:

$$\sigma_i = \sum_j C_{ij}\epsilon_j \text{ mit } i, j \in \{1, \dots, 6\} \text{ und } C_{ij} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (1.13)$$

Hierbei ist ϵ_j die Dehnung bzw. Stauchung. Der Tensor C_{ij} mit den elastischen Konstanten ist aufgrund der Kristallsymmetrie vereinfacht wiedergegeben [Nye69]. Die Einträge mit den Indizes $i, j = 1, 2, 3$ entsprechen der Spannung im Sinne von Stauchung oder Dehnung und $i, j = 4, 5, 6$ der Scherspannung.

Mit dem Programm *FlexPDE 4*, basierend auf dem Prinzip der Finite-Element-Methode, wurden die Verspannungsfelder in diversen Strukturen berechnet. Einige Beispiele sind in Abb. 1.5 dargestellt. Zum Einen wird der Fall betrachtet, für welchen sich zwei koexistierende Schichten mit unterschiedlichen InN-Gehalt nebeneinander in einer Lage

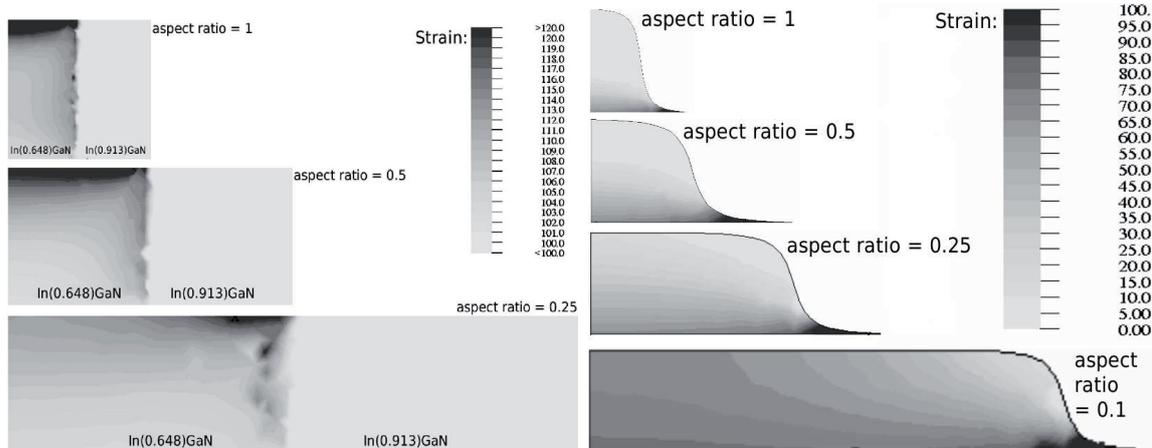


Abbildung 1.5: Simulierte Verspannungsfelder für InGaN-Strukturen: links dargestellt für drei unterschiedliche Aspectverhältnisse mit zwei nebeneinander koexistierenden Phasen, jeweils mit einem InN-Gehalt von 64,8 % und 91,3 %. Rechts dargestellt ist eine freistehende Insel für vier unterschiedliche Aspectverhältnisse. Die Verspannungsfelder sind mit Hilfe des Programms *FlexPDE 4* berechnet worden. Aus der dreidimensionalen Berechnung ist nur ein Querschnitt von der Mitte des zylinderförmig gewählten $\text{In}_{0,648}\text{Ga}_{0,352}\text{N}$ -Bereichs dargestellt. Aufgrund der Rotationssymmetrie des Problems kann man sich die dritte Dimension durch Rotation des Bildes um die linke Bildkante vorstellen. Die unbegrenzte laterale Ausdehnung der Schicht lässt sich durch Spiegelung an den Seitenkanten des Bildes erhalten. Die Programmdatei ist von Dr. Stephan Figge geschrieben und für die genannten Fälle modifiziert worden.

befinden. Der andere Fall betrachtet freistehende Inseln. In beiden Fällen wird dabei der Einfluss des Aspectverhältnisses untersucht, welcher der Quotient aus Höhe und Breite ist.

In Abb. 1.5 (links) ist ein Beispiel einer geschlossenen InGaN-Schicht mit inhomogener InN-Verteilung dargestellt wie es z.B. nach einer Phasenseparation (siehe Abschn. 1.4) der Fall wäre. Der InN-Gehalt ist in den jeweiligen Teilbereichen 64,8 % und 91,3 %. Diese Werte sind nicht beliebig gewählt, sondern entsprechen den binodalen Grenzen einer voll verspannten Schicht bei 600 °C (siehe Abb. 1.8). Der $\text{In}_{0,648}\text{Ga}_{0,352}\text{N}$ -Bereich ist zylinderförmig. Wegen der Symmetrie ist nur ein Querschnitt durch die rechte Hälfte des Zylinders dargestellt. Der restliche Bereich der geschlossenen Schicht besteht aus $\text{In}_{0,913}\text{Ga}_{0,087}\text{N}$. In lateraler Richtung kann die Schicht durch das jeweilige Spiegelbild periodisch erweitert werden. Nicht dargestellt ist das GaN-Substrat, auf dem sich die InGaN-Schicht befindet und welches die Verspannung ausübt.

Es ist zu erkennen, dass der $\text{In}_{0,913}\text{Ga}_{0,087}\text{N}$ -Bereich unabhängig vom Aspectverhältnis eine sehr homogene Verspannungsverteilung hat. Dieser Teilbereich ist zu 100 % verspannt, d.h. er hat die Gitterkonstante vom GaN angenommen. Anders verhält es sich bei dem $\text{In}_{0,648}\text{Ga}_{0,352}\text{N}$ -Bereich. Von der Basis bis zur Oberfläche gibt es einen starken Verspannungsgradienten. Bei einem Aspectverhältnis von 1 und bei 0,5 werden an der Oberfläche Verspannungsgrade von über 120 % erreicht, d.h. die Gitterkonstante ist dort sogar geringer als die GaN-Gitterkonstante. Dies ändert sich, wenn das Aspectverhältnis abnimmt, d.h. die Bereiche breiter und flacher werden: der Gradient und

damit der mittlere Verspannungsgrad nehmen mit sinkenden Aspektverhältnis ab. In Abb. 1.5 (rechts) ist der Fall freistehender $\text{In}_{0,648}\text{Ga}_{0,352}\text{N}$ -Inseln auf einem GaN-Substrat dargestellt. Die Inseln sind rotationssymmetrisch. Aus programmtechnischen Gründen ist das Inselprofil in den Eckbereichen nicht rechtwinklig, sondern leicht abgerundet. In den Inseln ist ein Verspannungsgradient zu erkennen, der Grad der Verspannung nimmt von der Basis bis zur Oberfläche ab. Die Insel mit einem Aspektverhältnis von 1 ist im mittleren Bereich fast vollständig relaxiert. Nimmt das Aspektverhältnis ab, so steigt der Grad der Verspannung.

“Composition Pulling Effekt”

Die Verspannung in einer Schicht kann zu einem Phänomen führen, welches in der Fachwelt u.a. als “Composition Pulling”, “Lattice Latching” [Str10] oder “Lattice Pulling” [WSF⁺06] bezeichnet wird. Die Verspannungsenergie, die in einer InGaN-Schicht entsteht, wenn sie verspannt auf einem GaN-Substrat aufwächst, ist umso höher, je höher die InN-Konzentration in der InGaN-Schicht ist. Um die Verspannungsenergie zu reduzieren, wird das Indium aus der “Kristall-Zusammensetzung gezogen”. Dies gilt nur, wenn die Arbeit, die benötigt wird, um das Indiumatom aus dem Kristallverband zu entfernen geringer als Differenz der Verspannungsenergie mit und ohne Indiumatom ist. Das Indiumatom, welches sich nach der Ausscheidung auf der Oberfläche befindet, kann wieder zurück in die Gasphase desorbieren oder beim Folgewachstum in die Schicht eingebaut werden. Dieser Effekt kann eine Ursache für Indium-Segregation sein [PHR⁺04, MFSI92], welche zur Folge hat, dass der obere Abschluss einer InGaN-Schicht nicht scharf zur GaN-Schicht ist, sondern sich ein fließender Übergang bezüglich der InN-Konzentration ausbildet.

Der Effekt des “Composition Pulling” wurde erstmals am InGaP-Materialsystem entdeckt [Str72], sowie im InGaAs- [RTGM⁺05], im AlGaIn- [LCL⁺06] und im InGaIn-Materialsystem [PCP⁺01, KSY⁺98] beobachtet.

1.4 Spinodale und binodale Entmischung

Spinodale und binodale Entmischung ist ein Phasenseparationsprozess von zwei oder mehr gemischten Materialien. Treibende Kraft ist hierbei die Minimierung der gesamten freien Enthalpie G eines Systems, welche über

$$G = H - TS \quad (1.14)$$

bestimmt werden kann, wobei H die Enthalpie, T die Temperatur und S die Entropie ist. Für niedrige Temperaturen dominiert der Enthalpie-Term. Aufgrund von Mikroverspannung in Festkörpern (oder z.B. auch der Oberflächenspannung in Fluiden) ist die Enthalpie im mittleren Konzentrationsbereich einer Mischung am Höchsten und eine Trennung der Materialien ist favorisiert. Für höhere Temperaturen dominiert der Temperatur-Entropie-Term. Es wird somit eine Unordnung bevorzugt wodurch eine Durchmischung von Materialien möglich ist. Eine theoretische Beschreibung dieses Prozesses wurde erstmals von John W. Cahn und John E. Hilliard [CH58] ausgeführt. Die

spinodale Entmischung zwischen zwei oder mehreren Komponenten kann in vielen Materialsystemen und unterschiedlichsten Stoffen auftreten wie z.B. in Polymeren [Bin83] oder Metallen [MA96], aber auch in Halbleitern, wie z.B. im InGaN-Materialsystem, was hier im Folgenden noch ausführlich diskutiert werden soll.

Spinodale und binodale Entmischung ist eine spezielle Art der Phasenseparation, da nach dem Separationsprozess durchmischte Bereiche mit geänderten Konzentrationen möglich sind. Sie beschreibt den Übergang zwischen einer vollständigen Entmischung und einer kompletten Mischbarkeit von zwei Materialien. In einem Temperatur-Konzentrations-Phasendiagramm bezeichnet die Spinodale den Übergang zwischen instabilen und metastabilen Bereich, die Binodale grenzt den metastabilen vom stabilen Bereich ab.

Im Folgenden soll zuerst betrachtet werden, unter welchen Bedingungen es in einem zwei-Komponenten-System zur homogenen Durchmischung, zur vollständigen Phasenseparation und zur spinodalen und binodalen Entmischung kommen kann. Der Anteil der ersten Komponente A soll x , die der zweiten Komponente B soll $1 - x$ betragen. Trägt man die freie Enthalpie gegen die Konzentration x im Materialsystem A_xB_{1-x} auf, so können im Wesentlichen drei Fälle auftreten:

1. bei relativ geringen Temperaturen dominiert der Enthalpie-Term in Gleichung (1.14) und die freie Enthalpie hat eine negative Krümmung (siehe Abb. 1.6 a)), d.h. es gilt $\frac{\partial^2 G}{\partial x^2} < 0$. Eine Fluktuation von x um Δx senkt im Mittel die freie Enthalpie herab. Jede Mischung von A und B ist energetisch ungünstig und damit instabil, wodurch es zur Phasenseparation kommt, bis die Konstituenten jeweils in der reinen Form vorhanden sind. Jedoch muss berücksichtigt werden, dass bei niedrigen Temperaturen die Kinetik eingeschränkt ist und dadurch ein Phasenseparationsprozess "einfrieren" kann, d.h. er läuft nicht oder nicht vollständig ab.
2. bei relativ hohen Temperaturen dominiert der Temperatur-Entropie-Term in Gleichung (1.14) und der Verlauf der freien Enthalpie ist durch eine positive Krümmung gekennzeichnet (siehe Abb. 1.6 b)), es gilt $\frac{\partial^2 G}{\partial x^2} > 0$. Unter der Voraussetzung, dass die Gesamtkonzentration des betrachteten Systems konstant bleibt, führt jede Fluktuation von x um Δx im Mittel zu einer Erhöhung der freien Enthalpie des Systems. Da das System bestrebt ist, möglichst auf ein energetisch niedriges Niveau zu gelangen, sind die Fluktuation energetisch ungünstig. Es kommt unabhängig von x zu einer homogenen Durchmischung der Komponenten A und B.
3. für mittlere Temperaturen konkurrieren die beiden Terme in Gleichung (1.14) und die Funktion der freien Enthalpie hat sowohl eine positive als auch eine negative Krümmung (siehe Abb. 1.6 c)), es gilt somit entweder $\frac{\partial^2 G}{\partial x^2} > 0$ oder $\frac{\partial^2 G}{\partial x^2} < 0$ in den jeweiligen Bereichen. Die Funktion hat zwei Minima bei $\frac{\partial G}{\partial x} = 0 \wedge \frac{\partial^2 G}{\partial x^2} < 0$ und zwei Wendepunkte bei $\frac{\partial^2 G}{\partial x^2} = 0$. Zwischen den Wendepunkten führt eine Fluktuation von x um Δx wie in Punkt 1 zu einer Erniedrigung der gesamten freien Enthalpie. Mischungen von A und B mit x zwischen den Wendepunkten sind damit instabil und es kommt zur Phasenseparation. Außerhalb des Bereichs,

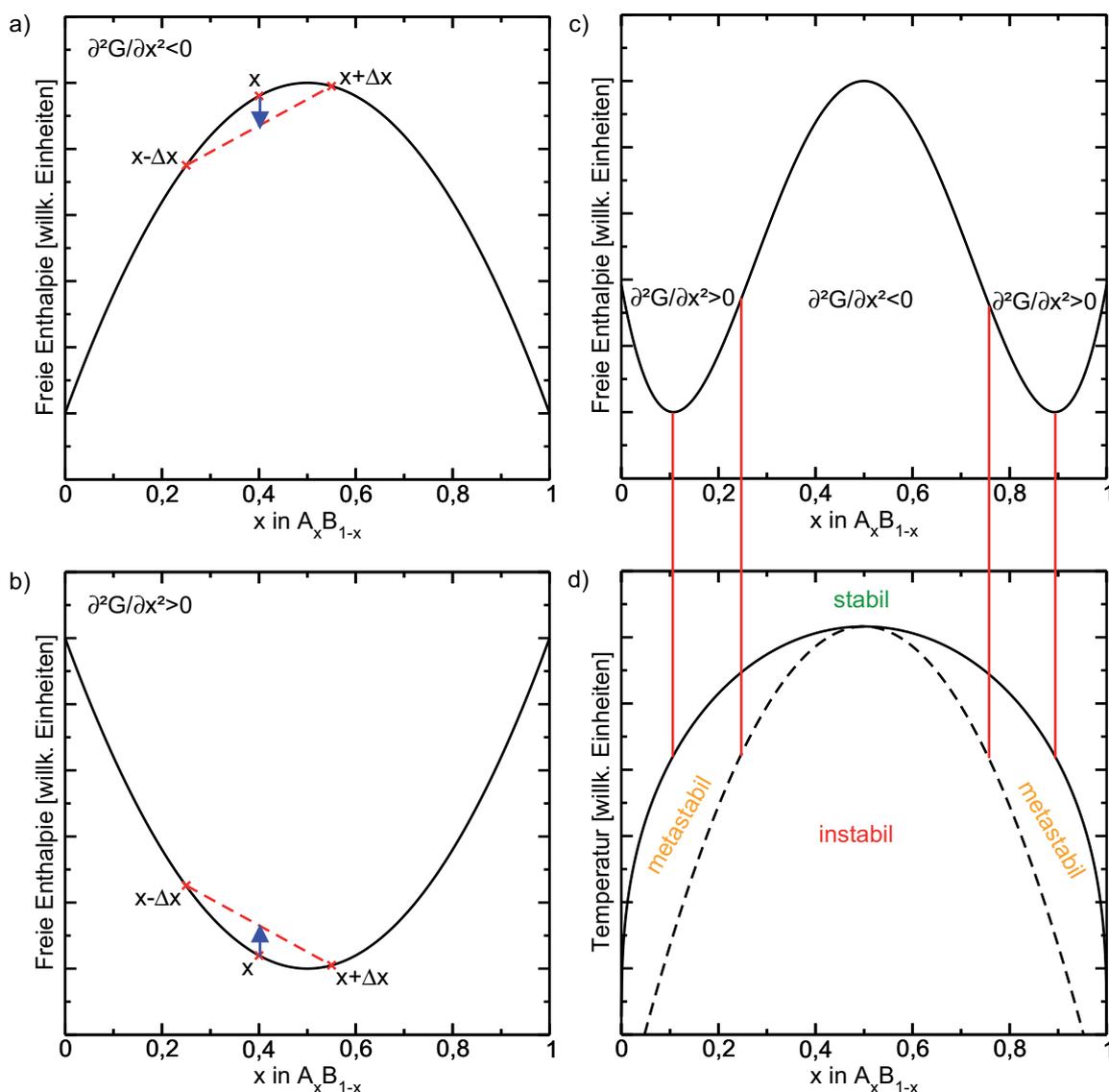


Abbildung 1.6: In a), b) und c) ist die freie Enthalpie gegen die Konzentration x in A_xB_{1-x} aufgetragen, jeweils mit a) negativer Kurvenkrümmung im Fall niedriger Temperaturen, b) positiver Kurvenkrümmung bei hohen Temperaturen und c) negativer sowie positiver Krümmung im mittleren Temperaturbereich. Bei negativer Krümmung führt eine Variation um Δx im Mittel zu einer Absenkung der freien Enthalpie, weswegen die Komposition x und alle weiteren möglichen Kompositionen nicht stabil sind. Bei positiver Krümmung führt eine Fluktuation von x um Δx im Mittel zu einer Erhöhung der freien Enthalpie, gekennzeichnet durch den blauen Pfeil, weshalb die Komposition x stabil ist. In c) hat der Verlauf der freien Enthalpie sowohl positiv als auch negativ gekrümmte Funktionsbereiche. Die Wendepunkte und die Minimas der freien Enthalpie definieren im Temperatur-Konzentrations-Phasendiagramm, dargestellt in d), die Punkte auf der spinodalen und binodalen Kurve. Unterhalb der Spinodalen gibt es ein instabiles Gebiet, welches zur Phasenseparation führt. Zwischen Spinodale und Binodale gibt es einen metastabilen Bereich und oberhalb der Binodalen sind alle Kompositionen möglich.

welcher durch die Wendepunkte eingegrenzt wird, ist die Krümmung des Graphen positiv. Liegt x in diesem Bereich, dann sind kleine Fluktuationen um Δx energetisch ungünstiger, so dass sich x stabilisiert. Ist es jedoch schon zu einer Phasenseparation gekommen, d.h. es gibt sich berührende Bereiche mit $A_{x_1}B_{1-x_1}$ und $A_{x_2}B_{1-x_2}$, wobei x_1 zwischen 1. Minimum und 1. Wendepunkt und x_2 zwischen 2. Wendepunkt und 2. Minimum liegt, so kann z.B. durch Fluktuationen von x_1 das B-Material von $A_{x_1}B_{1-x_1}$ direkt an $A_{x_2}B_{1-x_2}$ abgeführt werden. Liegen derart große Fluktuationen vor, sind selbst die Bereiche zwischen Minima und Wendepunkte energetisch ungünstig, weshalb es zur Phasenseparation bis zu den jeweiligen Minima der Funktion kommt. Dieser Bereich wird daher metastabiler Bereich genannt. Zwischen $x = 0$ und dem 1. Minimum und dem 2. Minimum und $x = 1$ ist die Mischung stabil.

Der dritte Fall soll im Folgenden weiter betrachtet werden. Die Minima werden binodale Punkte und die Wendepunkte spinodale Punkte genannt. Der Verlauf der freien Enthalpie ist temperaturabhängig. Mit zunehmender Temperatur laufen alle kritischen Punkte (Wendepunkte und Minima) zusammen. Werden alle spinodalen und binodalen Punkte in einem Temperatur-Konzentrations-Diagramm eingezeichnet so erhält man das typische Phasendiagramm mit den spinodalen und binodalen Kurven (siehe Abb. 1.6 d)). Die kritische Temperatur T_c kennzeichnet das Maximum beider Kurven. Unterhalb der Spinodalen gibt es ein instabiles Gebiet, die sogenannte Mischungslücke; Materialkompositionen A_xB_{1-x} mit einem x -Wert in der Mischungslücke würde aus oben genannten Gründen bis zur Binodalen phasenseparieren. Zwischen Spinodale und Binodale liegt der metastabile Bereich. Liegt eine homogene Phase vor, ist diese stabil. Zwei Phasen in entgegengesetzt liegenden metastabilen Bereichen wären nicht stabil, weshalb weitere Entmischungen bis zur Binodalen auftreten würde. Oberhalb der Binodalen ist jede Komposition stabil. In dem Phasendiagramm ist nicht berücksichtigt, dass ein Materialsystem, wie z.B. InGaN, durchaus schon bei niedrigeren Temperaturen als T_c thermodynamisch instabil ist und sich zersetzen kann.

Ein wichtiger, die Dynamik der spinodalen und binodalen Entmischung bestimmender Parameter ist die Diffusion. Sie gibt an, wie schnell eine Phasenseparation vollzogen werden kann. Wesentlichen Einfluss auf die Diffusion hat die Temperatur, die über $E = \frac{2}{3}kT$ und $E = \frac{1}{2}mv^2$ mit der Diffusionsgeschwindigkeit verknüpft ist. Die Geschwindigkeit hängt auch von der Beweglichkeit der einzelnen Atome/Moleküle ab. Besonders in einem Festkörper spielt es somit eine Rolle, ob die Entmischung unter oder auf einer Oberfläche stattfindet, da ein Atom an der Oberfläche nicht so stark gebunden ist wie ein Atom unter der Oberfläche im Volumen. Desweiteren hängt die Diffusion von der Beschaffenheit der Oberfläche ab. Eine atomar glatte Oberfläche erleichtert Diffusion im Gegensatz zu einer rauen oder mit Stufen versetzten Oberfläche. Spinodale und binodale Entmischung ist ein Prozess, welcher in vielen Materialsystemen auftreten kann wie z.B. in Polymeren [Bin83], Metallen [MA96] oder Halbleitern. Phasendiagramme wurden für ternäre Halbleitermaterialien wie GaAsSb und CdZnTe berechnet [Str99], und in der Literatur gibt es zahlreiche Veröffentlichung, die sich mit spinodaler und binodaler Entmischung von InGaN beschäftigen. Dies soll im Folgenden näher betrachtet werden.

1.4.1 Das spinodale und binodale Phasendiagramm für InGaN

Ho und Stringfellow haben Mitte der neunziger Jahre des letzten Jahrhunderts [HS96] eine Mischungslücke für InGaN vorausgesagt. Die Enthalpie H und die Entropie S zur Berechnung der freien Enthalpie G mit Gleichung (1.14) lassen sich aus dem *regular solution model* [Str99] berechnen zu:

$$H = \Omega(1-x)x \quad \text{und} \quad S = -k[x\ln(x) + (1-x)\ln(1-x)]. \quad (1.15)$$

Hierbei ist Ω der Interaktionsparameter zwischen GaN und InN, x die Konzentration von InN im $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ und k die Boltzmannkonstante. Die freie Enthalpie kann damit geschrieben werden als:

$$G = \Omega(1-x)x + kT[x\ln(x) + (1-x)\ln(1-x)] \quad (1.16)$$

wobei T die Temperatur ist. Basierend auf einem modifizierten *valence-force-field* Modell [Kea66] lässt sich Ω auf einen Mittelwert von 5.98 kcal/mol bestimmen [HS96]. Mit den Bedingungen $\frac{\partial G}{\partial x} = 0$ für die Binodale und $\frac{\partial^2 G}{\partial x^2} = 0$ für die Spinodale lässt sich das Phasendiagramm für InGaN darstellen (siehe Abb. 1.7). Die kritische Temperatur,

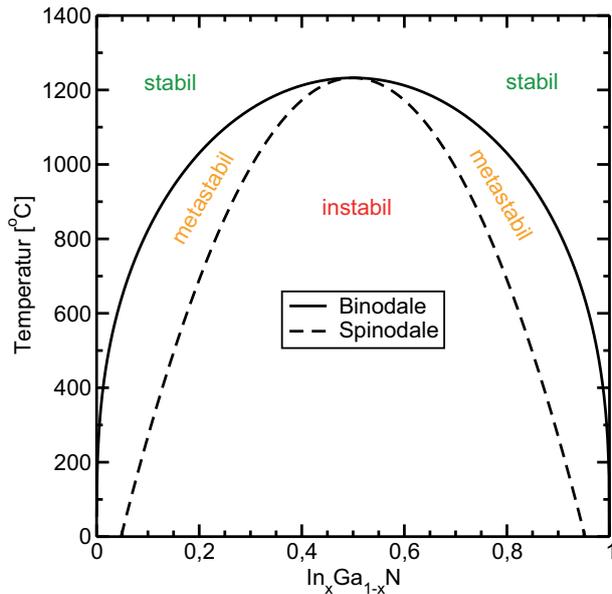


Abbildung 1.7: Spinodale und binodale Kurven für freistehendes InGaN. Unterhalb der spinodalen Kurve gibt es ein instabiles Gebiet, das Material würde entmischen. Zwischen Spinodale und Binodale liegt ein metastabiler Bereich vor, nur bei starken Konzentrationsfluktuationen würde die Entmischung weiter bis zur Binodalen angetrieben werden. Oberhalb der binodalen Kurve ist jede Komposition stabil.

d.h. das Maximum der spinodalen Kurve, liegt bei 1233 °C und es ist ein großer instabiler Bereich für typische Wachstumstemperaturen von InGaN in der MOVPE von 600 °C bis 900 °C zu erkennen. Die Wachstumstemperaturen für InGaN in der Molekularstrahlepitaxie (MBE) sind sogar noch niedriger, so dass es hier eine noch größere Mischungslücke geben sollte. Jedoch können niedrigere Temperaturen den Phasenseparationsprozess verlangsamen bzw. “einfrieren”, weil sich die Diffusionsgeschwindigkeit verringert bzw. die Energie nicht mehr ausreicht, um die Bindung zwischen den Atomen aufzubrechen und keine frei beweglichen Atome mehr erzeugt werden können. Bei niedrigen Temperaturen ist der Phasenseparationsprozess unterdrückt und jede Komposition von InGaN ist realisierbar [KUAY07]. In der Veröffentlichung von El-Masry et al. [EMPL98] deuten Röntgenergebnisse darauf hin, dass ein angefangener Phasenseparationsprozess eingefroren wurde. Es wurden in einer Messung InN-Konzentrationen

von 95 %, 49 %, 36 % und 14 % bestimmt. Die Wachstumstemperatur der mehrere hundert nm dicken Schicht, welche mit der MOVPE hergestellt wurde, betrug 690 °C.

In weiteren Veröffentlichungen findet man experimentelle Ergebnisse, die nicht im Einklang mit dem Phasendiagramm aus Abb. 1.7 sind. In [GHN⁺03, CCC⁺05] wurde mit der Methode der Transmissionselektronenmikroskopie von InGaN-Einschlüssen mit $x = 0,4 - 0,5$ berichtet, die Temperatur der InGaN-Schicht während des Wachstums in der MOVPE betrug 700 °C. Mit Hilfe von Röntgenuntersuchungen wurde eine bei 650 °C hergestellte InGaN-Schicht mit einem InN-Gehalt von 43 % gefunden [LWP⁺09]. Weiterhin wurden experimentell InGaN-Phasen mit einem homogenen InN-Gehalt von 35 % bis 53 % festgestellt [GLS⁺10, SDMR96, DBLM98]. Nach Abb. 1.7 sind diese InN-Konzentrationen nicht stabil und Phasenseparation sollte auftreten. Es liegt deshalb nahe anzunehmen, dass es Prozesse gibt, die die Phasenseparation unterdrücken.

Pantha et al. konnten zeigen, dass die Wachstumsrate einen wesentlichen Einfluss auf die Phasenseparation hat und die Entmischung durch eine schnellere Wachstumsrate unterdrückt werden kann [PLLJ10]. Dieses Ergebnis deutet darauf hin, dass der Phasenseparationsprozess nur auf der Oberfläche aufgrund der hohen möglichen Mobilität stattfindet und nicht im Kristall, wo die Mobilität sehr gering ist [OA01]. Ist die Wachstumsrate hoch, so ist die Zeit, in der sich ein Atom auf der Oberfläche befindet gering. Phasenseparation kann nur bedingt stattfinden bzw. wird vollständig unterdrückt.

Die Mehrzahl der theoretischen Berechnungen von spinodalen Kurven sagen wie Ho und Stingfellow eine weite Mischungslücke voraus. Takayama et al. [TYIH01] berechneten eine kritische Temperatur von 1970 K bei $x = 0,5$. Ferhat et al. [FB02] kommen auf 1400 K bei $x = 0,5$. Saito et al. [SA99] erhalten durch Berechnungen mit einem x -abhängigen Interaktions-Parameter Ω eine kritische Temperatur von 1417 °C bei $x = 0,39$. Mit der Methode der "generalisierten quasichemischen Approximation" (GQCA, [SvSCC87]) wurde die kritische Temperatur bei $x \sim 0,4$ auf 1295 °C bestimmt [TFS⁺00]. Deibuk et al. [DV05] zeigen schichtdickenabhängige spinodale Kurven, welche mit Hilfe des DLP-Modells ("Delta Lattice Parameter") berechnet wurden. Demnach haben eine 1 μm und eine 140 nm dicke InGaN-Schicht eine kritische Temperatur von 1322 K bei $x = 0,44$, jedoch bricht die Spinodale der 140 nm-Schicht zu kleineren x -Werten hin schneller ein. Eine 50 nm-Schicht hat nur noch eine kritische Temperatur von etwa 700 K bei $x \sim 0,8$. Dem Trend folgend kann erwartet werden, dass für dünnere Schichten im einstelligen Nanometerbereich, wie sie z.B. in Quantenfilmen gewachsen werden, keine Phasenseparation mehr auftritt.

Bis auf die Arbeit von Deibuk et al. [DV05] wurde bei den theoretischen Betrachtungen stets unverspanntes freistehendes InGaN angenommen. InGaN-Schichten werden oftmals als Quantenfilme zwischen GaN-Schichten gewachsen, wobei das InGaN hier voll verspannt auf dem GaN aufwächst. Karpov [Kar98] hat von der Schichtdicke unabhängige Berechnungen für voll verspanntes InGaN durchgeführt. Sie zeigen, dass die kritische Temperatur der Spinodalen signifikant reduziert und zu höheren InN-Konzentrationen verschoben wird, dennoch gibt es für Wachstumstemperaturen unterhalb von etwa 700 °C eine Mischungslücke. Diese theoretischen Berechnungen sind in sehr guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen dieser Arbeit. Im folgenden Abschnitt soll detailliert auf das Modell von Karpov eingegangen werden.

1.4.2 Spinodale und Binodale für verspanntes InGaN auf GaN

Im vorherigen Abschnitt wurde gezeigt, dass es eine Mischungslücke für InGaN gibt. Karpov hat in [Kar98] gezeigt, dass sich die kritische Temperatur signifikant verringert und zu höheren InN-Konzentrationen verschiebt, sobald man voll verspanntes InGaN auf der c -Ebene von GaN annimmt. Tabata et al. [TTS⁺02] bestätigen die Theorie von Karpov in ihrer Interpretation der experimentellen Ergebnisse: biaxiale Verspannung der InGaN-Schicht führt zur Unterdrückung von spinodaler Entmischung.

Da diese Theorie für diese Arbeit von Bedeutung ist, wird sie hier im Detail erläutert. Darüber hinaus werden erstmalig zusätzliche Rechnungen angestellt, aus denen die Spinodale und Binodale für bestimmte Verspannungsgrade von InGaN auf c -Ebenen-GaN abgeleitet werden. Im Abschnitt 3.7 sind diese Graphen aus teilverspannten InGaN auf GaN wesentlicher Teil des Modells zur Bildung von Quantenpunktstrukturen durch spinodale und binodale Entmischung.

In [AK96] wurde gezeigt, wie man die chemischen Potentiale der zwei Komponenten eines ternären Materials bestimmen kann. Dies erfolgt aus einer *regular solution* Annäherung für die freie Enthalpie plus dem Potential für die elastische Energie einer verspannten epitaktischen Schicht. Die chemischen Potentiale μ_{InN} für InN und μ_{GaN} für GaN lauten:

$$\mu_{\text{InN}} = \mu_{\text{InN}}^0 + \frac{\sqrt{3}}{4} N_A c_s [B \Delta_{\text{InN}}^2 + \Delta B (\Delta a)^2 (1-x)] + RT \cdot \ln(x) + [W - \frac{\sqrt{3}}{4} N_A c_s B \Delta^2] (1-x)^2 \quad (1.17)$$

$$\mu_{\text{GaN}} = \mu_{\text{GaN}}^0 + \frac{\sqrt{3}}{4} N_A c_s [B \Delta_{\text{GaN}}^2 - \Delta B (\Delta a)^2 x] + RT \cdot \ln(1-x) + [W - \frac{\sqrt{3}}{4} N_A c_s B \Delta^2] x^2 \quad (1.18)$$

mit

$$\Delta_{\text{InN}} = a_{\text{InN}} - a_s \quad , \quad \Delta_{\text{GaN}} = a_{\text{GaN}} - a_s \quad , \quad \Delta = a_{\text{InN}} - a_{\text{GaN}}, \quad (1.19)$$

$$\Delta a = a - a_s \quad \text{und} \quad a = a_{\text{InN}} x + a_{\text{GaN}} (1-x), \quad (1.20)$$

wobei jeweils die Gitterkonstante von InN (a_{InN}), von GaN (a_{GaN}) und dem Substrat in lateraler (a_s) und vertikaler Richtung (c_s) gemeint ist. Die Gitterkonstante a des $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ mit der Konzentration x wird mit dem Vegard'schen Gesetz [Veg21] bestimmt. Weiterhin gilt: μ_{GaN}^0 und μ_{InN}^0 sind die chemischen Potentiale der binären Materialien GaN und InN, N_A ist die Avodadro-Konstante, R die allgemeine Gas-konstante, T die Temperatur und W der Interaktionsparameter. Zusätzlich ist B die effektive elastische Konstante. Es gilt

$$B = B_{\text{InN}} x + B_{\text{GaN}} (1-x) \quad \text{und} \quad \Delta B = B_{\text{InN}} - B_{\text{GaN}} \quad (1.21)$$

mit

$$B_{\text{InN,GaN}} = C_{11} + C_{12} - 2 \frac{C_{13}^2}{C_{33}}. \quad (1.22)$$

C_{ij} ($i,j=1\dots6$) sind die jeweiligen elastischen Konstanten. Die Literaturwerte für die elastischen Konstanten streuen, wie es in verschiedenen Veröffentlichungen angegeben ist [Wri97, KLS96, PW97]. Die elastischen Konstanten haben einen sehr starken Einfluss

auf das Ergebnis. Bei der Wahl von Werten z.B. aus der [KLS96]-Veröffentlichung beträgt die kritische Temperatur der voll verspannten Spinodalen 404 °C , so dass bei einer Wachstumstemperatur um 600 °C keine Entmischung zu erwarten wäre. In dieser Arbeit wurden die Werte aus [Wri97] verwendet, was zu einer besseren Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment geführt hat. Karpov hat bei seinen Berechnungen auf die Werte von [KLS96] zurückgegriffen, weshalb die folgenden Berechnungen für die Spinodalen und Binodalen von der Karpov-Veröffentlichung abweichen. Sie sind in Tabelle 1.4 zusammengefasst.

elastische Konstante	C_{11}	C_{12}	C_{13}	C_{33}
GaN	367	135	103	405
InN	223	115	92	224

Tabelle 1.4: Elastische Konstanten von GaN und InN aus [Wri97]. Werte sind in GPa angegeben.

Die Berechnung der spinodalen Graphen lässt sich analytisch aus folgender Bedingung ableiten:

$$\frac{\partial \mu_{\text{InN}}}{\partial x} = \frac{\partial \mu_{\text{GaN}}}{\partial x} = 0 \quad (1.23)$$

Diese Gleichung drückt aus, dass eine Konzentrationsänderung, z.B. der Austausch eines Gallium- und Indiumatoms zwischen den jeweiligen Phasen, zu keiner Veränderung der chemischen Potentiale führt. Diese Forderung ist nur an den spinodalen Punkten erfüllt. Die Lösung für die Spinodale lautet:

$$T = \frac{2}{R} \left\{ W - \frac{\sqrt{3}}{4} N_A c_s (B \Delta^2 + 2 \Delta B \cdot \Delta \cdot \Delta a) \right\} x(1-x) \quad (1.24)$$

Die Bedingung für die Binodale lautet:

$$\mu_{\text{InN}}(x_1) = \mu_{\text{InN}}(x_2) \quad \wedge \quad \mu_{\text{GaN}}(x_1) = \mu_{\text{GaN}}(x_2). \quad (1.25)$$

Hiermit wird gefordert, dass die chemischen Potentiale der beiden Phasen mit den Konzentrationen x_1 und x_2 gleich sind. Erst dann herrscht ein energetisches Gleichgewicht und die Phasen sind stabil. Das Gleichungssystem (1.25) ließe sich wegen des Vorkommens von x_1 bzw. x_2 außerhalb und innerhalb des Logarithmus nur analytisch mit der *lambertschen W-Funktion* lösen. Aufgrund der mathematischen Komplexität dieser Herangehensweise wurde das Gleichungssystem numerisch genähert. In Abb. 1.8 sind die spinodalen und binodalen Graphen für verschiedene Verspannungsgrade der InGaN-Schicht auf GaN dargestellt.

Es ist zu erkennen, dass sich mit zunehmenden Verspannungsgrad die kritische Temperatur von 1272 °C auf 713 °C verringert und dabei von $x=0,5$ nach $x=0,795$ verschiebt. Der instabile Bereich unterhalb der Spinodalen verringert sich signifikant mit zunehmenden Verspannungsgrad der InGaN-Schicht. Diese Reduzierung macht es möglich, dünne vollverspannte InGaN-Schichten über einen weiten Kompositionsbereich zu wachsen. Oberhalb von 713 °C sollte sogar jede Komposition stabil sein. Jedoch müssen

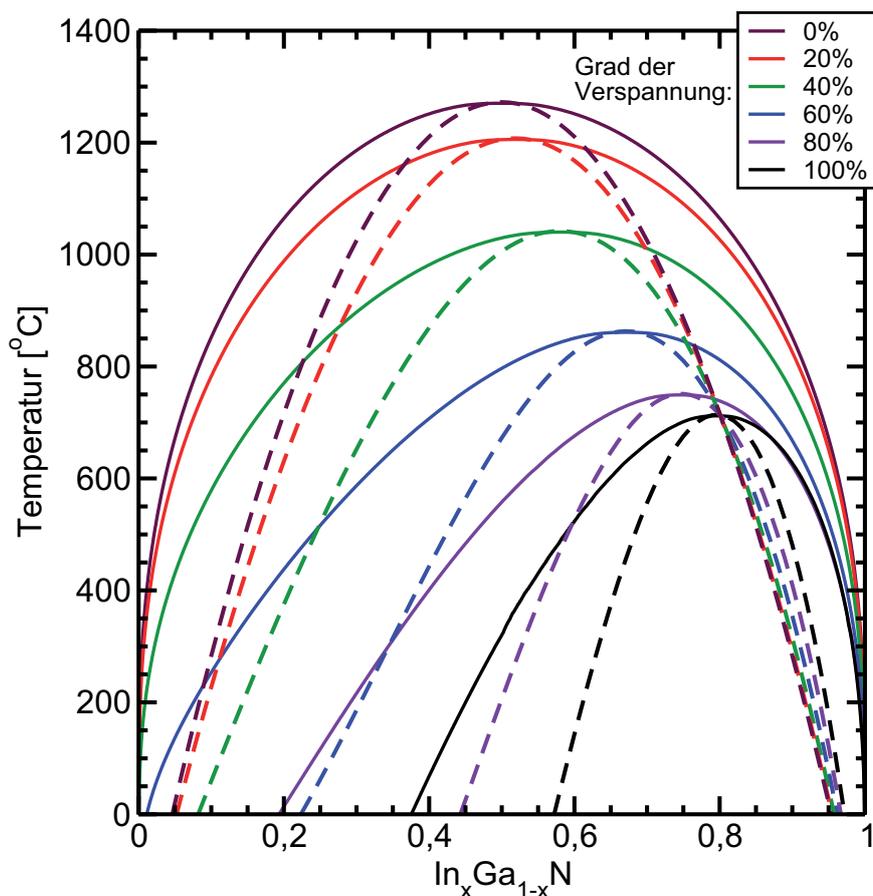


Abbildung 1.8: Spinodale und binodale Kurven für unterschiedliche Verspannungsgrade (siehe Legende) von InGaN auf GaN. Gestrichelte Linien sind die Spinodalen, durchgezogene Linien sind die Binodalen. Mit zunehmender Verspannung der InGaN-Schicht sinkt die kritische Temperatur ab und verschiebt zu höheren x -Werten; der instabile Bereich ist stark reduziert.

hierbei aufgrund der hohen Temperaturen auch thermodynamische Aspekte berücksichtigt werden, welche schon in Abschnitt 1.2 besprochen wurden. Für Temperaturen unterhalb von $713\text{ }^{\circ}\text{C}$ gibt es jedoch einen Bereich für hohe x -Werte, für den eine Mischungslücke existiert. Die üblichen Temperaturen in der MOVPE beim Wachstum von hoch-InN-haltigen InGaN oder InN liegen im Bereich von $500\text{--}700\text{ }^{\circ}\text{C}$, weshalb dieses Diagramm für das Wachstum in diesen Kompositionsbereich von großer Bedeutung ist. Die spinodalen und binodalen Linien für teilverspanntes InGaN müssen berücksichtigt werden, wenn es in Folge der Bildung freistehender InGaN-Inseln zu einer Relaxation im Material kommt (siehe Abb. 1.5). Desweiteren können InGaN-Schichten ihren vollen Verspannungsgrad über Kristalldefekte verlieren [LWBW⁺01].

Für verspanntes InGaN auf einer Ebene senkrecht zur c -Ebene von GaN (z.B. die a - oder m -Ebene) ist der instabile Bereich unterhalb der Spinodalen größer als bei verspannten c -Ebenen InGaN auf GaN. Hier herrscht sogar noch bis unterhalb von etwa $1020\text{ }^{\circ}\text{C}$ eine signifikante Mischungslücke vor. Das Wachstum von InGaN auf a -Ebenen GaN bezüglich der Bildung von Quantenpunkten wird in Abschnitt 5.4.5 besprochen.

1.4.3 Anordnung der entmischten Phasen

Im vorhergehenden Abschnitt wurde gezeigt, unter welchen Bedingungen es zur Phasenseparation kommt. Durch spinodale und binodale Entmischung phasenseparierte Materialien können typische Muster annehmen. Diese Muster ähneln überlagerten Sinuskurven, die eine feste Wellenlänge haben aber beliebig in Orientierung, Phase und Amplitude sind [Cah64]. Die Anordnung der entmischten Phasen lässt sich mit Hilfe der Cahn-Hilliard-Gleichung berechnen, welche zeitliche und räumliche Konzentrationsveränderungen mit der Diffusion verknüpft. Sie hat die folgende Form:

$$\frac{\partial x}{\partial t} = D\Delta(x^3 - x - \gamma\Delta x). \quad (1.26)$$

Hierbei ist x die Konzentration des phasenseparierten Gebietes, $\partial/\partial t$ die zeitabhängige Ableitung, D die Diffusionskonstante, Δ der Laplace-Operator und $\sqrt{\gamma}$ die typische Breite des Übergangsbereiches zwischen zwei Phasen. Der Ausdruck $(x^3 - x - \gamma\Delta x)$ lässt sich zum chemische Potential μ zusammenfassen. Die Konzentration im Übergangsbereich bestimmt sich zu: $x(s) = \tanh(s/\sqrt{2\gamma})$, wobei s der Ort ist. Sie ist für den folgenden Bereich definiert: $-1 < x < +1$, wobei $x = \pm 1$ die Endprodukte der Phasenseparation sind, d.h. $x = -1$ liegt direkt auf dem linken Arm der Binodalen während $x = +1$ direkt auf dem rechten Arm der Binodalen ist. Die Größe L der Gebiete ist zeitabhängig, es gilt: $L(t) \propto t^{1/3}$.

Zur Berechnung der Anordnung der entmischten Phasen wurde das numerische Integrationsschema von D. Eyre [Eyr98] verwendet. In Abb. 1.9 sind die Anordnungen der entmischten Phasen für mehrere Fälle dargestellt. Es wurde die Anfangskonzentration variiert und das Ergebnis zu unterschiedlichen Zeiten dargestellt. Befindet sich die Anfangskonzentration in der Mitte des instabilen Gebietes, so erhält man meanderartige Strukturen. Die Größe der Strukturen nimmt mit der Zeit zu. Wählt man eine Konzentration am Randbereich der Spinodalen, d.h. es kommt gerade noch zur Phasenseparation, so erhält man separierte inselartige Strukturen einer Phase eingebettet in die andere Phase. Befindet sich die Anfangskonzentration außerhalb des instabilen Gebietes, so kommt es nicht zur Phasenseparation. Es zeigt sich, dass es möglich ist, durch geschickte Wahl der Anfangskonzentration quantenpunktartige Strukturen herzustellen.

Okumura et al. [OIK00] haben die Anordnung der entmischten Phasen speziell für das InGa_N berechnet. Grundsätzlich unterscheiden die sich nicht von denen in Fig. 1.9 gezeigten. Jedoch müssen für den Fall von einer phasenseparierten InGa_N-Schicht auf Ga_N noch zwei wichtige Punkte berücksichtigt werden. Zum Einen hat die In-N-Verbindung eine schwächere Bindungsenergie als die Ga-N-Verbindung [CKY⁺08]. Deshalb hat das Indium und der an das Indium gebundene Stickstoff eine höhere Beweglichkeit als Gallium oder Ga_N. Die InN-reichen Bereiche weisen also eine hohe Beweglichkeit auf, insbesondere auf der Oberfläche. Zum Anderen handelt es sich bei der hoch InN-haltigen Phase um fast pures InN, d.h. die Gitterfehlpassung zum Ga_N-Substrat ist sehr hoch. Es kann deshalb nicht erwartet werden, dass die hoch InN-haltige Phase als flache Schicht auf der Oberfläche verbleibt, ähnlich wie es beim Franck-van-der-Merve-Wachstum der Fall wäre. Anstelle dessen kommt es zur Bildung von Inseln im Volmer-Weber Modus, wie es typisch ist für den Fall von InN auf Ga_N

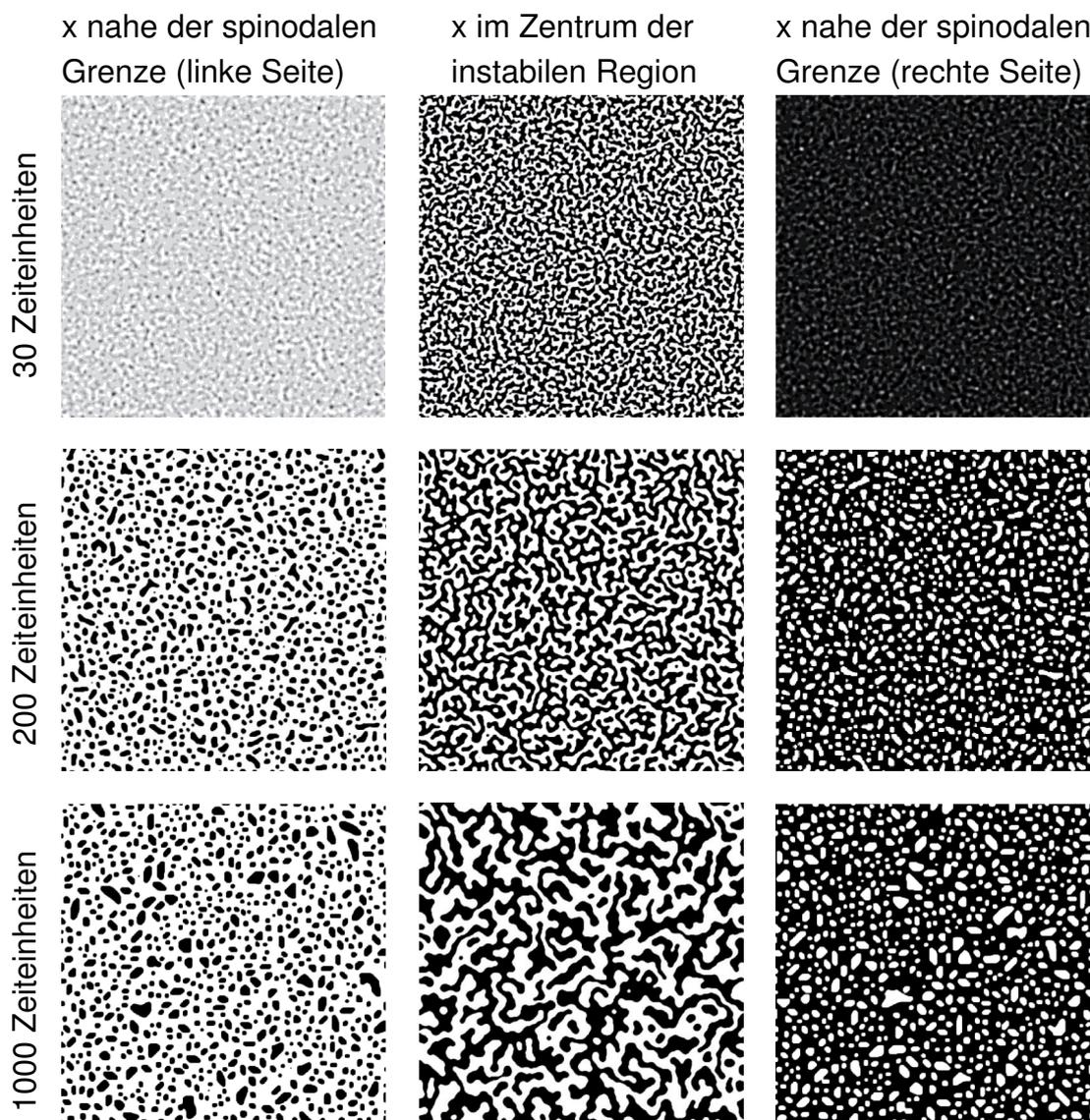


Abbildung 1.9: Anordnung der entmischten Phasen in Abhängigkeit von der Anfangskonzentration x (von links nach rechts) und der Zeit (von oben nach unten). Ähnliche Ergebnisse können erhalten werden, wenn die Zeitachse durch eine Temperaturachse ersetzt wird. Die Anordnungen der entmischten Phasen sind nicht speziell für InGa_N berechnet worden und deshalb sind keine absoluten Zeiten, keine Länge und keine Konzentration angegeben. Die hier gezeigten Anordnungen der entmischten Phasen sollen den Einfluss der Anfangskonzentration x und der Zeit bzw. Temperatur verdeutlichen. Bezogen auf das InGa_N-Materialsystem würden die hellen Bereiche einer InN-armen Phase und die dunklen Bereiche einer InN-reichen Phase entsprechen. Zur Berechnung der Anordnung der entmischten Phasen wurde das numerische Integrationsschema von D. Eyre [Eyr98] verwendet.

[MPL⁺09]. Als Endprodukt einer Phasenseparation einer dünnen InGaN-Schicht ist es vom theoretischen Standpunkt her einsichtig, dass die InN-arme Phase flach (Höhe entspricht der Schichtdicke) auf der Oberfläche verbleibt, z.B. in einer meanderartigen oder quantenpunktartigen Struktur, während sich die InN-reiche Phase aufgrund der hohen Beweglichkeit in inselartigen Strukturen ansammelt, wie es vom Volmer-Weber Modus erwartet wird.

1.5 Niederdimensionale Strukturen

Das Kernstück einer jeden LED oder LD ist die aktive Zone inmitten des p-n-Übergangs. In der Regel handelt es sich bei der aktiven Zone um ein Gebiet mit einer geringeren Bandlücke bezogen auf das umgebende Material. Sie kann in ihrer räumlichen Ausdehnung variieren, was unterschiedliche Effekte zur Folge hat. Eine in drei Dimensionen ausgedehnte aktive Zone hat den Vorteil, dass es viel Material gibt, in welchem Photonen erzeugt werden können. Jedoch kann dieses ausgedehnte Material diese Photonen auch wieder absorbieren. Ein weiterer Nachteil ist die nicht eingeschränkte Beweglichkeit der Ladungsträger. Bei einem defektreichen Material, so wie es bei den Gruppe-III-Nitriden häufig der Fall ist, können die Ladungsträger ohne energetische Barriere zu Defekten gelangen und dort nichtstrahlend über die Störstellenniveaus rekombinieren. Dieser Effekt führt zur Reduktion der Effizienz eines Bauelementes. Die Zustandsdichte D einer dreidimensionalen Schicht lautet entsprechend für das Valenzband (VB) und Leitungsband (LB):

$$D_{\text{LB,VB}}^{\text{3D}}(E) = \frac{\sqrt{2m_e^*}^3}{4\pi^2\hbar^3} \sqrt{|E - E_{\text{LB,VB}}^0|} \quad (1.27)$$

Hierbei ist m_e^* die effektive Masse des Elektrons, \hbar die Plancksche Wirkungskonstante, E die Energie und $E_{\text{LB,VB}}$ die Energie der Leitungsbandunterkante bzw. Valenzbandoberkante. In Abb. 1.10 ist der wurzelförmige, kontinuierliche Verlauf der Zustandsdichte für den dreidimensionalen Fall schematisch dargestellt.

Reduziert man das dreidimensionalen Volumen um eine Dimension derart, dass quantenmechanische Effekte relevant werden, so spricht man von einem zweidimensionalen Quantenfilm oder Quantentrog. Die Ladungsträger sind aufgrund der von dem umgebenen Material verursachten Energiebarrieren in dem Quantenfilm eingeschlossen. Sie

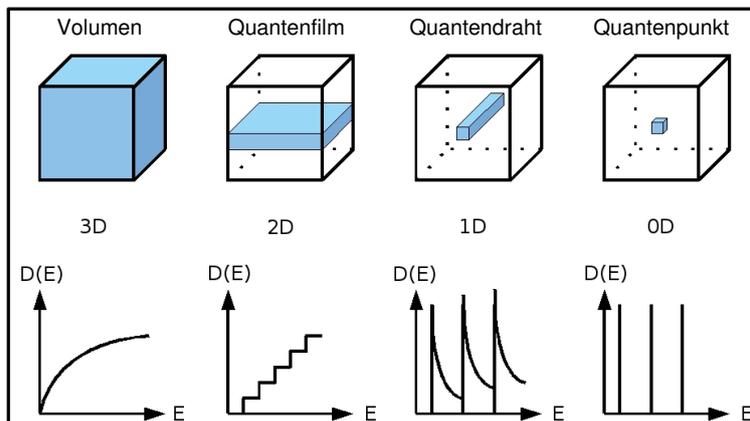


Abbildung 1.10: Zustandsdichte eines dreidimensionalen (3D) Material, einem 2D Quantenfilm, einem 1D Quantendraht und einem 0D Quantenpunkt.

können sich nur noch lokal in der Ebene frei bewegen. In Abb. 1.10 ist die treppenförmige Abhängigkeit der Zustandsdichte von der Energie dargestellt. Vorteil eines Quantenfilms ist die niedrige Reabsorption der erzeugten Photonen. Beispielsweise können in einem p-n-Übergang Elektronen und Löcher gezielt in dem Quantenfilm zusammengeführt werden. Auch hier sind wie beim dreidimensionalen Fall die Elektronen in ihrer Beweglichkeit nicht ausreichend eingeschränkt. Somit können angeregte Ladungsträger Defekte erreichen und nicht-strahlend rekombinieren.

Bei einem eindimensionalen Quantendraht ist die Möglichkeit einer Rekombination von Ladungsträgern an Defekten reduziert. Die Herstellung derartiger Strukturen wäre mit Hilfe von vorstrukturierten Substraten oder anderen technologischen Mitteln (z.B. Ätzen von Stegen) möglich. Von einem selbstorganisierten katalysatorgestützten Wachstum wird in [CJH⁺03] berichtet.

Wird die Dimension auf null reduziert, so spricht man von einem Quantenpunkt. Hierbei sind die Ladungsträger auf einem kleinen Raum eingeschlossen. Dies führt im Allgemeinen zu einer höheren Rekombinationswahrscheinlichkeit aufgrund des stärkeren Überlapps zwischen den Wellenfunktionen der jeweiligen Ladungsträger. Ist der Quantenpunkt defektfrei, so ist die nichtstrahlende Rekombination stark unterdrückt, da die Ladungsträger nicht ohne weiteres umliegende Defekte erreichen können. Dies ist nur möglich, wenn die Ladungsträger aus den Quantenpunktniveaus in das umgebende Volumenmaterial angeregt werden. Bei einem defektreichen Material wie GaN können Quantenpunkte die Effizienz von Bauelementen erheblich steigern. Die Zustandsdichte für einen nulldimensionalen Quantenpunkt (siehe Abb 1.10 rechts) lässt sich durch eine Summe von δ -Funktionen beschreiben:

$$D^{0D} = 2 \sum_{n_e, l_e, n_h, l_h} \delta(E - E(n_e, l_e, n_h, l_h)) \quad (1.28)$$

Hierbei sind n und l die Haupt- und Nebenquantenzahlen des Elektrons e und des Lochs h . Die Eigenschaften eines Quantenpunktes ähneln aufgrund der diskreten Niveaus den Zuständen eines Atoms. Oftmals wird auch die Bezeichnung "künstliche Atome" verwendet. Aufgrund der diskreten Energieniveaus können von einem Quantenpunkt spektral scharfe Emissionslinien in Photolumineszenzuntersuchungen detektiert werden.

Die maximale Ausdehnung eines Quantenpunkts, in der noch Quanteneffekte auftreten, lässt sich näherungsweise mit dem Exzitonen Bohr-Radius a_B bestimmen [Vog99]:

$$a_B = \frac{4\pi\epsilon_0\hbar^2}{m_e e^2} \quad (1.29)$$

Hierbei ist ϵ_0 die elektrische Feldkonstante (Permittivität), \hbar die Plancksche Konstante, m_e die Masse des Elektrons und e die Elementarladung. Erweitert man diese Formel auf das Materialsystem GaN durch Einfügen der Dielektrizitätszahl für GaN $\epsilon_r = 8,9$ [BLRZ01] und durch Ersetzen der Elektronenmasse durch die effektive Masse der Elektronen im GaN $m_e^* = 0,2m_e$ [BLRZ01], so ergibt sich ein Bohr-Radius von 2,4 nm, welcher in sehr guter (2,8 nm [RRN⁺00]) bis mäßiger Übereinstimmung (11 nm [Yof01]) mit experimentellen Literaturwerten ist.

Der Einsatz von Quantenpunkten ermöglicht prinzipiell noch weitere Verbesserungen in den Betriebseigenschaften eines Bauelements wie z.B. eine temperaturunabhängige und reduzierte Schwellstromdichte [AS82, AS96, AMS96].

1.6 “Quantum-Confined Stark Effect”

Ein Quantenfilm zeichnet sich dadurch aus, dass er eine niedrigere Bandlücke hat als das ihn umgebende Material. Dies ist für InGaN eingebettet in GaN der Fall, wobei die Bandlücke vom InN-Gehalt gemäß der Formel (1.2) abhängt. Der Verlauf von Valenzband (VB) und Leitungsband (LB) ist jedoch nicht spiegelsymmetrisch, sondern üblicherweise liegt ein unterschiedlicher Versatz bezüglich des Potentials von VB und LB vor. Für InN auf GaN beträgt der Valenzbandversatz 0,5 eV [VM03].

Eine weitere Veränderung der Bänder wird durch die spontane und piezoelektrische Polarisierung verursacht. Die spontane Polarisierung P_{sp} , auch Pyroelektrizität genannt, tritt im GaN auf, da es keine Spiegelsymmetrie in c -Richtung gibt. Das Dipolmoment der Einheitszelle verursacht ein elektrisches Feld, welches zur Ladungsträgertrennung führt. Elektronen und Löcher sammeln sich entgegengesetzt an den Oberflächen und verursachen die spontane Polarisierung. Sie berechnet sich nach [AMM⁺02] zu $P_{sp}(x) = [-0,042x - 0,034(1-x) + 0,037x(1-x)]\text{Cm}^{-2}$, wobei x die InN-Konzentration im InGaN ist. In der Regel wird die spontane Polarisierung durch Oberflächenabsättigung, z.B. Oxidation der Oberfläche, wieder abgebaut, d.h. es kann keine Spannung an den entgegengesetzten Oberflächen abgegriffen werden. Die piezoelektrische Polarisierung P_{pz} oder Piezoelektrizität tritt im biaxial verspannten InGaN auf, wenn die Ladungsschwerpunkte der Gitterbausteine nicht mehr übereinanderliegen. Die Berechnung erfolgt nach [AMM⁺02] zu $P_{pz} = [0,148x - 0,0424x(1-x)]\text{Cm}^{-2}$. Beide Polarisationsarten führen zu einem elektrischen Feld, welches eine Verkipfung der Bandkanten im Energie-Orts-Diagramm zur Folge hat.

In Abb. 1.11 ist die Situationen der Bänder für die Fälle eines InGaN Quantenfilms eingebettet in GaN dargestellt. Der linke Graph vernachlässigt das elektrische Feld, beim rechten Graphen wird ein elektrisches Feld berücksichtigt. Zusätzlich wurden die Wellenfunktionen für Elektron und Loch für die jeweiligen Fälle berechnet und eingezeichnet. Es ist zu erkennen, dass sich die Bandkanten im Quantenfilm aufgrund des piezoelektrischen Feldes sehr stark verkippen. Dies hat zur Folge, dass sich die Wellenfunktionen jeweils zu den Energieminimas hin verschieben, was zu einer räumlichen Trennung von Elektronen- und Loch-Wellenfunktion führt. Durch den reduzierten Überlapp der Wellenfunktion sinkt die Wahrscheinlichkeit für eine Rekombination der Ladungsträger. Dies führt zur Reduzierung der abgegebenen Strahlung, was negative Auswirkungen auf die Effizienz eines Bauelementes hat. Eine weitere Folge der Bandverkipfung ist die energetische Annäherung der Zustandsenergie, wodurch es zu einer Rotverschiebung der strahlenden Rekombination kommt.

Beide Effekte, Rotverschiebung und reduzierte Rekombinationswahrscheinlichkeit werden als “Quantum-Confined Stark Effect” (kurz: QCSE, Übersetzung: Stark-Effekt unter quantenmechanischen Einschluss) zusammengefasst. Der QCSE ist wahrscheinlich verantwortlich für die sinkende Effizienz von Bauelementen, die im grünen Spektralbereich arbeiten (Stichwort “Green gap” [KSMM⁺07]). Um den QCSE zu umgehen wird zunehmend das Wachstum von GaN auf halb- [SAW⁺10] oder unpolaren Ebenen wie z.B. auf der m - oder a -Ebene [HNDS07] untersucht.

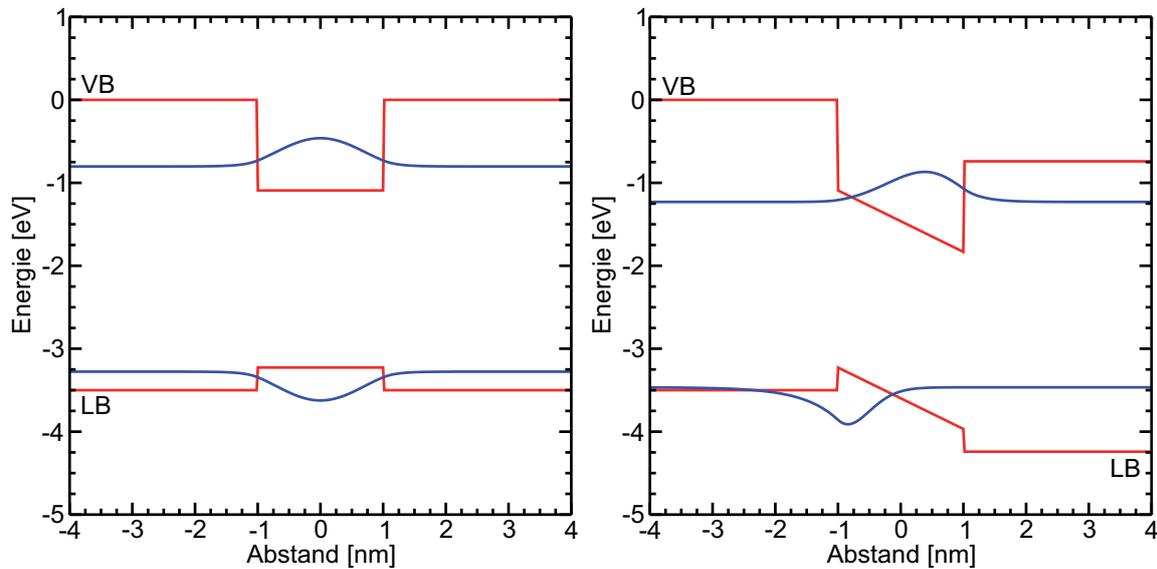


Abbildung 1.11: Verlauf von Valenz- und Leitungsband für einen $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{N}$ Quantenfilm mit einer Breite von 2 nm eingebettet in GaN. Es wurde ein Valenzbandversatz von 0,5 eV berücksichtigt. Zusätzlich sind die Wellenfunktionen für Elektronen und Löcher eingezeichnet. Die Fälle ohne (links) und mit (rechts) Präsenz eines elektrischen Feldes sind dargestellt. In diesem Beispiel liegt ohne elektrisches Feld ein nahezu perfekter Überlapp der Wellenfunktionen vor, die voneinander einen energetischen Abstand von 2,47 eV haben. Mit piezoelektrischem Feld reduziert sich der Überlapp auf 47% und die Niveaus haben einen verringerten Abstand von 2,23 eV. Die Berechnungen wurden mit *matlab* erstellt, das Programm wurde von Heiko Dartsch geschrieben.

1.7 Mikrokavitäten

Um das emittierte Licht von optisch aktiven Quantenpunkten richtungsabhängig und quantitativ zu verstärken, können Quantenpunkte in eine Resonator- bzw. Laserstruktur eingebettet werden. Eine Laserstruktur besteht u.a. aus zwei planparallelen Spiegelflächen mit einem optisch aktiven Medium zwischen den Spiegeln. Im Wesentlichen gibt es zwei unterschiedliche Arten von Laserstrukturen: den Kantenemitter und den Oberflächenemitter. Beim Kantenemitter beträgt die Resonatorlänge einige hundert μm , d.h. das Licht läuft einen relativ langen Weg durch die aktiven Schichten. Am Ende des Resonators wird das Licht an der Grenzfläche (z.B. Halbleiter-Luft-Übergang oder Halbleiter-Spiegel-Übergang) entweder transmittiert und verlässt somit den Resonator oder reflektiert und durchläuft den Resonatorbereich erneut. Verglichen mit dem Kantenemitter ist der Weg des Lichtes durch die aktive Schicht beim Oberflächenemitter sehr gering, da es die aktive Schicht nur einige nm dick ist und diese senkrecht durchlaufen wird. Um stimulierte Emission bei einem Oberflächenemitter zu erhalten muss die Lichtwelle möglichst häufig die aktive Schicht durchlaufen, d.h. die aktiven Schichten müssen in hochreflektiven Spiegelschichten eingeschlossen werden.

Mit Hilfe des Prinzips des Bragg Spiegels (kurz: DBR für engl. distributed Bragg reflector) lassen sich Spiegel hoher Reflektivität herstellen. Dabei werden jeweils zwei Schichten mit unterschiedlichen Brechungsindex vielfach paarweise übereinandergesta-

pelt. Die Dicke der jeweiligen Schichten entspricht einem Viertel der Wellenlänge des zu reflektierenden Lichtes in dem jeweiligen Medium. Unter der Annahme von idealen Schichtdicken lässt sich die Reflektivität R eines Spiegels gegenüber Luft mit folgender Formel berechnen:

$$R = \left[\frac{n_{\text{Luft}}(n_B)^{2N} - n_{\text{Substrat}}(n_A)^{2N}}{n_{\text{Luft}}(n_B)^{2N} + n_{\text{Substrat}}(n_A)^{2N}} \right]^2 \quad (1.30)$$

Hierbei ist n_{Luft} , n_{Substrat} , n_A und n_B jeweils der wellenlängenabhängige Brechungsindex der Luft, des Substrates, des Materials A und B . N bezeichnet die Anzahl der Spiegelpaare von A und B . Für eine Schichtdickenvariation lässt sich die Reflektivität mit Hilfe der Transfermatrixmethode exakt bestimmen [Dar07]. Das Reflektivitätsspektrum eines DBRs aus GaN/Al_{0,18}In_{0,82}N ist in Abb. 1.12 (links) dargestellt. Das charakteristische Merkmal eines DBR ist das Stoppband, d.h. ein Wellenlängenbereich mit hoher Reflektivität.

Wird die Periodizität eines Bragg-Spiegels durch eine Kavität gestört, so verändert sich das Reflektionsspektrum. Entspricht die optische Dicke der Kavität einer bestimmten Wellenlänge λ_k , so bricht das Reflektivitätsspektrum bei λ_k ein und der DBR wird für einen schmalen spektralen Bereich durchlässig (siehe Abb. 1.12 (rechts)). Dieser durchlässige Bereich wird als Kavitätsmode oder Stoppbandmode bezeichnet und lässt

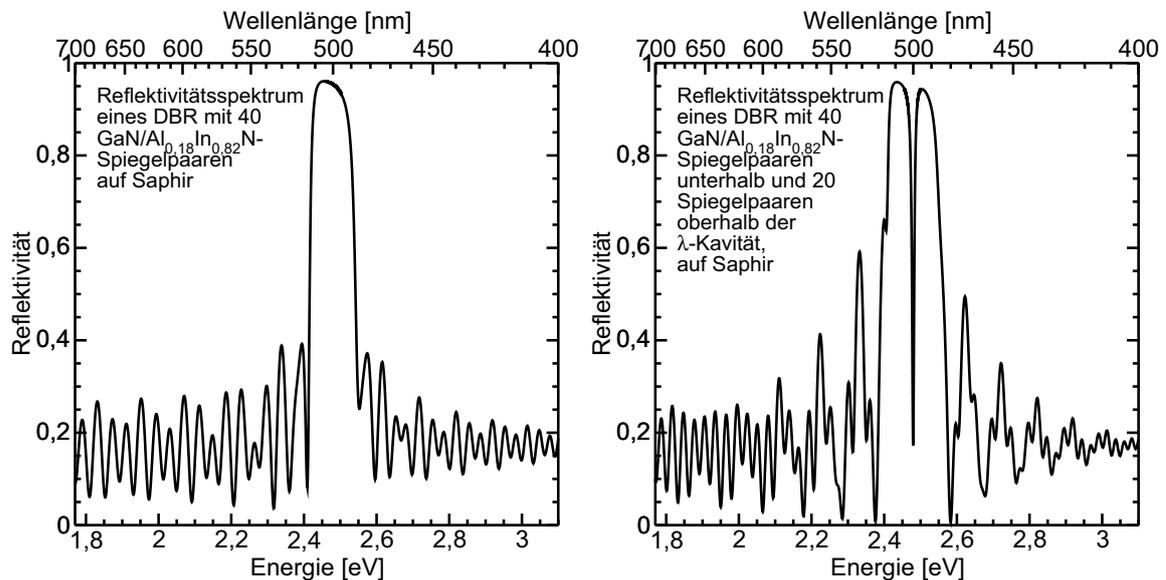


Abbildung 1.12: Links: Berechnetes Stoppband eines DBRs mit 40 Spiegelpaaren von GaN/Al_{0,18}In_{0,82}N mit jeweils 53 nm/57 nm Schichtdicke. Die wellenlängenabhängige Absorption der GaN- und AlInN-Schichten wurde berücksichtigt. Die maximale Reflektivität beträgt 96,1%. Rechts: Stoppband mit Kavitätsmode bei 500 nm einer λ_k -Kavität mit 40 Spiegelpaaren unterhalb und 20 Spiegelpaaren oberhalb der λ -Kavität, auf Saphir. Die maximale Reflektivität beträgt 95,9%, im Minimum weist die Kavitätsmode eine Reflektivität von 17,4% auf, die Güte beträgt nach Formel 1.31 $Q = 437$. Die Spektren wurden von Heiko Dartsch berechnet.

sich durch die Güte Q qualitativ kennzeichnen:

$$Q = \frac{E}{\Delta E}. \quad (1.31)$$

Hierbei ist E die Energie der entsprechenden Wellenlänge und ΔE die Halbwertsbreite der Kavitätsmode. Mit Hilfe der Güte lässt sich der Purcell-Faktor F_P [Pur46] bestimmen, welcher die Erhöhung der spontanen Emission, z.B. eines Quantenpunkts, senkrecht aus der Kavität beschreibt:

$$F_P = \frac{3}{4\pi^2} \left(\frac{\lambda_k}{n} \right)^3 \left(\frac{Q}{V} \right) \quad (1.32)$$

Hierbei ist V das Modenvolumen. Ein geringeres Modenvolumen erhöht den Purcell-Faktor. Dies ist u.a. ein Grund für die Präparation von Mikrokavitäten [SLG⁺08], d.h. Säulen mit einem Durchmesser von wenigen hundert Nanometern in der Größenordnung der Lichtwellenlänge. In der Regel kommt es bei der Präparation der Säulen zur Ionenschädigung der Seitenwände [LSG⁺05], wodurch der Durchmesser nicht beliebig klein gewählt werden kann. Erhöhte spontane Emission durch den Purcell-Effekt wurde an diesem Institut an II-VI-basierten Mikrokavitäten mit CdSe Quantenpunkten gezeigt [LKS⁺06].

Zur Realisierung eines Einzel-Photonen-Emitters [JOT09, TJC⁺10] oder eines Einzel-Photonen-Lasers [RGGJ10] befindet sich idealerweise ein einzelner Quantenpunkt in der Kavität, welcher mit der gleichen Wellenlänge der Kavitätsmode emittiert. Die Fortschritte des Wachstums von InGaN Quantenpunkten in Kavitäten mit GaN/AlInN-DBR-Strukturen werden in Abschnitt 5.3 besprochen.

2 Methoden zur Herstellung und Charakterisierung von InGaN

In diesem Kapitel werden die wesentlichen technischen Anlagen und Geräte vorgestellt und erläutert, mit denen das Wachstum und die Charakterisierung der Nitrid-basierten Strukturen durchgeführt wurden.

2.1 Metallorganische Gasphasenepitaxie

Die Anlage für die metallorganische Gasphasenepitaxie (englisch: metalorganic vapour phase epitaxy, kurz: MOVPE ¹) besteht im Wesentlichen aus einem Gasliniensystem und dem Reaktor inklusive Heizsystem. Das Gasliniensystem liefert die benötigten Gase, im Reaktor vollzieht sich das epitaktische Kristallwachstum von AlInGaN. Der wesentliche Aufbau einer MOVPE ist in Abb. 2.1 dargestellt und wird im Folgenden erläutert.

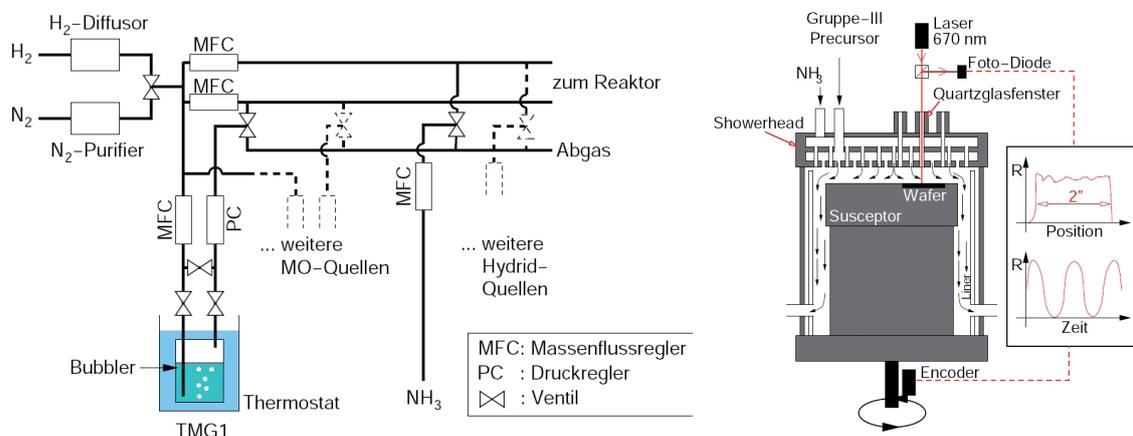


Abbildung 2.1: Gassystem (links) und Reaktor (rechts) einer MOVPE. Die Abbildungen stammen aus [Fig03].

In der MOVPE liegen die Ausgangsmaterialien nicht in atomarer oder elementarer Form vor, sondern befinden sich in einer chemischen Verbindung. Die Atome der Gruppe-III-Metalle Indium, Gallium oder Aluminium sind dabei üblicherweise an drei Methylketten gebunden. Das Ausgangsmaterial für Indium ist das Trimethylindium (TMI), für Gallium das Trimethylgallium (TMG) und für Aluminium das Trimethylaluminium (TMA). Die chemischen Formeln dieser Moleküle lauten: (CH₃)₃In, (CH₃)₃Ga

¹Gängig ist auch die Bezeichnung MOCVD (englisch: metalorganic chemical vapour deposition)

und $(\text{CH}_3)_3\text{Al}$. Die Schmelzpunkte für TMI, TMG und TMA sind in Tab. 2.1 angegeben und zeigen, dass bei Raumtemperatur das TMA und das TMG eine Flüssigkeit sind, während das TMI ein Feststoff ist. Dies führt zu Problemen, die hier später noch diskutiert werden sollen.

	Schmelzpunkt [°C]	A	B
TMI	88	10,98	-3204
TMG	-15,8	8,07	-1703
TMA	15,4	8,224	-2134,83
Cp_2Mg	176	10,452	-3522

Tabelle 2.1: Materialspezifische Konstanten der Metallorganika (aus [Dow]). Die Parameter A und B dienen zur Berechnung des Sättigungsdampfdruckes nach Formel 2.2.

Die metallorganischen Ausgangsmaterialien werden in geschlossenen Metallbehältern (sogenannten Bubbler) gelagert. Die Bubbler befinden sich in einem temperaturregelten Wasser- bzw. Alkoholbad. Der Transport der Metallorganika von den Bubbler zum Reaktor wird durch ein Trägergas gewährleistet, entweder Wasserstoff (H_2), Stickstoff (N_2) oder ein Gemisch aus beiden. Beim Durchfluss der Trägergase durch den Bubbler stellt sich im Trägergas ein Sättigungsdampfdruck des Metallorganikums ein. Das Trägergas-Metallorganikum-Gemisch wird dann weiter zum Reaktor befördert. Die Trägergasflüsse (f_T , Einheit: sccm, englisch: standard cubic centimeter per minute, Standardkubikcentimeter pro Minute) werden durch Massenflussregler (MFC, englisch: mass flow controller) eingestellt. Die Drücke in den Bubbler p_B werden ausgangsseitig durch Druckregler (PC, englisch: pressure controller) gesteuert. Der molare Fluss f_{mol} eines Metallorganikums lässt sich durch folgende Formel bestimmen:

$$f_{\text{mol}} = \frac{p_{\text{sat}}}{p_B - p_{\text{sat}}} \frac{f_T}{22400 \text{ cm}^3/\text{mol}} \quad (2.1)$$

Der Sättigungsdampfdruck p_{sat} lässt sich über die Antoine-Gleichung [Tho46] in Einheiten von Torr berechnen:

$$p_{\text{sat}} = 10^{A+B/T} \text{Torr} \quad (2.2)$$

Die Temperatur T (des Bubbler) ist in Einheiten von Kelvin anzugeben, A und B sind materialspezifische Konstanten. Die Parameter für die verwendeten Metallorganika sind in Tab. 2.1 aufgelistet.

Als Stickstoffquelle dient Ammoniak (NH_3). Zur n-Dotierung von GaN wird das vierwertige Silizium verwendet. Der Ausgangsstoff ist hierbei Silan (SiH_4), welcher in einer Konzentration von 100 ppm in H_2 vorliegt. Das zweiwertige Magnesium wird zur p-Dotierung von GaN verwendet und liegt als Ausgangsstoff in Form des Metallorganikums Bis(cyclopentadienyl)magnesium (Cp_2Mg) vor. Es hat die chemische Formel $(\text{C}_5\text{H}_5)_2\text{Mg}$ und wird genauso wie die anderen Metallorganika in Bubbler gelagert. Die wesentlichen Parameter dieses Stoffes bezüglich Sättigungsdampfdruck finden sich in Tab. 2.1. Auch das Cp_2Mg ist wie das TMI bei Raumtemperatur ein Feststoff. Das NH_3 und SiH_4 sind gasförmig und brauchen daher kein Trägergas für den Weitertransport.

Die Metallorganika und das NH_3 werden bis in den Reaktor hinein in getrennten Leitungen befördert, um chemische Vorreaktionen der Gase zu verhindern [ZZJ⁺06]. Der Reaktorraum besteht aus einem Duschkopf (englisch: showerhead) in dem die Gase

durch viele kleine Öffnungen in den Reaktorraum strömen können. Etwa 1 cm unterhalb des Duschkopfs befindet sich der Suszeptor, der Vertiefungen enthält, in welche die Probe/der Wafer eingesetzt werden kann. Unterhalb des Suszeptors befindet sich eine Wolframdraht-Widerstandsheizung, mit der die Probe auf bis zu 1100 °C aufgeheizt werden kann. Der Suszeptor besteht aus Siliziumcarbid beschichteten Graphit, welches die vom Heizelement ausgehende Wärmestrahlung effizient aufnehmen kann. Bei ausreichenden Temperaturen spalten die Metallorganika und das NH_3 auf und es kann sich AlInGaN auf der Oberfläche der Probe abscheiden. Vollständige Dissoziation von TMI findet schon unterhalb von 400 °C statt. TMG dissoziiert komplett unter N_2 -Atmosphäre oberhalb von ca. 540 °C, unter H_2 -Atmosphäre reduziert sich die Temperatur auf etwa 480 °C [Str99]. Die Dissoziation von NH_3 ist ein sehr kritischer Parameter welches das Wachstum wesentlich beeinflussen kann. Sie wurde im Rahmen der thermodynamischen Analyse in Abschnitt 1.2 diskutiert.

Der theoretische Fluss eines Metallorganikum kann mit Hilfe der Formeln 2.1 und 2.2 berechnet werden. Jedoch kann es im praktischen Betrieb zu Abweichungen kommen. TMG und TMA sind im Lagerzustand flüssig, so dass sich bei einem Trägergasdurchfluss schnell der Sättigungsdampfdruck einstellen kann. Das TMI dagegen

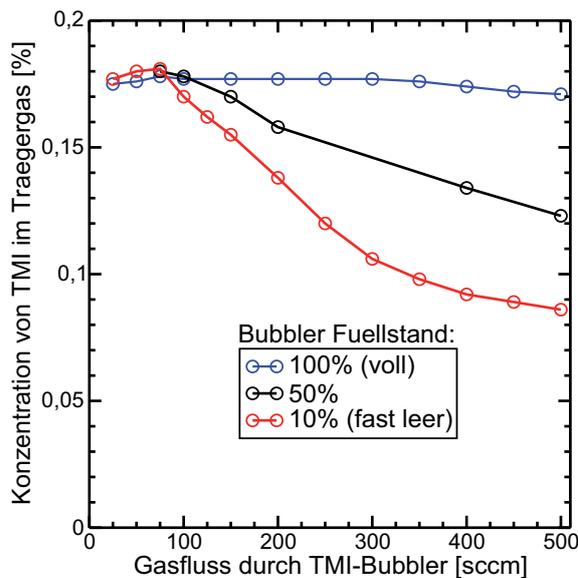


Abbildung 2.2: Die TMI-Konzentration im Trägergas aufgetragen gegen die Durchflussgeschwindigkeit für unterschiedliche Füllstände des Bubblers.

ist ein granulatformiger Feststoff. In Abb. 2.2 ist die wesentliche Problematik dargestellt. Die TMI-Konzentration im Trägergas ist gegen die Durchflussgeschwindigkeit für unterschiedliche Füllstände des Bubblers aufgetragen. Die TMI-Konzentration ist mit dem im Gasliniensystem der MOVPE befindlichen Gerät "Epison III" über Messungen der Schallgeschwindigkeit im Gas bestimmt worden. Es ist zu erkennen, dass der Sättigungsdampfdruck in einem neuen Bubbler im wesentlichen unabhängig von der Durchflussgeschwindigkeit ist. Ist der Bubbleinhalt jedoch schon zu 50 % verbraucht, so sinkt die Konzentration ab einem Durchfluss von 100 sccm stetig ab. Bei einem Bubblerinhalt von 10 % ist dieser Effekt verstärkt und bei einem maximalen Durchfluss von 500 sccm ist die TMI-Konzentration bezogen auf niedrige Flüsse auf den halben Wert abgesunken.

Die Behebung des Problems ist in der MOVPE-Steuerungssoftware integriert: der Ist-Konzentrationswert wird mit dem Soll-Konzentrationswert verglichen und bei Abweichung wird der Trägergasdurchfluss nachgeregelt. Damit wird erreicht, dass der molare Fluss an TMI konstant gehalten werden kann.

Das Wachstum in der MOVPE kann *in-situ* mit der Laserreflektometrie kontrolliert werden. Hierbei strahlt ein roter 670 nm Laser durch ein optisches Sichtfenster senk-

recht auf die Probe (siehe Abb. 2.1 rechts). Es wird die Reflektivität des Lasers an der Probe gemessen. Über eine zeitabhängige Reflektivitätsmessung lässt sich u.a. die Wachstumsrate des Kristalls bestimmen, da es aufgrund von Reflexion von der Oberfläche und dem Saphir-GaN-Interface je nach GaN-Schichtdicke zu konstruktiver oder destruktiver Interferenz kommt. Ein Beispiel eines Reflektivitätssignals ist in Abb. 2.3 für das Wachstum einer GaN-Schicht gezeigt. Die periodischen Schwingungen des Signals spiegeln die Schichtdickeninterferenzen wider. Über die Periodendauer kann die Wachstumsrate und die Dicke der abgeschiedenen Schicht bestimmt werden, sofern Temperatur, temperaturabhängiger Brechungsindex und Wellenlänge des Reflektometrielasers bekannt sind. Das Signal kann in der Regel sehr gut mit einer Sinuskurve angepasst werden. Unter Verwendung des 670 nm Lasers entspricht eine volle Periode einer Sinuskurve für GaN bei 1050 °C einer Schichtdicke von 137 nm. Weitere Details über die Laser-Reflektometrie, z.B. Analyse der Oberflächenrauigkeit, Inhomogenitäten über der Probe und Absorption werden ausführlich in der Dissertation von Tim Böttcher diskutiert [Bö02].

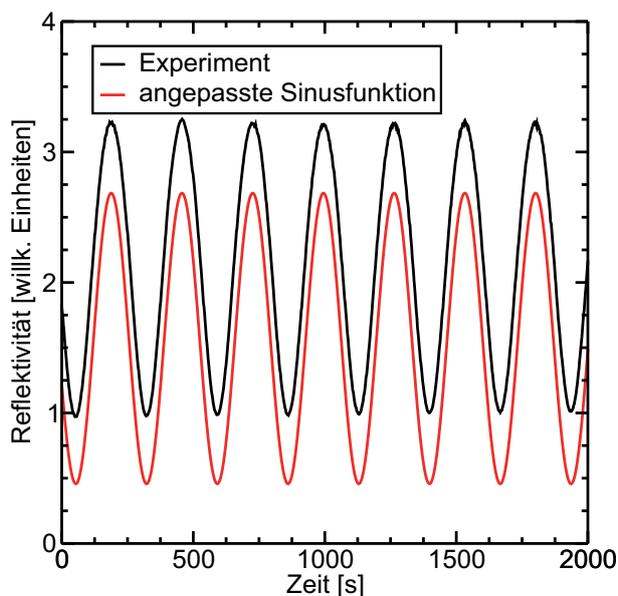


Abbildung 2.3: Zeitabhängiges Reflektivitätssignal beim Wachstum einer GaN-Schicht. Die den experimentellen Daten angepasste Sinuskurve wurde zur besseren Sichtbarkeit nach unten verschoben.

2.2 Charakterisierung

Die in der MOVPE hergestellten Proben wurden mit unterschiedlichen Methoden zur Charakterisierung untersucht, welche hier vorgestellt und erläutert werden.

2.2.1 Photolumineszenz

Bei einer Photolumineszenz-(PL-)Messung werden die Ladungsträger mit einem intensiven Laser ausreichender Energie über die Bandlücke hinweg angeregt. Die Elektronen können dabei tief ins Leitungsband und die Löcher tief ins Valenzband angeregt werden. Über Wechselwirkungen der Ladungsträger untereinander und mit den Rumpfatomen des Kristallgitters wird die überschüssige Energie abgegeben und die Elektronen bzw.

Löcher relaxieren ohne die Abgabe von Photonen zur Leitungsbandunterkante bzw. Valenzbandoberkante. Bei der Elektron-Loch-Rekombination kann es zur Aussendung eines Photons kommen, dessen Energie der Bandlücke des Materials entspricht.

Der prinzipielle Versuchsaufbau des PL-Messstands ist in Abb. 2.4 dargestellt. Der Laser strahlt über ein System von Ablenkspiegeln, Filtern und Linsen auf die Probe. Die von der Probe abgestrahlte PL wird über ein weiteres Linsensystem bzw. einer Glasfaser in das Spektrometer eingekoppelt. Es standen zwei Spektrometer zur Verfügung: ein Gitterspektrometer SPEX 270M mit einer Auflösung von $292 \mu\text{eV}$ bei 500 nm und einem Messbereich von 190 nm-1190 nm sowie ein Kompaktspektrometer der Firma Ocean Optics mit einer geringeren Auflösung von $1340 \mu\text{eV}$ bei 500 nm und einem Messbereich von 198 nm-1126 nm.

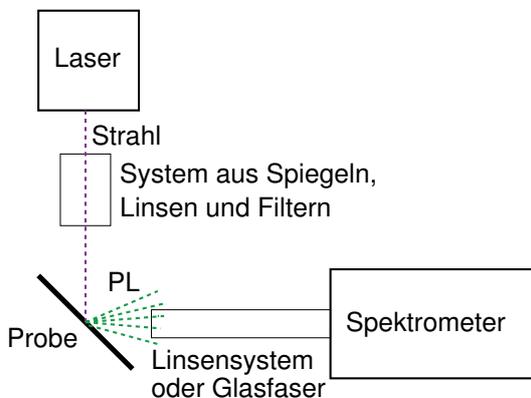


Abbildung 2.4: Prinzipieller Aufbau des PL-Messstands.

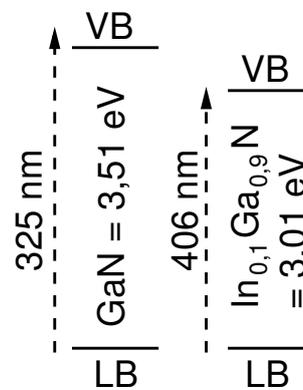


Abbildung 2.5: Optische Anregung mit unterschiedlichen Wellenlängen.

Zwei unterschiedliche Anregungslaser wurden für die PL-Untersuchungen verwendet. Ein 325 nm HeCd Gaslaser und eine 406 nm InGaN Laserdiode standen zur Verfügung. Die entsprechenden Photonenenergien belaufen sich auf 3,815 eV für den Gaslaser und 3,054 eV für die Laserdiode. Das bedeutet, dass nur der HeCd Gaslaser Ladungsträger im GaN anregen kann, da die Bandlücke 3,51 eV beträgt. Die Laserdiode kann nur Ladungsträger im InGaN anregen, wenn der InN-Gehalt ausreichend (mehr als etwa 10 %) und somit die Bandlückenenergie unterhalb von 3,054 eV ist (siehe Abb. 2.5).

GaN ist typischerweise ein defektreiches Material und neben einem bandkantennahen Übergang ist üblicherweise Defektlumineszenz detektierbar. In Abb. 2.6 sind zwei typische GaN-Spektren dargestellt. Die Si-dotierte GaN-Probe wurde bei 10 K mit dem 325 nm Gaslaser angeregt. Die bandkantennahe Lumineszenz bei etwa 3,5 eV ist die Rekombination eines an einem neutralen Donator gebundenen Exzitons und wird deshalb als D^0X bezeichnet. Bei etwa 3,27 eV tritt die Donator-Akzeptor-Paarrekombination (DAP) auf. Die flachen Donatorniveaus werden wahrscheinlich durch Si_{Ga}^2 und O_{N} erzeugt, während für die flachen Akzeptorniveaus vermutlich Si_{N} und C_{N} verantwortlich sind [RM05]. In äquidistanten Abständen von etwa 91 meV treten die longitudinal-optischen (LO) Phonoenrepliken auf. Bei etwa 2,2 eV ist die spektral sehr breite gelbe Störstellenlumineszenz detektierbar. Hierbei handelt es sich um optische Übergänge

² Si_{Ga} bedeutet, dass ein Siliziumatom ein Galliumgitteratom substituiert

von flachen Donatoren zu tiefen Donatoren [HKS⁺95] oder flachen Donatoren zu tiefen Akzeptoren [RM05]. Als Ursprung der gelben Lumineszenz werden Ga-Vakanzen und C_N-Verunreinigungen angenommen [XSM⁺10, NdW96, LJdW10]. Ein gemessenes Spektrum kann von denen in Abb. 2.6 gezeigten abweichen, wobei in der Regel die jeweiligen Intensitäten variieren. Es können weitere Linien und Banden im Spektrum auftauchen auf die hier aber nicht näher eingegangen werden soll; eine Übersicht findet sich in [RM05]. Bei Raumtemperatur ist das Spektrum leicht verändert. Die DAP inklusive LO-Phononenrepliken sind nur bis etwa 150 K detektierbar. Die niederenergetische gelbe Lumineszenz dominiert in der Regel das Spektrum, da noch bis zu 50% der Strahlung verglichen mit Tieftemperaturmessungen erhalten bleibt. Im hochenergetischen Bereich strahlt die bandkantenennahe Emission bei etwa 3,4 eV.

Bis auf die homoepitaktisch hergestellten Laserstrukturen aus Abschnitt 5.2 sind alle weiteren untersuchten Proben in dieser Arbeit heteroepitaktisch hergestellt, d.h. dass eine GaN-Schicht auf einem Saphirsubstrat abgeschieden wurde. Dadurch kommt es in PL-Untersuchungen zur Reflektion an diesem Materialübergang. Dies hat zur Folge, dass die reflektierte Strahlung je nach Wellenlänge mit der direkt abgestrahlten Strahlung konstruktiv oder destruktiv interferieren kann. Diese Interferenzen sind im Spektrum als Fabry-Perot-Oszillationen sichtbar. Die Fabry-Perot-Oszillationen überlagern sowohl die gelbe Störstellen- (siehe Oszillationen auf der gelben Lumineszenz des Raumtemperaturspektrums in Abb. 2.6) als auch die InGaN Quantenpunkt-Lumineszenz (siehe z.B. Abb. 3.9). Dies sollte stets bei der Interpretation der PL-Spektren berücksichtigt werden.

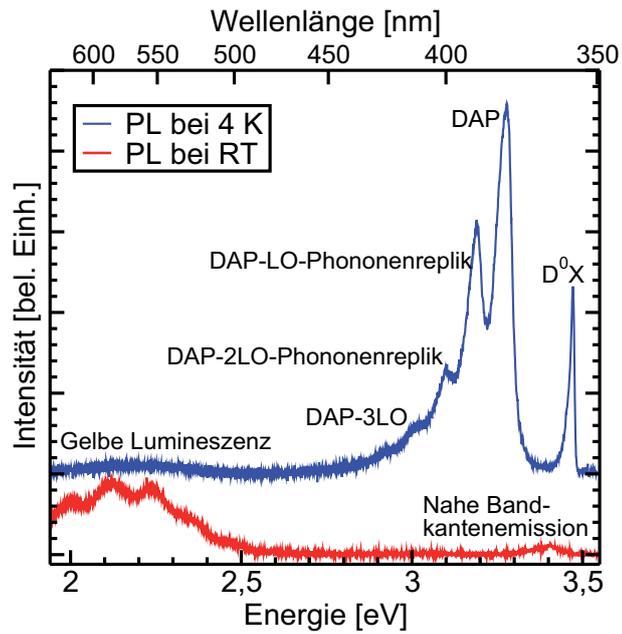


Abbildung 2.6: Typische PL-Spektren einer GaN-Probe aufgenommen bei 4 K (blauer Graph) und bei Raumtemperatur (roter Graph).

Mikro-Photolumineszenz

Bei der oben genannten PL-Untersuchungsmethode wird der Laserpunkt auf der Probe in der Regel durch eine Linse auf eine Fläche von 0,1-1 mm² fokussiert. Selbst bei einer sehr niedrigen InGaN Quantenpunktdichte von 10⁸ cm⁻² tragen zum Spektrum noch 10⁵ bis 10⁶ Quantenpunkte bei. Scharfe Emissionslinien, wie nach Abb. 1.10 erwartet wird, sind in einer derartigen Messung nicht auflösbar. Um dennoch scharfe Emissionslinien von einzelnen Quantenpunkten zu detektieren gibt es die Möglichkeit von mikro-(μ-)PL-Untersuchungen. Hierbei wird der Laserspotdurchmesser mit Hilfe

eines Mikroskopobjektives auf etwa $2\ \mu\text{m}$ reduziert, so dass nur eine geringe Anzahl von Quantenpunkten angeregt wird. Die scharfen Emissionslinien der Quantenpunkte werden von dem Mikroskopobjektiv eingesammelt und über die Optik (Linsen, Spiegel, Spektrometer) zur CCD (englisch: charged coupled device)-Kamera geleitet, wo sie spektral getrennt detektiert werden können. Die Präparation von Mesostrukturen mit einem definierten Durchmesser von wenigen hundert Nanometern oder die Herstellung nicht transparenter Masken mit definierten Öffnungen stellen weitere Möglichkeiten zur räumlichen Einschränkung des optisch aktiven Gebiets dar. Die Diplomarbeit von Tim Grieb [Gri10] befasst sich u.a. mit der Herstellung derartiger Mikro- bis Nanostrukturen.

Die μ -PL-Untersuchungen wurden in der Arbeitsgruppe für Halbleiteroptik am Institut für Festkörperphysik der Universität Bremen von Joachim Kalden und Moritz Seyfried durchgeführt. Eine sehr ausführliche Beschreibung des μ -PL Messstands und der Messmethode findet sich in der Dissertation von Joachim Kalden [Kal10].

2.2.2 Bauelementprozessierung und elektrische Charakterisierung

Bei der Elektrolumineszenz werden die Ladungsträger nicht wie bei der PL durch einen Laser optisch sondern elektrisch über eine Spannung angeregt. Ladungsträger werden über elektrische Kontakte in den Halbleiter injiziert, jeweils Elektronen in die n- und Löcher in die p-dotierte Schicht. Im p-n-Übergang befindet sich die aktive Zone meist in Form eines Quantentrog (Quantenfilm oder Quantenpunkt), in dem die Ladungsträger relaxieren können um anschließend in dem Elektron-Loch-Rekombinationsprozess Strahlung abzugeben. Die Strahlungsenergie ist dabei abhängig von den Eigenschaften des Quantentrog wie z.B. Größe der Bandlücke oder Breite des Trog.

Im elektrischen Betrieb eines Bauelementes ist der Halbleiter-Metall-Übergang ein kritischer Punkt. Dabei ist der Unterschied der Austrittsarbeiten von Elektronen im Metall φ_m und im Halbleiter φ_s relativ zur Lage der Fermienergie entscheidend. Beim Kontakt zwischen Metall und Halbleiter ist der Vakuumzustand das Referenzniveau und es muss zur Fermienergieanpassung kommen. Dies führt im Übergangsbereich zu einer Elektronenentleerung oder -ansammlung. Im Wesentlichen treten folgende Fälle auf, die auch in Abb. 2.7 dargestellt sind:

- $\varphi_m < \varphi_s$, n-dotierter Halbleiter:
Die Fermienergie im Metall ist dem Vakuumzustand näher als im Halbleiter. Aufgrund der Fermienergieanpassung strömen die Elektronen aus dem Metall in den Halbleiter, wo es im Übergangsbereich zur Elektronenansammlung und zur negativen Bandkantenkrümmung kommt. Elektronen aus dem Metall können ungehindert in den Halbleiter strömen, der Kontakt weist eine Ohmsche Charakteristik auf.
- $\varphi_m > \varphi_s$, n-dotierter Halbleiter:
Die Fermienergie im Halbleiter ist dem Vakuumzustand näher als im Metall. Dies führt zur Elektronenentleerung im übergangsnahen Halbleiterbereich. Es kommt zur positiven Krümmung der Bandlücke und es entsteht eine Barriere

zwischen Metall und Halbleiter, welche Schottky-Barriere genannt wird [Kit99]. Die Schottky-Barriere wirkt wie ein zusätzlicher Widerstand.

- $\varphi_m > \varphi_s$, p-dotierter Halbleiter:
Die Fermienergie im Halbleiter ist dem Vakuumzustand näher als im Metall. Die übergangsnahen Elektronen aus dem Valenzband des Halbleiters strömen in das Metall und es kommt zur Fermienergieanpassung. Die fehlenden Elektronen sind gleichbedeutend mit Löchern. Die positive Krümmung der Bandkanten führt zu einem widerstandsfreien Übergang.
- $\varphi_m < \varphi_s$, p-dotierter Halbleiter:
Die Fermienergie im Metall ist dem Vakuumzustand näher als im Halbleiter. Die überschüssigen Elektronen des Metalls würden sich mit den Löchern im Halbleiter neutralisieren. Es entsteht eine ladungsträgerfreie Zone, die Bandkantenkrümmung ist negativ. Eine Schottky-Barriere entsteht, die sich ungünstig auf die elektrischen Eigenschaften des Bauelementes auswirkt.

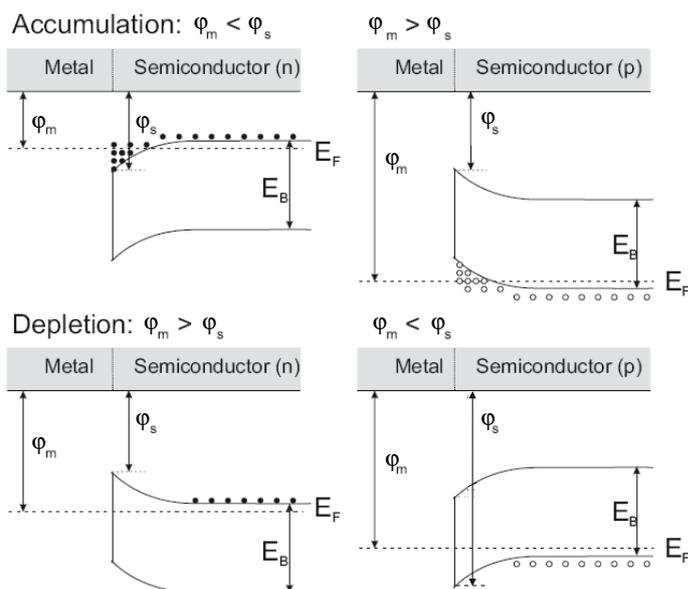


Abbildung 2.7: Bandverlauf im Metall-Halbleiter-Übergang. Graphik aus [Zel03]. φ_m und φ_s sind die Austrittsarbeiten im Metall und Halbleiter, E_F ist die Fermienergie und E_B ist die Bandlückenenergie. *Accumulation* steht für Ansammlung, *Depletion* bedeutet Entleerung.

Für einen ohmschen Verlauf der Strom-Spannungs-Charakteristik der Bauelemente wurden n-seitig ein Ti/Al (Schichtdicke: 5 nm/200 nm) und p-seitig ein Ni/Au (20 nm/200 nm) Kontakt gewählt. Das Titan und das Nickel wirken als Haftvermittler, da sich reine Aluminium- und Goldkontakte mechanisch leicht von der Halbleiteroberfläche lösen und damit für praktische Anwendungen nicht geeignet sind. Der Ni/Au-Kontakt bekommt erst nach einem Ausheizschritt für 3 min bei 500 °C unter Luft-Atmosphäre (20 % Sauerstoff, 80 % Stickstoff) eine ohmsche Kontaktcharakteristik [Den08]. Es bildet sich u.a. der intrinsische p-Halbleiter Nickeloxid, welcher die Eigenschaften des Metall-p-Halbleiter-Übergangs verbessert [LJNK07].

Prozessierung von Bauelementen

Die heteroepitaktisch hergestellten Schichten von GaN auf Saphir benötigen einen relativ aufwendigen Prozessablauf zur Bauelementherstellung, da das Saphirsubstrat nicht leitfähig ist. Ansonsten wäre es prinzipiell möglich, ohne den Einsatz von Photolithographie- und Ätztechnik, alleine durch Aufbringen von Metallkontakten und anschließendem Brechen oder Spalten funktionsfähige Bauelemente herzustellen. Aufgrund des isolierenden Saphirsubstrates ist es notwendig, die p- und n-Metallkontakte auf der GaN-Seite der Probe in den jeweiligen dotierten Regionen zu platzieren. Die prozesstechnischen Schritte sind im folgenden kurz aufgeführt. Eine ausführliche und detaillierte Beschreibung der Prozesstechnologie und der prozesstechnischen Anlagen findet sich in [Den08, Ebe10, Zel03, Tes07, Tes06].

- p-Aktivierung der Mg-Akzeptoren [GJW⁺96]:
Durch die Anwesenheit von Wasserstoff während des Wachstums der p-Schicht in der MOVPE kommt es zur Bildung eines Wasserstoff-Magnesium-Komplexes, wobei ein zusätzliches Elektron zur Verfügung gestellt und damit die p-Dotierung kompensiert wird. Die H₂-Mg-Bindungen werden mit einem Ausheizzschritt von 30 s bei 850 °C unter inerter N₂-Atmosphäre aufgebrochen, wonach bei weiteren fünfminütigen Ausheizen bei 600 °C der Wasserstoff aus dem Kristall diffundieren kann.
- Ni/Au-Metallisierung der p-Schicht:
Mit Hilfe des Elektronenstrahlverdampfers wird 20 nm Ni und 200 nm Au aufgebracht.
- Photolithographie:
In der Photolithographie wird Photolack auf die Probe aufgeschleudert. Anschließend wird der Photolack ausgeheizt. Auf einer Glasmaske befinden sich die Mikrostrukturen, die mit Belichtung und Entwicklung des Photolacks auf die Probe übertragen werden. Die mit Photolack bedeckten Bereiche sind gegen anschließende Trockenätzprozesse geschützt, da die Ätzrate des Photolacks in der Regel deutlich geringer ist verglichen mit Metall oder GaN. Weitere Details zur Photolithographie finden sich in [RK04].
- Ionenstrahlätzen:
Mit der Ionenstrahlätzanlage werden die ungeschützten Bereiche bis in die n-Schicht geätzt.
- Ti/Al-Metallisierung der n-Schicht:
Erneute Photolithographie mit anschließender Ti(5 nm)/Al(200 nm)-Metallisierung und abschließenden Lift-Off-Prozess hinterlässt den n-Metallkontakt auf der n-Schicht.
- Ausheizen des p-Metallkontaktes:
Thermisches Ausheizen des p-Metallkontaktes für 3 min bei 500 °C in Luft-Atmosphäre zur Beseitigung der Schottky-Barriere.

Als Stromquelle für die Aufzeichnung der Strom-Spannungskennlinien dienten im Dauerstrichbetrieb das *Keithley 2400* und im gepulsten Betrieb der *Agilent Pulse Generator 8114A*. Die Lichtleistung ist mit dem *ILX Lightwave OMM-6810B* gemessen worden, wobei die Elektrolumineszenz von unten durch das Saphir-Substrat detektiert wurde. Die Lichtleistungswerte entsprechen deshalb nicht der gesamten von der Probe abgestrahlten Lichtleistung, da selbst im Idealfall nur der untere Halbraum in den Detektor fallen kann. Zudem reduzieren interne Reflektionen, Absorption am Metallkontakt und Streuung an der rauen Saphirunterseite die messbare Lichtleistung.

2.2.3 Röntgendiffraktometrie

In der Röntgendiffraktometrie (kurz: XRD, aus dem Englischen für x-ray diffraction) wird die zu untersuchende Probe mit einer Röntgenquelle definierter Wellenlänge bestrahlt. Die Röntgenstrahlen werden an den Kristallebenen gebeugt. Konstruktive Interferenz tritt auf, wenn die Bragg-Bedingung erfüllt ist:

$$n\lambda = 2d\sin(\theta). \quad (2.3)$$

Hierbei ist $n\lambda$ ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge der einfallenden Strahlung, d der Gitterebenenabstand und θ der Winkel zwischen einfallender Strahlung und Gitterebene. Mit Hilfe der Ewaldkonstruktion lassen sich anschaulich die möglichen Beugungsreflexe ermitteln. Dazu wird das Kristallgitter im reziproken Raum dargestellt, wobei für die reziproken Gittervektoren $\vec{g}_i = 2\pi(\vec{a}_j \times \vec{a}_k) / (\vec{a}_i \cdot (\vec{a}_j \times \vec{a}_k))$, (i, j, k zyklisch, $a_{i,j,k}$ reale Gittervektoren) gilt. Die Länge $1/\lambda$ und Richtung k_{ein} des einfallenden Wellenvektors ist abhängig von der Wellenlänge λ der Strahlung und dem Winkel ω der Strahlung zur Oberfläche der Probe. In Abb. 2.8 (links) ist die Ewaldkonstruktion graphisch dargestellt. Der einfallende Wellenvektor zeigt auf den (000)-Reflex. Der ausfallende Wellenvektor k_{aus} spannt um den Vektorursprung des einfallenden Vektors k_{ein} die Ewaldkugel auf. Der Winkel zwischen einfallenden und ausfallenden Vektor beträgt 2θ . Nur wenn die reziproken Gitterpunkte auf dem Umkreis der Ewaldkugel liegen tritt konstruktive Interferenz auf und der Beugungsreflex kann im Experiment detektiert werden. Zusätzlich lässt sich in der Konstruktion erkennen, welche Beugungsreflexe möglich sind. Für $\omega = 0$ können keine Reflexe innerhalb der Ewaldkugel detektiert werden. Weiterhin können keine Reflexe gemessen werden, die außerhalb der Kugel mit einem Radius von $2/\lambda$ (bei $2\theta = \pi$) liegen.

Die Röntgendiffraktometriemessungen wurden mit der Anlage *Philips X'pert MRD* durchgeführt. Als Röntgenstrahlenquelle wird die Kupfer K_α -Linie mit einer Wellenlänge von $1,540553 \text{ \AA}$ genutzt. Die Lage der Probe zum Strahlengang ist in Abb. 2.8 (rechts) dargestellt.

Da das InN eine größere Gitterkonstante als das GaN hat, liegen alle InN-Reflexe näher am Ursprung als die jeweiligen GaN-Reflexe. Es kann z.B. mit einer 2θ - ω -Messung (Bedingung: $\Delta\omega = \Delta\theta$) um den sehr intensiven (002)-Reflex auf den InN-Gehalt in einer InGaN-Schicht geschlossen werden, wenn der Verspannungszustand der InGaN-Schicht bekannt ist. Über die Aufnahme einer reziproken Gitterkarte um den noch relativ intensiven (105)-Reflex lassen sich Rückschlüsse über den Verspannungsgrad einer InGaN-Schicht treffen. Eine durch das GaN-Substrat voll verspannte InGaN-Schicht befindet

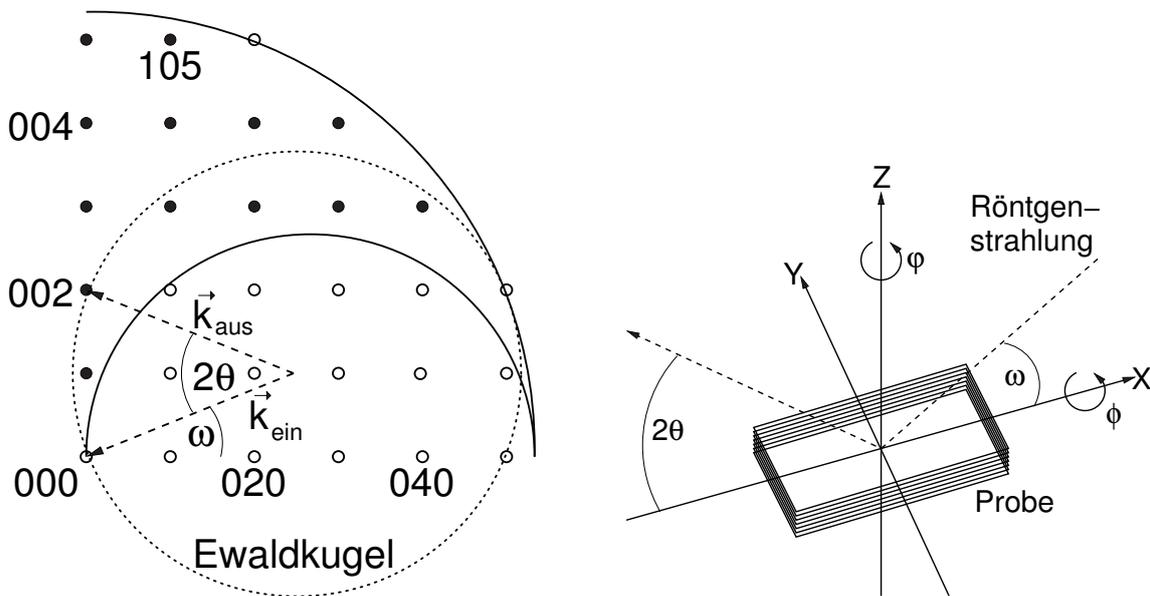


Abbildung 2.8: Beispiel einer Ewaldkonstruktion der möglichen Beugungsreflexe (links) und Definition der Winkel (rechts). Die messbaren Beugungsreflexe sind als schwarz ausgefüllte Punkte gekennzeichnet.

sich im reziproken Raum direkt unter dem GaN-(105)-Reflex, während eine relaxierte Schicht nahe der Verbindungsgeraden zwischen dem (105)- und dem (000)-Reflex liegt. Weitere Details zur hochauflösenden Röntgenbeugung an GaN finden sich ausführlich dargestellt in den Dissertationen von V. Kirchner [Kir00] und C. Roder [Rod07].

2.2.4 Rasterkraftmikroskopie

Mit der Rasterkraftmikroskopie (AFM, aus dem Englischen für *atomic force microscope*) können Oberflächenmorphologien einer Probe gemessen werden. Eine Messspitze auf der Unterseite eines Auslegers dient dabei als Sonde, welche die Probenoberfläche abrastert. Im Wesentlichen gibt es zwei unterschiedliche Messmethoden. Im Kontakt-Modus rastert die Messspitze die Probenoberfläche im direkten Kontakt ab. Dieser Modus ist nur bei harten Spitzen und harten Oberflächen geeignet, da es ansonsten zur Zerstörung von Spitze und Oberfläche kommen könnte. Eine zerstörungsfreie Messung lässt sich im Nicht-Kontakt-Modus realisieren. Hierbei rastert die Spitze in einem gewissen Abstand die Probenoberfläche ab. Der Abstand wird so eingestellt, dass anziehende Van-der-Waals-Kräfte auf die Messspitze wirken. Der Messabstand/Arbeitsbereich im Kontakt- und Nicht-Kontakt-Modus ist in Abb. 2.9 im Lennard-Jones-Potential V_{LJP} eingezeichnet. Es beschreibt die Wechselwirkung zwischen ungeladenen Atomen und besteht aus einem anziehenden und einem abstoßenden Term. Die Ursache des anziehenden Terms ist die van-der-Waals-Kraft und ist proportional zu $1/r^6$, wobei r der Abstand zwischen zwei Atomen ist. Der abstoßende Term wird durch den Überlapp der Atomorbitale verursacht und ist proportional zu $1/r^n$, wobei $n > 6$ gilt. Zusammen-

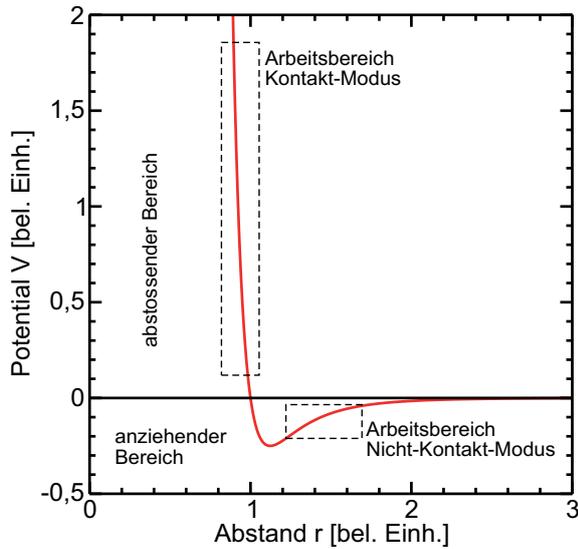


Abbildung 2.9: Lennard-Jones-Potential zwischen zwei Atomen. Bei geringen Abständen wirken abstoßende Coulomb-Kräfte und in einem gewissen Bereich dominiert die anziehende van-der-Waals-Kraft, welche den Arbeitsbereich eines AFM im Nicht-Kontakt-Modus beschreibt.

fassend lässt sich schreiben:

$$V_{\text{LJP}} \approx \frac{1}{r^n} - \frac{1}{r^6} \quad \text{mit } n > 6. \quad (2.4)$$

Der Abstandsbereich zwischen Probenoberfläche und Messspitze, in dem die anziehenden van-der-Waals-Kräfte dominieren ist der Arbeitsbereich des AFM im Nicht-Kontakt-Modus. Die anziehenden van-der-Waals-Kräfte sind jedoch sehr gering, so dass eine Verbiegung der Messspitze nur schwer messbar wäre. Deshalb wird die Spitze zu Eigenschwingungen mit einer bestimmten Amplitude leicht oberhalb der Resonanzfrequenz angeregt. Wirkt eine anziehende Kraft, so verschiebt sich das Resonanzspektrum zu niedrigeren Frequenzen, wodurch es zu einer Amplitudenabsenkung kommt (siehe Abb. 2.10). Die Amplitudenabsenkung kann mit Hilfe eines Lasers detektiert werden. Der schematische Aufbau eines AFM im Nicht-Kontakt-Modus ist in Abb. 2.11 dargestellt. Der Ausleger wird mit einer Frequenz leicht oberhalb der Resonanzfrequenz betrieben. Auf der Vorderseite des Auslegers befindet sich die Messspitze, die Rückseite

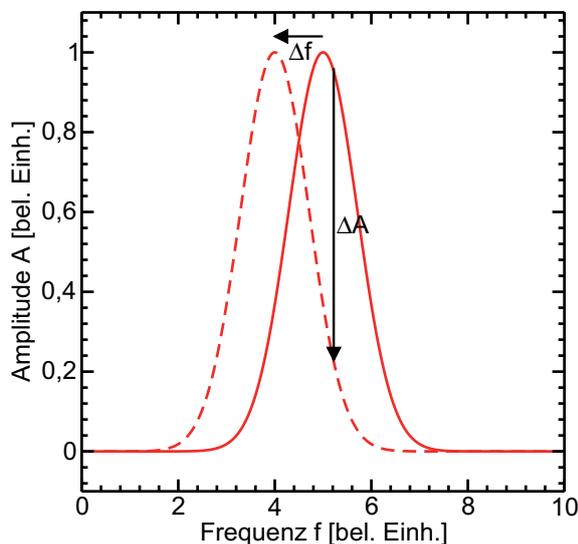


Abbildung 2.10: Die durchgezogene Linie beschreibt das Resonanzspektrum einer Messspitze. Wirkt eine anziehende Kraft auf die Spitze, so verschiebt sich die Resonanzfrequenz um Δf zu niedrigeren Frequenzen. Bei einer Messfrequenz oberhalb der Resonanzfrequenz kommt es somit zur Amplitudenabsenkung um ΔA .

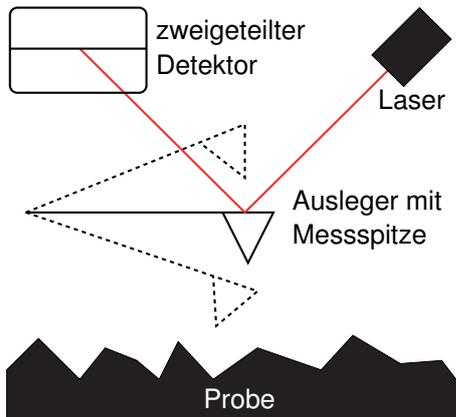


Abbildung 2.11: Schematischer Aufbau eines AFM. Der schwingende Ausleger ist unterhalb mit der Messspitze und oberhalb mit einer Reflektionsschicht versehen. Der Laser wird auf der Rückseite des Auslegers reflektiert und fällt in einen zweigeteilten Photodetektor. Die Änderung der Schwingungsamplitude wird mit dem Detektor gemessen. Beim Abrastern der Messspitze über die Probenoberfläche kann dann die Morphologie der Oberfläche abgebildet werden.

ist in der Regel mit einer Reflektionsschicht versehen. Die Entfernung der Messspitze des Auslegers zur Probenoberfläche wird so eingestellt um die anziehenden van-der-Waals-Kräfte auszunutzen. Ein Laserstrahl wird auf die Rückseite des Auslegers gelenkt und die Reflektion kann von einer zweigeteilten Photodiode detektiert werden. Rastert der Ausleger die Probenoberfläche ab, so ändert sich je nach Abstand Messspitze-Probenoberfläche die Resonanzfrequenz der Messspitze und somit die Amplitude. Über die Amplitudenänderung, die über den zweigeteilten Detektor aufgenommen wird, kann auf die Oberflächenmorphologie rückgeschlossen werden.

Das in der AG Hommel verwendete AFM ist das *Autoprobe CP* der Firma *Park Scientific* [The00]. Die maximale laterale Auflösung liegt laut Hersteller bei $0,0013 \text{ \AA}$, die vertikale Auflösung beträgt $0,009 \text{ \AA}$. Prinzipiell ist es demnach mit dem AFM möglich, atomare Auflösung zu erzielen. Der maximale vertikale Messbereich liegt je nach Wahl des Messkopfes bei $2,5 \text{ \mu m}$ oder $7,5 \text{ \mu m}$. Während einer Messung befindet sich die Spitze in einer Entfernung von einigen zehn bis einige hundert \AA zur Probenoberfläche. Die Amplitude beträgt mehrere zehn bis hundert \AA . Die Messspitzen sind von der Firma *Veeco* und bestehen aus mit Phosphor dotiertem Silizium. Die Resonanzfrequenz liegt je nach Art zwischen $60\text{-}80 \text{ kHz}$ und $240\text{-}300 \text{ kHz}$. Die Rückseite des Auslegers ist mit einer 50 nm dicken Reflektionsschicht aus Aluminium versehen. Die Auflösung eines AFM wird durch den Spitzenradius limitiert. Laut Hersteller liegt der Radius der Spitze bei etwa 8 nm , d.h. es kann keine atomare Auflösung in lateraler Richtung erreicht werden. Jedoch können Strukturen in lateraler Richtung im einstelligen Nanometerbereich und atomare Stufen in vertikaler Richtung aufgelöst werden.

2.2.5 Rasterelektronenmikroskopie

Die Auflösung eines Lichtmikroskops ist durch die Wellenlänge λ des Lichtes beschränkt. Strukturen, welche kleiner als die Lichtwellenlänge sind können nicht mehr aufgelöst werden. In einem Lichtmikroskop lässt sich der minimale noch aufzulösende Abstand x_{\min} zwischen zwei Objekten berechnen mit:

$$x_{\min} = \frac{\lambda}{n \cdot \sin(\varphi)}. \quad (2.5)$$

Der Nenner wird hierbei numerische Apertur genannt und beinhaltet den Brechungsindex n und den Sinus des halben Öffnungswinkel φ eines Lichtkegels ausgehend von einem Objektpunkt. Mit dem Radius r einer Objektivblende und der Brennweite f eines Objektivs gilt $\sin(\varphi) = r/f$. Die Auflösung lässt sich durch den Einsatz von Elektronen erhöhen, da sich die de-Broglie Wellenlänge eines Elektrons λ_e über

$$\lambda_e = \frac{h}{p} = \frac{h}{\sqrt{2m_e E}} = \frac{h}{\sqrt{2m_e eU}} \quad (2.6)$$

bestimmen lässt, wobei h das Plancksche Wirkungsquantum, p der Impuls, m_e die Masse, E die Energie, e die Ladung eines Elektrons und U die auf ein Elektron wirkende Beschleunigungsspannung ist. Bei einer Beschleunigungsspannung von 1 V ist $\lambda_e = 1,227$ nm. Dies wird in der Rasterelektronenmikroskopie (REM) ausgenutzt um Auflösung im Nanometer-Bereich zu erzielen. Der Aufbau eines REM ist dabei ähnlich dem eines Lichtmikroskops, wobei die Linsen durch Spulen ersetzt werden, die ein elektromagnetisches Feld zur Elektronenablenkung erzeugen. Ein Schema ist in Abb. 2.12 dargestellt. Bei der Feld-Elektronen-Emission werden freie Elektronen erzeugt. Dabei verursacht ein starkes elektrisches Feld einen Tunnelprozess, über den die Elektronen eine Wolframkristallspitze verlassen können. Über ein Gitter werden die Elektronen im Spannungsfeld beschleunigt. Ein System aus Spulen fokussiert und rastert den Elektronenstrahl über die zu untersuchende Probenoberfläche. Dabei werden Sekundärelektronen von der Oberfläche ausgesendet oder die Elektronen werden zurückgestreut. Über die Sekundärelektronen können Informationen über die Topographie der Probe erhalten werden während die Rückstreuelektronen Materialsensitiv sind. Die jeweiligen Elektronen können über einen Detektor aufgenommen werden.

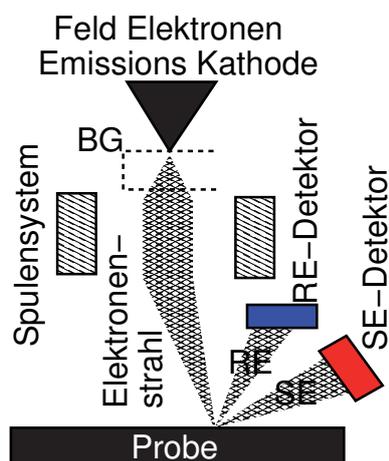


Abbildung 2.12: Schematischer Aufbau eines REM. Freie Elektronen werden über die Feld-Emission erzeugt und im Beschleunigungsgitter (BG) beschleunigt. Durch ein Spulensystem wird der Elektronenstrahl abgelenkt und auf die Probe fokussiert. Die Rückstreuelektronen (RE) und die Sekundärelektronen (SE) der Probe können mit den jeweiligen Detektoren aufgenommen werden.

2.2.6 Transmissionselektronenmikroskopie

Bei der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) werden die zu untersuchenden Proben mit hochenergetischen Elektronen durchstrahlt. Der Aufbau eines TEM ist in Abb. 2.13 dargestellt. Die freien Elektronen werden über ein heizbares Filament erzeugt und mit einer Spannung von 300 keV auf 78 % der Lichtgeschwindigkeit be-

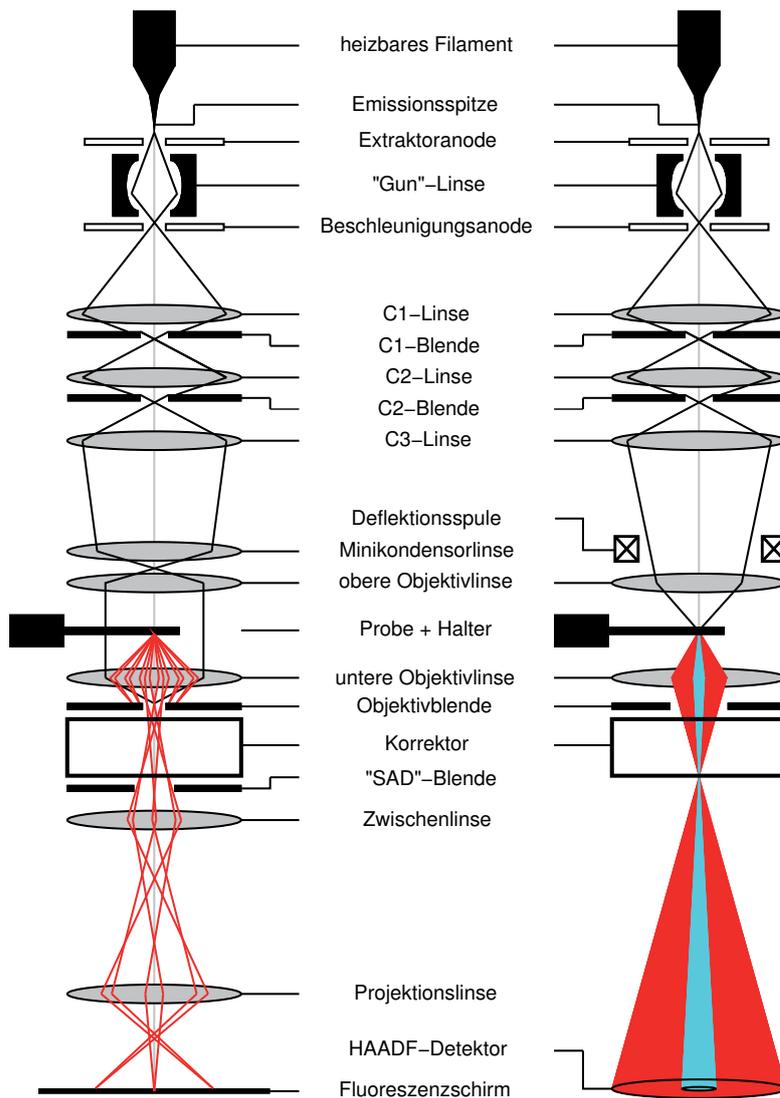


Abbildung 2.13: Dargestellt ist der Aufbau eines TEM. Es besteht im Wesentlichen aus Filament, Beschleunigungsanode und einem Linsensystem zur Parallelisierung oder Fokussierung des Elektronenstrahls auf die im Halter befindliche Probe. Die Abbildung der gebeugten Strahlen findet auf einem Detektor statt. Im linken Teilbild ist der Strahlengang des Beugungsmodus, im rechten Teilbild der Strahlengang im STEM-Modus dargestellt. Aus [Meh09].

schleunigt und haben eine de-Broglie-Wellenlänge³ von 2 pm. Über ein System von elektro-magnetischen Linsen werden sie auf die Probe gelenkt. Die Elektronen werden an den Gitteratomen u.a. gebeugt und gestreut. Hinter der Probe können die Elektronen von Detektionsschirmen (z.B. Fluoreszenzschirm oder CCD-Kamera) registriert werden. Mit Hilfe der Beugungsbilder und der Streuintensität können strukturelle Informationen der Proben erhalten werden.

Es gibt u.a. zwei Modi, in denen das TEM betrieben werden kann: das konventionelle TEM und das Raster-TEM (englisch: Scanning Transmission Electron Microscopy, STEM). Das konventionelle TEM ist im linken Teilbild von Abb. 2.13 dargestellt. Vor der Probe wird der Elektronenstrahl parallelisiert. Die Elektronen treten in Wechselwirkung mit den Gitterebenen der Probe und nach der Bragg-Bedingung entstehen charakteristische Beugungsreflexe. Hinter der Probe können einzelne Reflexe des Beugungsbilds mit einer Objektivblende selektiert werden. Mit der Position der Zwi-

³Zur Berechnung der de-Broglie-Wellenlänge im relativistischen Fall muss der Wurzelausdruck in Formel (2.6) noch um den Term e^2U^2/c^2 erweitert werden.

schenlinse wird festgelegt, ob das Mikroskop im Beugungs- oder Bildmodus arbeitet. Wird beim Beugungsmodus der Primärstrahl mit abgebildet, so spricht man von einer Hellfeldabbildung. Werden nur gebeugte Strahlen verwendet, so spricht man von einer Dunkelfeldabbildung. Die gebeugten Elektronen erzeugen auf dem Detektor (z.B. CCD oder Fluoreszenzschirm) ein für die Probe charakteristisches Beugungsbild.

Beim STEM wird der Elektronenstrahl mit der oberen Objektivlinse auf die Probe fokussiert, wobei der Durchmesser des Strahls wenige Å beträgt. Mit Hilfe von Deflektionsspulen lässt sich der Strahl ablenken, wodurch die Probe abgerastert werden kann. Die Elektronen treten u.a. in Wechselwirkung mit den Atomkernen und werden abhängig von der Kernladungszahl Z gestreut. Die hierbei unter einem weiten Winkel gestreuten Elektronen können mit einem “High Angular Annual Dark-Field” (HAADF)-Detektor registriert werden.

Die Intensität der gestreuten Elektronen am HAADF-Detektor hängt von der Kernladungszahl Z ab. Je höher die Kernladungszahl ist, umso stärker ist die Streuung. Dadurch ist eine Analyse der chemischen Zusammensetzung möglich. Für InGaN ist somit eine höhere Intensität bei konstanter Probendicke mit einem höheren InN-Gehalt in der InGaN-Schicht verbunden. Die Konzentrations-Probendicke-Matrix für InGaN ist in Abb. 2.14 dargestellt. Das Verfahren zur Berechnung dieser Matrix ist in [RMM⁺11] erläutert.

Im Gegensatz zu einem homogenen Quantenfilm ist eine starke Variation des InN-Gehalts in einer InGaN Quantenpunktschicht zu erwarten, welches durch eine TEM-Messung bestätigt werden kann. Um diese Konzentrationsunterschiede vom Rauschen zu unterscheiden, welches von inhomogener Probendicke, Ionen- und Elektronenschädigung an der Oberfläche herrührt, ist eine schonende und zerstörungsfreie Probenpräparation nötig. Diese wurde mit der Anlage zur Ionenstrahlfokussierung (gekoppelt mit dem REM) und anschließender Ausdünnung der Probe mit Niedrigenergie-Ionen am Gerät “Gentle Mill” durchgeführt. Weitere Informationen zur Probenpräparation finden sich in der Diplomarbeit von Stephanie Bley [Ble10].

Die in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden mit einem TITAN 80/300 TEM bei einer Beschleunigungsspannung von 300 keV untersucht. Weiterführende Informationen über das TEM bezüglich Technik, Theorie und Auswertung finden sich in [Meh09] und zusätzlich mit einer ausführlichen Analyse zu Stranski-Krastanov InGaN-Inseln in [Pre06].

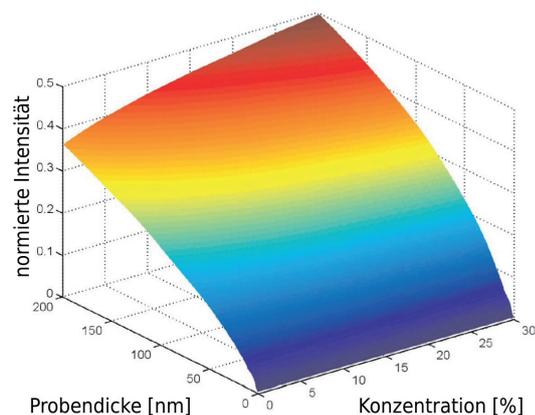


Abbildung 2.14: Die Konzentrations-Probendicke-Matrix für InGaN stellt die Elektronenintensität am HAADF-Detektor in Abhängigkeit von der Probendicke und der Konzentration dar. Der im STEM-Modus fokussierte Elektronenstrahl wechselwirkt mit den Atomkernen. Dabei ist die Streuintensität bei einem bestimmten Winkel abhängig von der Kernladungszahl Z . Aus [RMM⁺11].

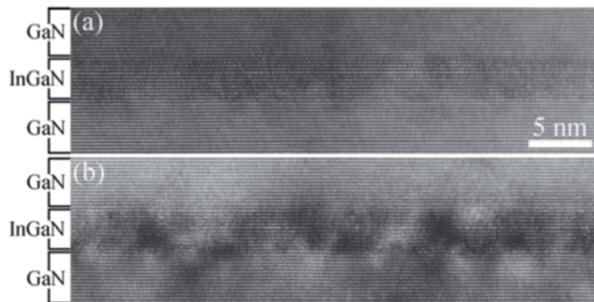


Abbildung 2.15: Hochauflösende TEM-Aufnahmen (aus [OBZ⁺10]) von der gleichen Probenstelle nach 20 s (oben) und nach mehrminütiger Bestrahlung (unten) mit dem Elektronenstrahl. Deutlich sind die Veränderung aufgrund der Elektronenschädigung im InGaN Quantenfilm im unteren Bild zu erkennen.

In der Literatur wird von InN-Fluktuation oder InN-Klustern berichtet, die künstlich durch den Elektronenstrahl des TEM erzeugt wurden [ORC⁺03, SKB⁺03]. Aufgrund der hohen Energie und Dosis der Elektronen kommt es zur Schädigung der Probe, die sich unter der Bestrahlung verändert. Diese Veränderungen sind in Abb. 2.15 anhand eines Vergleichs von zwei hochauflösenden TEM-Bildern, welche an gleicher Probenstelle nach unterschiedlichen Bestrahlungszeiten aufgenommen wurden, verdeutlicht. Die in den TEM-Bild verursachten Helligkeitsfluktuationen können fehlinterpretiert und fälschlich für quantenpunktartige Strukturen im Quantenfilm gehalten werden [OBZ⁺10, Str10].

Um diese künstlich erzeugten Artefakte zu vermeiden, bietet sich der STEM-Modus an [RMM⁺11]. In Abb. 2.16 sind drei STEM-Abbildungen dargestellt, welche nach unterschiedlicher Bestrahlungsdauer aufgenommen wurden. Es ist keine Schädigung der Schichten, insbesondere der InGaN Quantenfilme detektierbar. Als Grund für die zerstörungsfreie Analyse wird die geringere Elektronendosis beim STEM Verfahren im Gegensatz zum konventionellen TEM angenommen [RMM⁺11]. Es ist somit eine zerstörungsfreie Messung und Analyse von InGaN-Proben möglich.

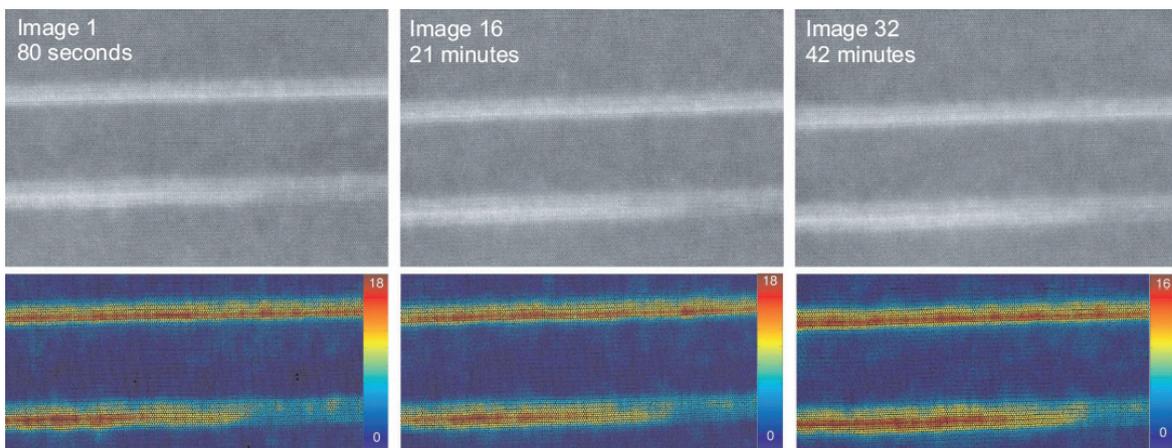


Abbildung 2.16: Vermeidung von Ionenschädigung durch STEM-Messungen (aus [RMM⁺11]). Dargestellt sind drei STEM-Abbildungen (obere Zeile) und entsprechend die farbkodierten Bilder (untere Zeile) für eine Bestrahlungsdauer von 80 s (links), 21 min (mitte) und 42 min (rechts). Es ist keine Veränderung der Probe zu erkennen.

3 Wachstum von InGaN Quantenpunkten

3.1 Stand der Forschung

Die Herstellung von Quantenpunkten kann durch unterschiedliche Prozesse realisiert werden. Das wohl bekannteste und in vielen Materialsystemen üblichste Verfahren ist der Stranski-Krastanov (S-K) Wachstumsmodus [SK39]. Hierbei verursacht die Verspannung in einer Schicht mit einer größeren Gitterkonstante als das darunterliegende Substrat ein dreidimensionales Inselwachstum oberhalb der kritischen Schichtdicke (siehe Abschn. 1.3). Dieses Verfahren zur Herstellung von Quantenpunktstrukturen wird erfolgreich z.B. im InAs/GaAs-, Ge/Si- und GaN/AlN-Materialsystem [LKR⁺93, EC90, WDF⁺98], sowie im II-VI-Materialsystem mit CdTe/ZnTe und CdSe/ZnSe eingesetzt [Mar05]. Sehr erfolgreich wurde in dieser Arbeitsgruppe an einer alternativen Methode zur Quantenpunktbildung mit Hilfe der “segregationsverstärkten Reorganisation von CdSe” geforscht [PLH⁺02] und deren Anwendung in Laserbauelementen gezeigt [KPKH01].

Desweiteren wurden hier in der AG Hommel intensiv S-K Quantenpunkte auf InGaN-Basis untersucht, dabei konnten homogene Inseln mit einer sehr hohen Dichte bis zu 10^{12} cm^{-2} realisiert werden [YEG⁺06]. Jedoch zeigten diese Strukturen keine Photolumineszenz-Aktivität im untersuchten Spektralbereich von 350-1100 nm. Ein Grund hierfür könnte zum einen eine nicht-strahlende Rekombination an Fehlversetzungen [PYK⁺06] sein, welche sich am InGaN-GaN-Übergang ausbilden. Zum anderen nimmt der InN-Anteil zur Inselspitze hin zu und erreicht Werte bis zu 80 % [Pre06], wodurch Emissionswellenlängen oberhalb von $1,2 \mu\text{m}$ zu erwarten wären, die nicht mehr mit den zur Verfügung stehenden Spektrometern zu detektieren sind (siehe Abschn. 2.2.1). Ein weiteres Problem könnte die Abscheidung der Deckschicht auf den S-K Quantenpunkten sein, d.h. der Prozess des Überwachsens. TEM-Untersuchungen an in der MBE hergestellten S-K Quantenpunkten zeigten deren Auflösung beim Überwachsen mit GaN [PYK⁺08]. In der MOVPE kann ein ähnlicher Auflösungsprozess erwartet werden, TEM-Untersuchungen an in der MOVPE hergestellten Proben mit überwachsenen S-K Quantenpunkten stehen jedoch noch aus.

Als eine der ersten konnte die Arakawa-Gruppe InGaN Quantenpunkte mit Hilfe des S-K-Modus realisieren [TSA99, Ara01]. Auch die Mitarbeiter um T. Wang von der Universität Sheffield in England berichten über das Wachstum von optisch aktiven InGaN S-K-Quantenpunkten. Jedoch konnte die Gruppe in μ -PL-Untersuchungen bisher noch keine scharfen Emissionslinien nachweisen [BWW⁺09], welches ein wichtiger Hinweis auf optisch aktive Quantenpunkte wäre. Auch die Gruppe von S.J. Park von dem *Gwangju Institute of Science and Technology* in Südkorea berichten über das Wachstum

von S-K Quantenpunkten [PKS⁺07, PPC10]. Trotz vielversprechender Ergebnisse fehlt auch hier der Nachweis von spektral scharfen Einzellinien in μ -PL-Untersuchungen.

Der Einsatz einer Antihafschicht unterhalb einer InGaN-Schicht kann ebenfalls zur Bildung von Quantenpunkten führen [HCC⁺07, TTC⁺04]. Als Antihafschicht wird SiN_x benutzt, welche auf das GaN-Substrat abgeschieden wird. Bei geeigneter Abscheidezeit ist die GaN-Oberfläche nur unvollständig bedeckt, so dass sich das InGaN in Quantenpunktform in den Zwischenbereichen ausbilden kann.

Die Gruppe um R.A. Oliver und C.J. Humphreys von der Universität Cambridge in England konnten zeigen, dass InGaN Quantenpunkte über die Erzeugung von metallischen Indiumtröpfchen hergestellt werden können [OBK⁺03, ROR⁺04]. Hierbei wird in der MOVPE eine InGaN-Schicht unter Stickstoffatmosphäre bei 700 °C für 30 s ausgeheizt. Die Schicht zersetzt sich, da kein Ammoniak zur Stabilisierung der Oberfläche eingesetzt wird. Der Stickstoff desorbiert aus dem Kristallverbund und metallische Indiumtröpfchen bilden sich auf der Oberfläche. Beim anschließenden Überwachsen mit GaN bilden sich aus den Tröpfchen InGaN Quantenpunkte. An derartigen Strukturen konnten mit Hilfe von μ -PL-Untersuchungen scharfe Emissionslinien nachgewiesen werden. Die Herstellung von Quantenpunkten über die Bildung von Indiumtröpfchen durch Abstellen des Gruppe-V-Gasflusses ist bereits erfolgreich im InAs- und InGaAs-Materialsystem angewendet worden [LKH⁺00, MWT⁺00].

Als weiterer Prozess zur Herstellung von Quantenpunkten kann die Phasenseparation dienen. In der Literatur wird von einer InGaN-Schicht mit eingebetteten Quantenpunkten berichtet, die während oder nach dem Wachstum eines Quantenfilms entstehen [CCC⁺05]. Als Grund für diese Konzentrationsfluktuationen wird die spinodale und binodale Entmischung genannt, wobei die Konzentrationen jedoch nicht den erwarteten Werten aus den entsprechenden Phasendiagrammen entsprechen. Dies könnte auf einen "eingefrorenen" Phasenseparationsprozess hinweisen, d.h. die Endprodukte der Entmischung werden nicht erreicht.

Optisch aktive InGaN Quantenpunkte wurden in dieser Arbeitsgruppe erstmals mit Hilfe der "Zwei-Stufen-Wachstumsmethode" hergestellt [YSL⁺06, YDT⁺06, SLG⁺06]. Diese Methode besteht aus dem Wachstum einer etwa 1,5 nm dicken sogenannten InGaN-Nukleationsschicht mit einem hohem InN-Anteil von nominell $\sim 72\%$ und einer nachfolgenden etwa 7 nm dicken InGaN-Formationsschicht mit einem relativ niedrigen InN-Anteil von nominell $\sim 21\%$. Beide Schichten werden bei relativ niedrigen Temperaturen von 700 °C abgeschieden. Höhere Quantenpunktdichten können bei Nukleationsschichttemperaturen von 650 °C erreicht werden.

Die Grundidee hinter diesem zweistufigen Prozess bestand darin, dass sich aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten der jeweiligen Schichten Quantenpunkte durch Verspannung im Übergangsbereich zwischen Nukleations- und Formationsschicht bilden, d.h. die Quantenpunkte entstehen erst nach dem Wachstum der Formationsschicht. Dieser Prozess erwies sich als schwer reproduzierbar. Jedoch bietet er gute Ansätze für das Wachstum von bedeckten Quantenpunkten.

In den nachfolgenden Abschnitten wird gezeigt, dass sich InGaN Quantenpunkte schon aus der Nukleationsschicht bilden, jedoch nicht durch einen Nukleationsprozess, sondern durch einen Phasenseparationsprozess. Der Indiumgehalt in der Gasphase beim Wachstum der Nukleationsschicht wurde mit nominell $\sim 72\%$ zu niedrig gewählt, um

in den Bereich von spinodaler Entmischung einer verspannten InGaN-Schicht (bezogen auf das GaN-Substrat) zu gelangen. Der Zweck der Formationsschicht besteht vorrangig darin, die Quantenpunkte bei niedrigen, d.h. zerstörungsfreien Temperaturen mit einer Schutzschicht zu überdecken, wodurch ein nachfolgendes Hochtemperaturwachstum ermöglicht wird. Das Angebot von Indium während des Wachstums der Formationsschicht ist nicht entscheidend und eher nachteilig, da es das Einschlusspotential der Ladungsträger im Quantenpunkt verringert und einen zusätzlichen Quantenfilm bildet, in welchem sich die Ladungsträger in zwei Dimensionen frei bewegen und somit leicht Defekte erreichen können.

Im Folgenden wird die Bildung von Quantenpunkten aufgrund spinodaler und binodaler Entmischung diskutiert. Die wesentlichen Ergebnisse dieses Kapitels sind auch in kompakter Form in der Veröffentlichung [TFA⁺11] nachzulesen.

3.2 Abscheidung und Evolution von dünnen InGaN-Schichten auf GaN

In Abb. 1.8 wurde gezeigt, dass sich der Bereich der InGaN-Mischungslücke unterhalb der Spinodalen stark reduziert, wenn die InGaN-Schicht durch das darunterliegende GaN verspannt ist. Nimmt die InGaN-Schicht lateral die Gitterkonstante von *c*-Ebenen-GaN an, so reduziert sich die kritische Temperatur auf 713 °C und verschiebt zu einem Wert von 0,8 des InN-Gehalts. Für Wachstumstemperaturen unterhalb dieser kritischen Temperatur und einem InN-Gehalt im Bereich von 0,8 ist demnach eine Phasenseparation zu erwarten. Im folgenden Abschnitt soll anhand von freiliegenden dünnen InGaN-Schichten, die auf GaN abgeschieden wurden, gezeigt werden, dass es zu einer Phasenseparation der InGaN-Schicht kommt und wie die Evolution dieser Phasenseparation aussieht.

Vier Proben wurden in der MOVPE hergestellt, bestehend jeweils aus einer InGaN-Schicht auf GaN. Das nominelle Wachstum der InGaN-Schicht ist für alle Proben identisch, nur die anschließende Abkühl- bzw. Ausheizprozedur wurde variiert. Die Schicht wurde bei 600 °C mit einem In/(In+Ga)-Gasphasenverhältnis von 82 % gewachsen. In Abb. 1.3 ist gezeigt, dass bei 600 °C das Gasphasenverhältnis auch dem Konzentrationsverhältnis im Kristall entspricht, d.h. eine In_{0,82}Ga_{0,18}N-Schicht wird abgeschieden. In Abb. 1.8 ist zu erkennen, dass dieser Parameter unterhalb der Spinodalen liegt, die für voll verspanntes InGaN auf GaN berechnet wurde, d.h. Phasenseparation wird erwartet. Mit $x = 0,82$ liegt die InGaN-Schicht nicht direkt in der Mitte der Mischungslücke, sondern ist leicht zu höheren InN-Gehalten verschoben. Dabei wird die Anordnung der entmischten Phasen gemäß der rechten beiden Spalten von Abb. 1.9 erwartet, d.h. eine meanderartige bzw. quantenpunktartige Struktur. Nach dem Wachstum der InGaN-Schicht durchlief jede Probe ein verändertes Zeit- oder Temperaturprofil, um die Evolution der Phasenseparation zu zeigen. Eine Übersicht der wesentlichen Parameter ist in Tab. 3.1 dargestellt.

Probe	Wachstumstemperatur der InGaN-Schicht	Gasphasenverhältnis In/(In+Ga)	anschließende Prozedur
A	600 °C	0,82	sofortiges abkühlen
B	600 °C	0,82	4 min bei 600 °C
C	600 °C	0,82	4 min-Rampe auf 700 °C
D	600 °C	0,82	4 min-Rampe auf 750 °C

Tabelle 3.1: Wachstumsparameter der InGaN-Schichten der Proben A, B, C und D.

REM-Aufnahmen

In Abb. 3.1 sind entsprechende REM-Bilder der Oberflächen der InGaN-Proben gezeigt. Alle Proben zeigen im Wesentlichen die gleichen Merkmale. Große inselartige Strukturen befinden sich auf der Oberfläche, die Zwischenbereiche sind mit meanderartigen Strukturen durchlaufen. Zusätzlich sind einige Defekte als schwarze Punkte sichtbar. Ursprung sind Schrauben- oder Stufenversetzungen, die sich meist senkrecht in Wachstumsrichtung durch den GaN-Kristall ausbreiten und an der Oberfläche als V-Defekte [WEA⁺98] oder kleine Gruben bzw. Löcher [CLY02] sichtbar sind. Die Defekte sollen hier nicht weiter diskutiert werden.

Probe A wurde sofort nach dem Wachstum der InGaN-Schicht auf Raumtemperatur abgekühlt. Auf der Oberfläche der Probe sind große Inseln sichtbar. Die Form und der Durchmesser variieren, die Inseln erscheinen pyramidenstumpfförmig mit einem ebenen Plateau. Jede Insel weist im Bild die gleiche Helligkeit auf, was darauf hindeutet, dass alle Inseln von ähnlicher Materialbeschaffenheit sind. Es gibt einige halboffene Inseln, was zu erkennen gibt, dass sich die Inseln um Defekte winden. Die Dichte der Inseln beträgt $\sim 2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$, der mittlere Durchmesser beträgt 50 nm. Eine derartige Inselbildung ist typisch für das Wachstum von InN-Inseln [CKY⁺08]. Anstelle eines zweidimensionalen Filmes bilden sich dreidimensionale Inseln nach dem Volmer-Weber-Wachstumsmodus aus [MPPK09]. Es kann daher angenommen werden, dass es sich bei den Inseln um InN-reiches InGaN-Material handelt. Die Zwischenbereiche erscheinen relativ homogen. Bei genauerem Hinsehen lässt sich eine sehr feine meanderartige Struktur erkennen, der Kontrast erscheint jedoch noch relativ schwach. Eine Dichte und ein mittlerer Durchmesser kann für diese zusammenhängenden Strukturen nur schwer angegeben werden.

Bei der Probe B wurde nach dem Wachstum der InGaN-Schicht die Temperatur von 600 °C für 4 min gehalten. Diese zeigt ähnliche Objekte auf der Oberfläche wie Probe A. Die meanderartige Struktur auf der Oberfläche ist stärker ausgeprägt und kontrastreicher. Die Strukturgröße der Meander nehmen in ihrer Größe in Vergleich zu Probe A zu. Neben den großen Inseln sind auch kleinere Inseln auf der Oberfläche zu finden, die auf Probe A nicht vorhanden sind.

Beide Inseltypen unterscheiden sich durch ihre Helligkeit, die kleinen Inseln sind wesentlich heller. Alle kleinen hellen Inseln haben eine sehr gleichmäßige runde Form, der Durchmesser beträgt etwa 25-30 nm und die Dichte ist $\sim 8 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$. Die auf dem Bild dunkelgrau erscheinenden Inseln haben ihren Durchmesser nicht verändert, während die Dichte auf $\sim 3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ im Vergleich zu Probe A leicht zugenommen

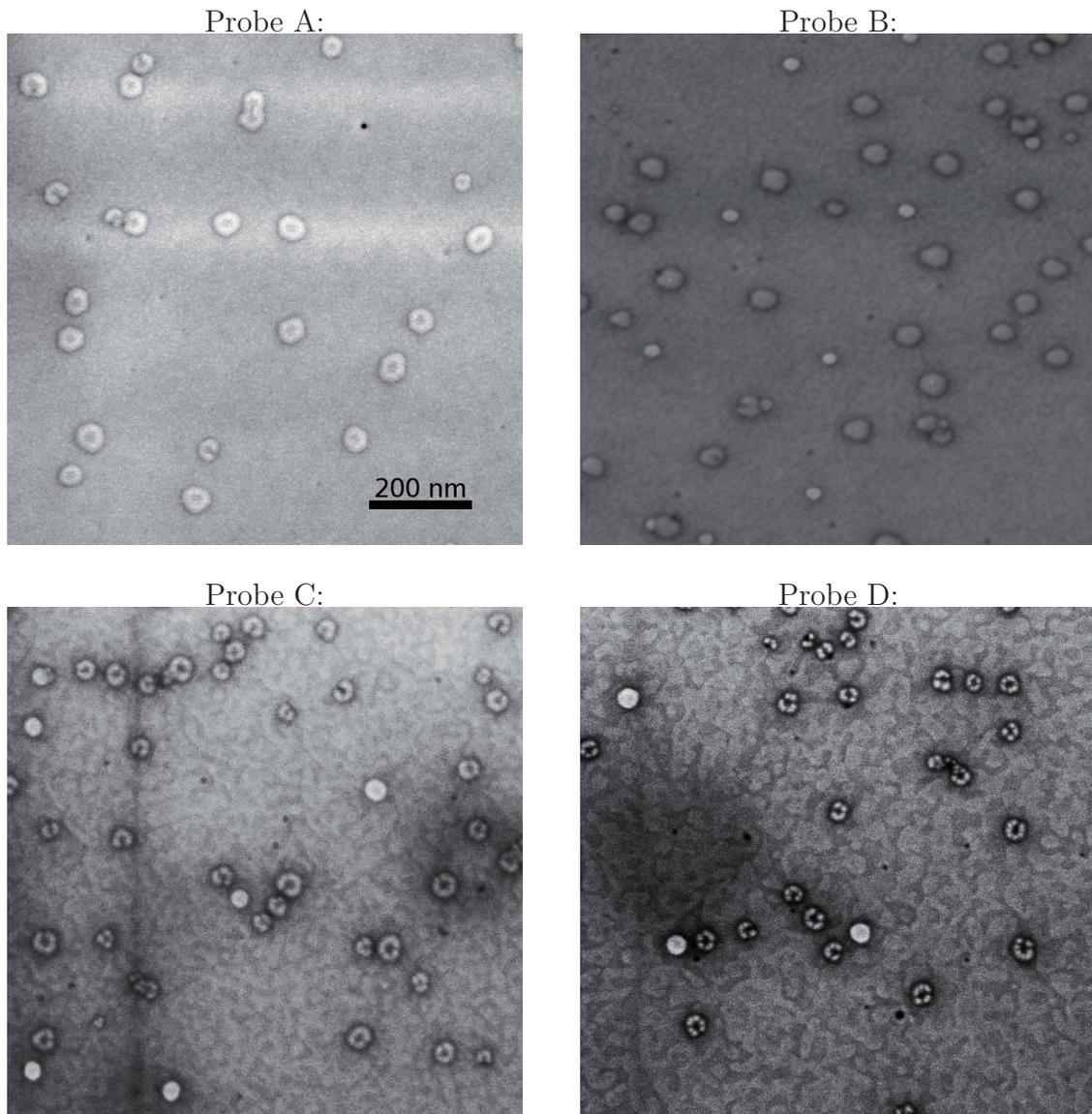


Abbildung 3.1: REM Bilder ($1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$) der Oberfläche der phasenseparierten InGaN-Schichten mit unterschiedlichen Ausheizprozeduren nach dem Wachstum der InGaN-Schicht (siehe Tab. 3.1). Diskussion der Bilder siehe Text. Die REM Bilder wurden von Torben Rohbeck und Timo Aschenbrenner aufgenommen.

hat. Bei einigen Inseln hat sich auf der Mitte ein weißer Punkt gebildet. Dies könnte darauf hinweisen, dass sich kleine Indiumtröpfchen auf den großen grauen Inseln bilden [GSE⁺07], wie sie schon in der Rastertunnelmikroskopie (kurz STM für englisch scanning tunneling microscopy) an ähnlichen Strukturen gefunden wurden (siehe links in Abb. 3.2).

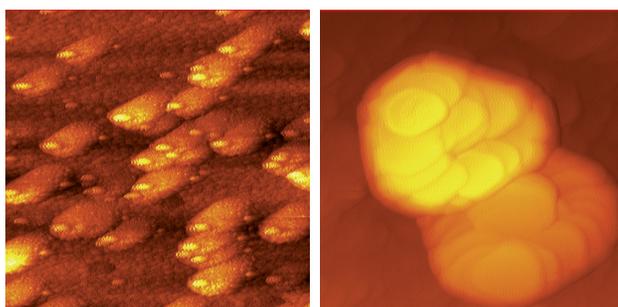


Abbildung 3.2: Vergleich von InGaN-Inseln von alternativen Proben, welche im STM untersucht wurden mit den Inseln aus Abb. 3.1. Links: $1\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$ STM-Bild von großen InGaN-Inseln, jeweils mit einem kleinen Indiumtröpfchen in der Mitte der Insel [GSE⁺07]. Dies weist darauf hin, dass es sich bei den kleinen weißen Punkten auf den grauen Inseln der Probe B (siehe Abb. 3.1) möglicherweise auch um kleine Indiumtröpfchen handelt. Rechts: $100\ \text{nm} \times 100\ \text{nm}$ STM-Bild von Inseln, die aus Plättchen aufgebaut ist, die sich spiralförmig um den zentralen Punkt übereinanderstapeln. Es wird vermutet, dass der zentrale Punkt aus einem Defekt besteht und sich die Insel um den Defekt bildet [GSE⁺06a, GSE⁺06b, GSE⁺06c]. Die STM-Messungen wurden von Dr. S. Gangopadhyay durchgeführt.

Die InGaN-Schicht der Probe C wurde nach dem Wachstum mit einer vier-minütigen Temperaturrampe auf $700\ ^\circ\text{C}$ behandelt und anschließend abgekühlt. Die meanderartigen Strukturen haben sich vergrößert und sind durch den starken Kontrast sehr gut zu erkennen. Die grauen Inseln weisen mittig einen dunklen Punkt auf. Der Durchmesser der Inseln reduziert sich leicht auf etwa $40\text{-}45\ \text{nm}$ und die Dichte bleibt unverändert. Möglicherweise bestehen diese Inseln aus spiralförmig angeordneten übereinanderliegenden Plättchen, wie sie in Abb. 3.2 (rechts) mit Hilfe von STM-Messungen an einer alternativen InGaN-Probe nachgewiesen werden konnten [GSE⁺06a, GSE⁺06b, GSE⁺06c]. Dafür reicht die Auflösung des REM allerdings nicht aus. Die hellen Inseln haben in Ihrer Größe zugenommen und weisen einen Durchmesser auf, der dem der grauen Inseln entspricht.

Bei Probe D wurde die InGaN-Schicht nach einer vier-minütigen Temperaturrampe auf $750\ ^\circ\text{C}$ abgekühlt. Die meanderartigen Strukturen haben sich weiter vergrößert und weisen einen verstärkten Kontrast auf. Die grauen Inseln mit dem mittigen dunklen Punkt sind in der Dichte unverändert, haben aber einen weiter verringerten Durchmesser von $30\text{-}40\ \text{nm}$. Aufgrund der hohen Temperatur kommt es zur Desorption und die Inseln schrumpfen, wobei die hellen Inseln in ihrer Größe unverändert bleiben.

Im Gegensatz zu den grauen Inseln, die bereits anfangs in relativ hoher Dichte bei Probe A vorhanden sind entstehen die hellen Inseln erst durch einen zusätzlichen Ausheizschritt. Die Bildung und das Wachstum dieser hellen Inseln läuft vergleichsweise langsam ab. Die Bildung beider Inseln ist typisch für das Wachstum von InN, welches

dem Volmer-Weber-Modus folgt. Die Inseln bestehen somit wahrscheinlich aus InN oder aus hoch InN-haltigen InGaN. Die Oberfläche zeigt ein typisches meanderartiges Muster, wie es nach einer Phasenseparation erwartet wird (vergleiche Abb. 1.9). Die Veränderung der Muster ist abhängig von der Diffusion, die wiederum Zeit- und Temperaturabhängig ist. Die Entwicklung der meanderartigen Strukturen von Probe A hin zu D ist im Einklang mit den berechneten Anordnungen der entmischten Phasen nach unterschiedlicher Anzahl von Zeitschritten in Abb. 1.9. Die REM-Bilder in Abb. 3.1 geben einen ersten Hinweis, dass Phasenseparation der InGaN-Schicht stattfindet. Weiterhin ist zu erkennen, dass die meanderartigen Strukturen nicht nur zusammenhängend sind, sondern dass sich auch separierte Bereiche gebildet haben, die als Quantenpunkte fungieren können.

HR(S)TEM-Aufnahmen

In Abb. 3.3 sind HRSTEM-Messungen der Probe C abgebildet. Eine der grauen Inseln ist mittig in Form eines Pyramidenstumpfes zu erkennen. Die Insel hat einen Durchmesser an der Basis von 40 nm, was in guter Übereinstimmung mit dem aus REM-Bildern bestimmten Durchmesser ist, und an der Spitze von etwa 20-25 nm. Die Höhe der Inseln beträgt etwa 16 nm. Daneben sind auf der Oberfläche vereinzelt helle flache Strukturen mit einer Höhe von etwa 1-1,5 nm zu erkennen, die mit weißen Pfeilen markiert sind. Die Zwischenbereiche sind frei. Der InN-Gehalt wurde mit Hilfe der Konzentrations-Probendicke-Matrix (siehe Abb. 2.14) bestimmt. Da nicht erkennbar ist, ob die Tiefe der Oberflächenstrukturen kleiner als die Probendicke ist, kann nur eine Untergrenze für den InN-Gehalt angegeben werden. Demnach liegt das Minimum für den InN-Gehalt der flachen Strukturen bei 10-18 %.

Bei den großen Inseln wurde der InN-Gehalt aus der Fouriertransformierten des aus HRSTEM-Messungen gewonnenen Bildes auf 84-87 % bestimmt, wobei der gleiche InN-Gehalt in den hellen runden sowie in den grauen pyramidenstumpffartigen Inseln gefunden wurde. In Abb. 3.4 sind HRSTEM-Bilder von den jeweiligen Inseln dargestellt. Die pyramidenstumpffartigen Inseln haben ein kraterförmiges Aussehen, in der Mitte ist die Höhe der Insel etwas reduziert. Dieses Tal erklärt möglicherweise den dunklen Fleck in den REM-Bildern (Abb. 3.1). Zentral unter der Insel befindet sich eine Fadenversetzung, welche senkrecht durch die GaN-Schicht verläuft. Die Versetzung ist vermutlich verantwortlich für den kraterförmigen Aufbau der Insel. Der Vergleich mit Abb. 3.2 führt zu der Annahme, dass die kraterförmigen Inseln aus spiralartig übereinandergestapelten Plättchen bestehen. Neben den unsymmetrisch-kraterförmigen Inseln befinden sich außerdem symmetrische runde Inseln auf der Oberfläche. Diese Inseln



Abbildung 3.3: HRSTEM-Messungen der Probe C. In der Mitte ist eine große Insel zu erkennen, die Pfeile weisen auf die hellen flachen Fluktuationen auf der Oberfläche hin. Die Messungen wurden von Prof. Andreas Rosenauer durchgeführt.

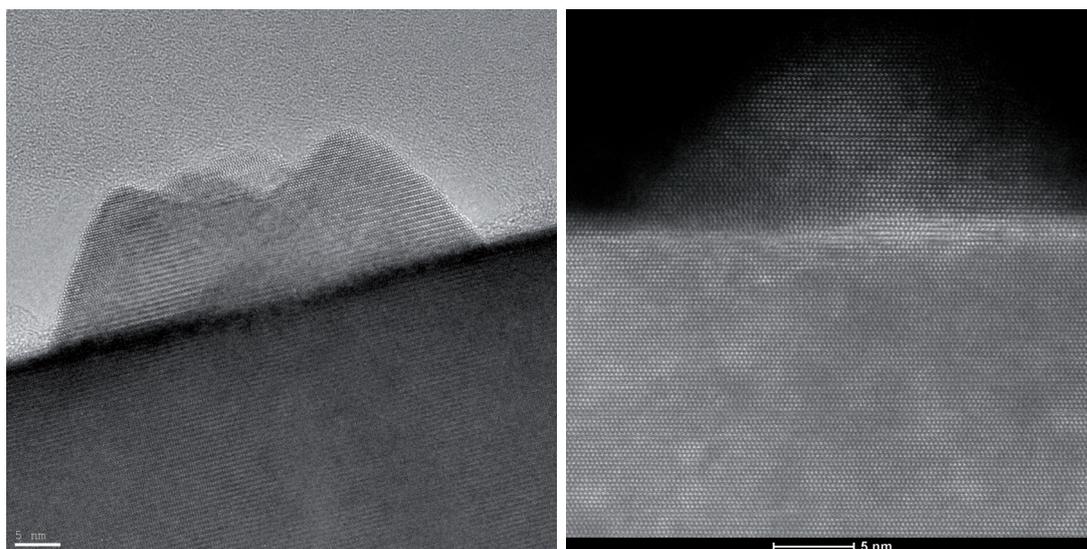


Abbildung 3.4: Unsymmetrische kraterförmige Inseln (links) und symmetrische runde Inseln (rechts). Die Messungen wurden von Prof. Andreas Rosenauer durchgeführt.

scheinen nicht auf einer Defektstelle zu liegen, was die symmetrische Form erklären könnte. Dieser Inseltyp wird den hellen Inseln, die in den REM-Bildern in Abb. 3.1 zu sehen sind, zugeordnet.

Röntgendiffraktometriemessungen

Um eine statistische Aussage über den InN-Gehalt in den großen Inseln zu erhalten, wurden Röntgenmessungen an den Proben A-D durchgeführt. Zusätzlich wurde eine Probe hergestellt, bei der nur TMI und kein TMG während des Wachstums der dünnen Schicht bei 600 °C angeboten wurde, so dass sich reines InN auf der Oberfläche gebildet hat. Nach dem Wachstum wurde die Probe sofort abgekühlt, ist somit bezogen auf die Wachstumsparameter bis auf den InN-Gehalt identisch mit Probe A. Das REM in Abb. 3.5 zeigt, dass sich Inseln wie bei Probe A gebildet haben. Es sind keine meanderartigen Strukturen zu erkennen.

Die Röntgendiffraktometriemessungen der Proben sind in Abb. 3.6 dargestellt. Es wurden $2\theta - \omega$ Messungen um den symmetrischen GaN und InN (0002)-Reflex aufgenom-

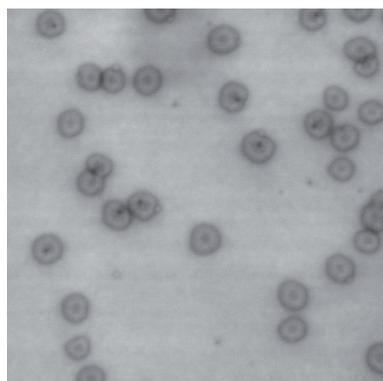


Abbildung 3.5: 1 $\mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ REM-Bild einer Probe mit Inseln aus reinem InN. Der Vergleich mit Probe A von Abb. 3.1 zeigt die Ähnlichkeiten der Strukturen auf der Oberfläche. Eine meanderartige Struktur ist auf der Probe nicht zu erkennen. Die Aufnahme wurde von Torben Rohbeck erstellt.

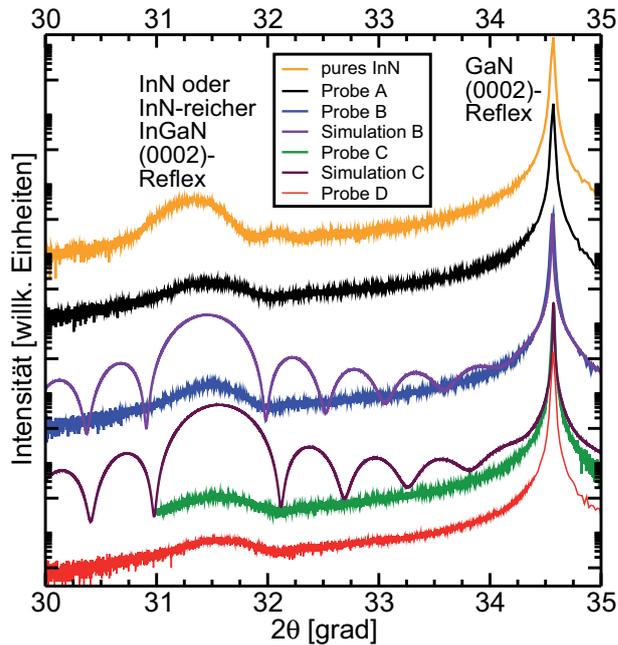


Abbildung 3.6: Röntgendiffraktometriespektren der Proben A-D und einer Probe, die mit einer reinen InN-Schicht bewachsen wurde. Die $2\theta - \omega$ Messungen wurden um den GaN und InN (0002)-Reflex aufgenommen. Für Simulation B bzw. C wurde eine 20 nm bzw. 16 nm dicke voll relaxierte InGaN-Schicht mit einem InN-Gehalt von 97,5 % bzw. 92,5 % angenommen.

men. Bei etwa $34,57^\circ$ ist der GaN-Peak des etwa $2\ \mu\text{m}$ dicken Substrates zu sehen. Zwischen 31° - 32° sind jeweils die Signale der InN-reichen InGaN bzw. InN-Inseln sichtbar. Eine InN-arme InGaN-Phase von den etwa 1-1,5 nm dicken meanderartigen Strukturen kann mit dieser Röntgendiffraktometrie nicht detektiert werden, da das entsprechende Streuvolumen zu gering ist. Die Probe mit den reinen InN-Inseln zeigt den Peak für das InN bei einer typischen Position von $31,25^\circ$. Eine für diese Probe passende Simulation lässt sich mit einer Gitterkonstante von $5,7075\ \text{\AA}$ erstellen, welche in guter Übereinstimmung mit in der Literatur häufig benutzten Werten für die InN-Gitterkonstante ist [VM03, BLRZ01]. Die durch die Röntgenmessung und Simulation bestimmte InN-Gitterkonstante wurde für die nachstehenden Simulationen benutzt. Die Proben A und B zeigen einen zur reinen InN-Probe leicht verschobenen InN-reichen InGaN-Peak. Die Position beider Peaks unterscheidet sich nicht, jedoch ist der Peak von Probe B etwas stärker ausgeprägt, was mit der Zunahme der Inseldichte zusammenhängt. Bei der Simulation für Probe B wurde eine Schichtdicke von 20 nm, eine vollständige Relaxation der Inseln und ein InN-Gehalt von 97,5 % angenommen. Der Unterschied in den Intensitäten zwischen Simulation und Messung liegt an der nur teilweisen Bedeckung der Oberfläche mit den InN-reichen Inseln. Die Oszillationen sind nicht sichtbar, da das Rauschen relativ stark ist. Der hohe gemessene InN-Gehalt ist wesentlich höher als das angebotene Gasphasenverhältnis von 82 %. Das bedeutet, dass das Wachstum der Inseln nicht direkt aus der Gasphase stattfinden kann. Ein Blick auf Abb. 1.8 zeigt, dass der InN-Gehalt fast exakt auf der Binodalen für voll relaxiertes InGaN bei 600°C liegt. Offenbar haben sich die Inseln erst nach einer Phasenseparation gebildet bzw. sind selber einen Phasenseparationsprozess durchlaufen. Für Probe C und D ist das InN-reiche InGaN-Signal hin zum GaN verschoben. Für die Simulation der Probe C wurde eine Schichtdicke von 16 nm, vollständige Relaxation und ein InN-Gehalt von 92,5 % angenommen. Grund für die reduzierte Schichtdicke und den reduzierten InN-Gehalt ist wahrscheinlich die Desorption von InN aus den In-

seln aufgrund der relativ hohen Temperaturen von 700 bzw. 750 °C, denen die Proben ausgesetzt waren.

Zur simultanen Messung der InN-reichen und InN-armen Phase wurden Synchrotron-Untersuchungen unter streifendem Einfall am ID01 am ESRF in Grenoble von Bojan Miljevic (Wissenschaftlicher Mitarbeiter des Karlsruher Institut für Technologie) und Dr. Stephan Figge durchgeführt. Durch den streifenden Einfall ist die Eindringtiefe des Synchrotronstrahls sehr stark reduziert und im Wesentlichen können Informationen über Oberflächenstrukturen gewonnen werden. Es wurde eine Probe mit vergleichbaren Parametern¹ wie die Proben A-D untersucht. Das Ergebnis der Untersuchungen mit dem Synchrotronstrahl mit einer Energie von 7,75 eV am (10-10)-Reflex unter streifenden Einfall ist in Abb. 3.7 dargestellt. Der Einfallswinkel betrug 0,25°, was einer Eindringtiefe von ca. 3 nm entspricht [MKT⁺10]. Der GaN-Reflex von den oberen

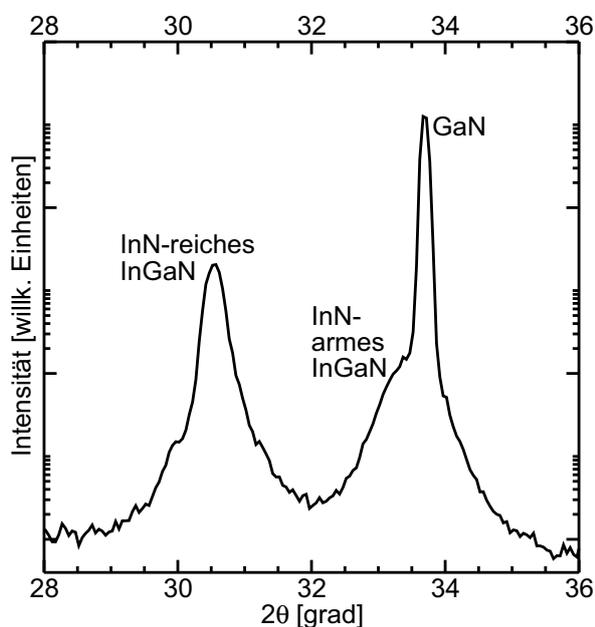


Abbildung 3.7: Röntgendiffraktometrie mit dem Synchrotronstrahl unter streifenden Einfall an einer Probe mit einer phasenseparierten InGaN-Schicht auf GaN. Neben dem GaN-Reflex sind Reflexe für InN-reiches und -armes InGaN im Spektrum vorhanden. Die Messungen wurden von Herrn Bojan Miljevic vom Karlsruhe Institute of Technology und von Dr. Stephan Figge durchgeführt.

Schichten des Substrates bei 33,7° und der Reflex der InN-reichen InGaN-Strukturen bei 30,5° ist zu erkennen. Da mit Hilfe des streifenden Einfalls nur oberflächennahe Informationen der Probe gewonnen werden, ist das Intensitätsverhältnis vom GaN- zum InN-reichen InGaN-Reflex verglichen mit den Röntgenspektren aus Abb. 3.6 wesentlich verringert. Zusätzlich ist am GaN-Reflex zu kleineren Winkeln eine Schulter zu erkennen, welche in den Röntgendiffraktometriemessungen in Abb. 3.6 nicht sichtbar war. Die Ursache für diese Schulter ist die dünne InGaN Quantenpunktschicht auf der Oberfläche. Aus dem Röntgenspektrum lässt sich auf eine InN-Konzentration von 89 % für die InN-reichen Inseln und 20 % für die InN-armen Quantenpunktbereiche schließen. Dies ist in guter Übereinstimmung mit den bisherigen und folgenden Ergebnissen. Weitere Informationen zu Synchrotronuntersuchungen an InGaN Quantenpunktproben finden sich in [Mil, MKT⁺].

¹Die Wachstumszeit der InGaN-Schicht betrug 8 s (anstatt 10 s wie bei den Proben A-D), nach dem Wachstum bei 600 °C wurde die Temperatur der Probe in 60 s auf 650 °C hochgeheizt und für 60 s gehalten.

PL-Messungen

Zur Untersuchung der optischen Eigenschaften wurden PL-Messungen an den Proben durchgeführt. Grundsätzlich ist von Oberflächenstrukturen keine PL zu erwarten, da Oberflächenzustände in der Bandlücke zur nichtstrahlenden Rekombination führen, wie es in Abb. 3.8 schematisch dargestellt ist.

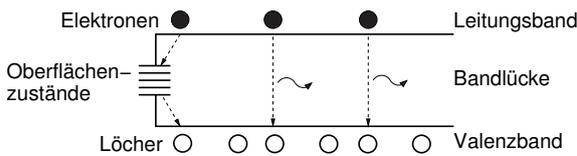


Abbildung 3.8: Die Oberflächenzustände eines Halbleiters liegen in der Regel in der Bandlücke, so dass es an der Oberfläche zur Relaxation über die Oberflächenzustände und somit zur nicht-strahlenden Rekombination kommt.

Das Nitrid-Materialsystem scheint von diesem Effekt jedoch ausgenommen zu sein und über PL von Oberflächenstrukturen wurde in der Literatur schon berichtet [WWP⁺07]. Die Gründe für dieses Phänomen sind nicht bekannt. Vermutlich gibt es einen Zusammenhang mit der hohen Effizienz der nitrid-basierten Bauelemente trotz hoher Defektdichte.

In Abb. 3.9 sind die PL-Spektren der Proben A-D abgebildet. Die optische Anregung wurde zum einen mit dem 325 nm He-Cd-Gaslaser und zum anderen mit der 406 nm InGaN-Laserdiode durchgeführt. Unter Anregung mit dem 406 nm Laser ist starke Lumineszenz von den Oberflächenstrukturen jeder Probe zu erkennen. Das Maximum der InGaN-Lumineszenz liegt bei etwa 515 nm für Probe A, verschiebt sich über Probe B und C zu höheren Energien und liegt für Probe D bei etwa 485 nm. Die Anregung mit dem 325 nm Laser ergibt die gleiche spektrale Verschiebung beim Vergleich der Proben. Ein präziser InN-Gehalt in den InGaN-Strukturen kann mit Hilfe von PL-Messungen nicht bestimmt werden, da Informationen über den Verspannungsgrad fehlen sowie nicht klar ist, wie hoch der Einfluss des QCSE oder des quantenmechanischen Größeneffekts ist. Vernachlässigt man diese Effekte jedoch, kann man mit Formel 1.2 und den Parametern aus Tab. 1.2 eine grobe Abschätzung für den InN-Gehalt durchführen. Eine $\text{In}_{0,22}\text{Ga}_{0,78}\text{N}$ -Schicht würde zu einer Emission um 500 nm führen, was einer Bandlückenenergie von 2,48 eV entspräche. Dieses Ergebnis ist konsistent mit den Ergebnissen aus den TEM- und Synchrotronuntersuchungen, welche zeigen, dass neben den InN-reichen Inseln auch eine InN-arme InGaN-Phase auf der Probe vorhanden ist. Der Ursprung der PL sind offensichtlich die meanderartigen Strukturen. Der Nachweis von zwei InGaN-Phasen unterstützt die Annahme, dass tatsächlich eine Phasenseparation stattgefunden hat.

Die spektrale Verschiebung zu höheren Energien von Probe A zu D kann mit einer nicht vollständig abgeschlossenen Phasenseparation erklärt werden. Die zeitliche Verlauf einer Phasenseparation ist in [OIK00] dargestellt. Es kann verglichen mit einer anfänglichen schnellen Phasenseparation relativ lange dauern, bis sich die Endprodukte bilden, welche bezogen auf die Konzentration auf der Binodalen liegen. Durch den Abkühlprozess können die Endprodukte nicht erreicht werden, der Phasenseparationsprozess wird "eingefroren". Durch die längere Ausheizzeit der Probe B oder die höheren Temperaturen für Probe C und D wird die Phasenseparation forciert.

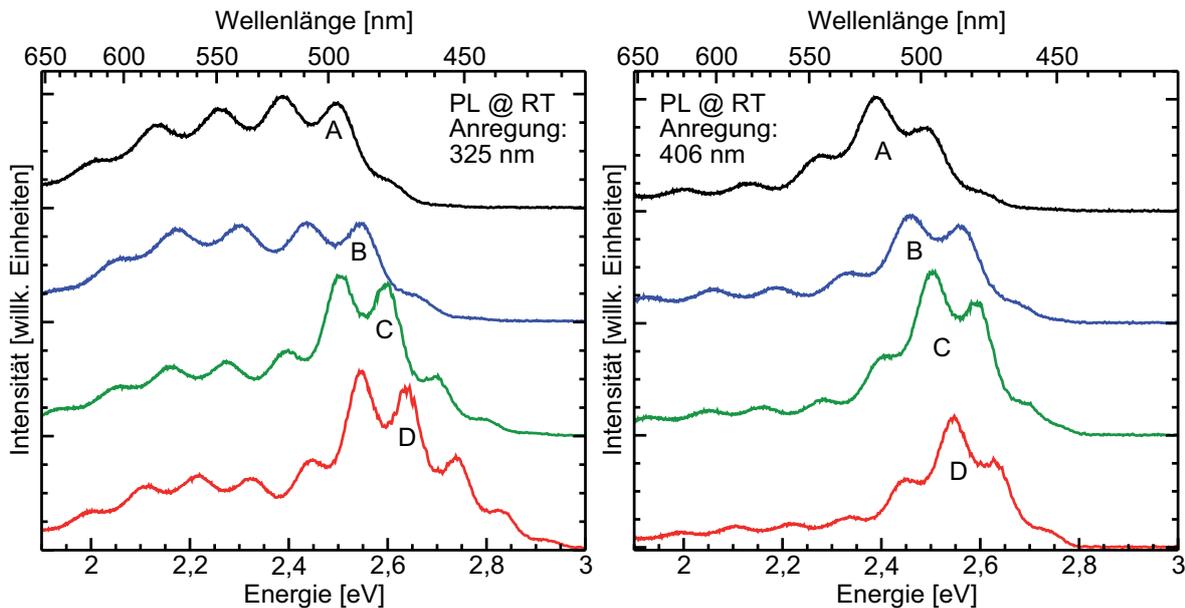


Abbildung 3.9: PL-Spektren der Proben A-D unter Anregung des 325 nm He-Cd-Gaslaser (links) und der 406 nm InGaN-Laserdiode (rechts). Im niederenergetischen Bereich ist die gelbe Störstellenlumineszenz sichtbar. Im höherenergetischen Bereich ist die InN-arme InGaN-Lumineszenz sichtbar. Die Spektren sind mit Fabry-Perot-Oszillationen überlagert.

Eine weitere Möglichkeit für die spektrale Blauverschiebung ist die Desorption von In oder InN aus dem Kristallverbund zurück in die Gasphase.

Ein quantenmechanischer Größeneffekt scheint für die spektrale Verschiebung der Proben nicht verantwortlich zu sein. In Abb. 3.1 erkennt man, dass die meanderartigen Oberflächenstrukturen von Probe A zu D in ihrer lateralen Größe zunehmen, d.h. die Proben müssten bei einem wirkungsvollen quantenmechanischen Größeneffekt zu niedrigeren Energien verschieben, was nicht der Fall ist.

Der Vergleich der PL-Spektren in Abb. 3.9 zeigt die unterschiedlichen Auswirkungen der beiden Anregungslaser. Bei Verwendung des 406 nm-Lasers ist die Intensität der InGaN-Lumineszenz relativ konstant. Hierbei werden die Ladungsträger in den InGaN-Strukturen direkt angeregt. In der unterliegenden GaN-Schicht können mit dem Laser prinzipiell keine Ladungsträger angeregt werden, da die Photonenenergie der Laserstrahlen unterhalb der Bandlückenenergie ist. Es ist lediglich die niederenergetische gelbe Störstellenlumineszenz des GaN sichtbar.

Die Spektren, die mit dem 325 nm-Laser angeregt werden, verhalten sich anders. Die InGaN-Lumineszenz von Probe A und B ist neben der gelben Störstellenlumineszenz nur als schwach ausgeprägte Schulter zu erkennen. Erst bei Probe C und D dominiert die InGaN-Lumineszenz das Spektrum. Tendenziell lässt sich erkennen, dass die PL-Intensität von Probe A nach D zunimmt. Im Unterschied zum 406 nm-Laser werden bei dem 325 nm-Laser die Ladungsträger auch in der unter- und überliegenden GaN-Schicht angeregt, was z.B. zur verstärkten gelben Lumineszenz führt. Zusätzlich können die Ladungsträger aus dem GaN in die InGaN-Strukturen relaxieren, um anschließend strahlend zu rekombinieren.

Die Spektren in Abb. 3.9 wurden mit einem unfokussierten Laserstrahl, d.h. einer relativ niedrigen Anregungsintensität, von abgeschätzt 20 W/cm^2 aufgenommen. Erhöht man die Anregungsintensität um zwei bis drei Größenordnungen durch eine verbesserte Fokussierung, so führt dies zur irreversiblen Reduktion der PL-Intensität. Man kann in diesem Fall von der Zerstörung der InGaN-Strukturen ausgehen. In Abb. 3.10 sind die PL-Spektren einer Probe dargestellt, die wie die Proben A-D aus einer InGaN-Schicht besteht².

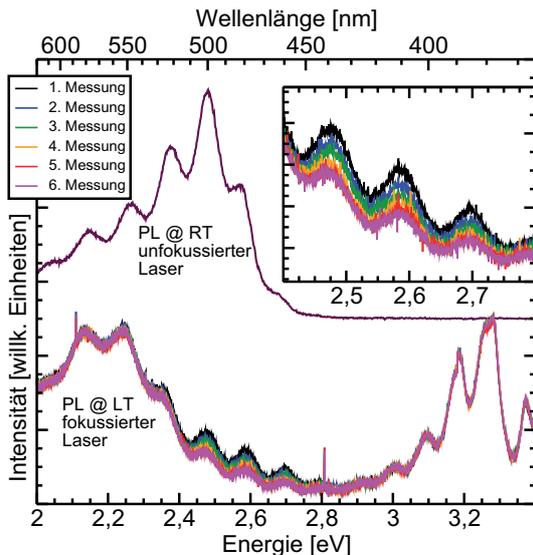


Abbildung 3.10: PL-Spektren von einer Probe mit unbedeckten phasenseparierten InGaN-Strukturen auf der Oberfläche. Die obere Kurve zeigt starke InGaN Lumineszenz um 500 nm bei einer geringen Anregungsintensität. Wird die Anregungsintensität erhöht, so lässt sich nur noch Restlumineszenz detektieren. Diese Restlumineszenz reduziert sich bei weiteren Messung, dabei bleiben die Intensitäten der gelben Störstellenlumineszenz und DAP-Rekombination unverändert. Zwischen jeder Messung liegen ca. 30 s.

Mit dem fokussierten Laserstrahl kann man nur noch eine geringe Restintensität detektieren, die mit zunehmender Anzahl der Messung weiter abnimmt, während die gelbe Störstellenlumineszenz und DAP-Rekombination unverändert bleiben. Dieser Befund hat zur Folge, dass an derartigen Strukturen nur eingeschränkt μ -PL-Untersuchungen durchgeführt werden können, da die Anregungsintensität aufgrund der stärkeren Fokussierung deutlich erhöht ist und damit der kritische Wert zur Zerstörung schnell überschritten wird.

Die InN-reichen InGaN-Inseln können mit den in diesem Institut vorhandenen PL-Spektrometern nicht detektiert werden, da die Lumineszenz dieser Inseln außerhalb des entsprechenden Messbereichs liegt. In der Literatur wird die Infrarot-PL zur Charakterisierung von InN-Inseln herangezogen [FWL⁺09], u.a. auch bei Raumtemperatur [MBR04]. Es ist also trotz der Versetzungen an der InN-GaN-Grenzfläche aufgrund der plastischen Relaxation durchaus möglich, wichtige Informationen über die Struktur zu erhalten.

In diesem Abschnitt wurde gezeigt, dass Phasenseparation einer InGaN-Schicht in eine InN-arme und InN-reiche InGaN-Phase auftritt. Für die InN-reiche Phase ist eine Ausformung als flache gitterangepasste Strukturen auf der Oberfläche aufgrund der großen Gitterfehlangehörigkeit energetisch ungünstig. Die hohe Mobilität der Atome führt dazu, dass sich die InN-reiche Phase in großen Inseln konzentriert, deren Bildung dem Volmer-Weber-Wachstumsmodus folgt. Die InN-arme Phase verbleibt auf der Oberfläche und es

²Wachstumszeit: 8 s; Temperatur: 600 °C; anschließend 60 s-Rampe auf und 60 s halten bei 650 °C.

bilden sich charakteristische meanderartige Strukturen einer Phasenseparation. In den folgenden Abschnitten wird gezeigt, dass diese meanderartigen Strukturen optisch aktive Quantenpunkte sind. Damit ist InGaN nicht das einzige Halbleitermaterialsystem indem es gelungen ist, Quantenpunkte mit Hilfe von Phasenseparation herzustellen. Ein Blick in die Literatur zeigt, dass dies ein grundlegender materialübergreifender Prozess zur Bildung von Quantenpunkten ist, welcher auch im InGaAs [MTV⁺00, LB03] und PbTe/CdTe [HGK⁺07, GKS⁺07] beobachtet wird.

3.3 Bestimmung des phasenseparierenden Bereichs

Im vorigen Abschnitt wurde gezeigt, dass es zur Phasenseparation einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht in eine InN-arme und InN-reiche InGaN-Phase kommt. Es wurde angenommen, dass die InGaN-Schicht beim Wachstum voll kompressiv verspannt ist, d.h. es hat die a -Gitterkonstante von GaN angenommen. Es muss daher die Spinodale für voll verspanntes InGaN auf GaN aus Abb. 1.8 in Betracht gezogen werden. Bei Wachstumstemperaturen von 600 °C ist der instabile Bereich zwischen $x_1 = 0,715$ und $x_2 = 0,870$ eingeschränkt, bei 650 °C ist $x_1 = 0,736$ und $x_2 = 0,852$. Dies bedeutet, dass Phasenseparation nur in einem relativ kleinem Konzentrationsbereich stattfindet. In diesem Abschnitt soll gezeigt werden, dass die theoretisch berechnete Mischungslücke aus der Spinodalen für voll verspanntes InGaN auf GaN in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen ist.

Es wurden fünf Proben hergestellt, dessen InGaN-Schichten in ihren nominellen InN-Gehalt variieren. Eine Übersicht befindet sich in Tab. 3.2. Die InGaN-Schichten sind bei

Probe	E	F	G	H	I
x in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$	0,73	0,78	0,82	0,87	0,92

Tabelle 3.2: InN-Gehalt der InGaN-Schichten.

650 °C unter N_2 -Atmosphäre bei 933 mbar gewachsen. Der Einfluss der Temperatur auf die phasenseparierte InGaN-Schicht wird im nächsten Abschnitt 3.4 diskutiert. Nach einer zwei minütigen Temperaturrampe auf 700 °C wurde eine 8 nm dicke $\text{In}_{0,09}\text{Ga}_{0,91}\text{N}$ Deckschicht abgeschieden. Anschließend wurde nach einer vier minütigen Temperaturrampe auf 820 °C eine 36 nm Dicke GaN-Schicht gewachsen. Hierbei wird angenommen, dass eine derartige Deckschicht keinen wesentlichen Einfluss auf die phasenseparierten Strukturen hat. Die Auswirkungen einer Deckschicht auf die phasenseparierten InGaN-Strukturen werden ausführlich in Kap. 4 diskutiert, wobei sich zeigt, dass diese Annahme gerechtfertigt ist. In Abb. 3.11 sind die PL-Spektren bei Raumtemperatur (RT) der fünf Proben dargestellt. Zusätzlich sind die integrierten Intensitäten von 10 K bis RT aufgetragen. Die Position der Emission variiert stark je nach angestrebten InN-Gehalt. Es ist eine Verschiebung der Emissionswellenlänge zu höheren Energien von Probe F mit $x = 0,78$ bis Probe I mit $x = 0,92$ zu erkennen. Dieser Trend ist widersprüchlich, denn nach Abb. 1.2 wird ein gegensätzliches Verhalten mit einem steigenden InN-Gehalt erwartet.

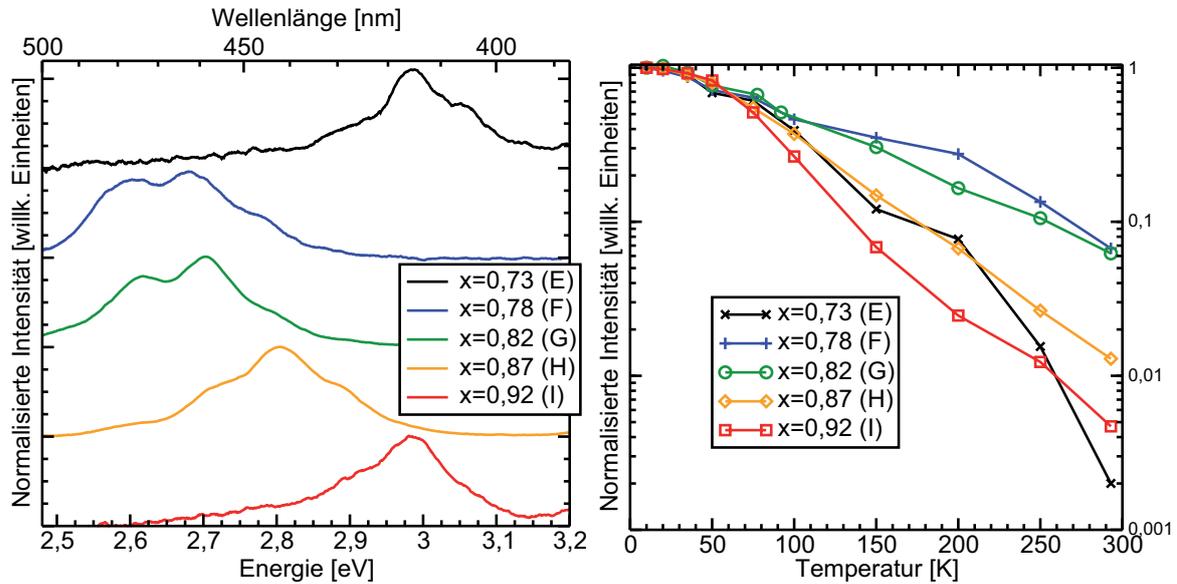


Abbildung 3.11: Normierte PL-Spektren (links) aufgenommen bei RT der Proben E-I mit unterschiedlichem x in der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Schicht. Entsprechende temperaturabhängige integrierte PL Intensität (rechts).

Die Probe G entspricht bezüglich des InN-Gehalts den Proben A-D aus dem vorigen Abschnitt, sie zeigt Lumineszenz um 2,65 eV. Die temperaturabhängige integrierte Intensität fällt von 10 K bis RT auf einen prozentualen Wert von 6,2 % ab. Probe F weist fast identische Charakteristiken wie Probe G auf. Probe H emittiert um 2,8 eV und bei RT ist nur noch 1,3 % der bei 10 K beobachteten Intensität vorhanden. Die Proben E und F verhalten sich trotz des Unterschieds im angestrebten InN-Gehalt sehr ähnlich, die Emission liegt um 3 eV und bis RT fällt die Intensität auf unter 0,5 % ab. Ein derart starker Intensitätsabfall ist typisch für einen Quantenfilm [CVB⁺08].

Ein Abfall der Lumineszenzintensität mit zunehmender Temperatur hängt mit der nicht-strahlenden Rekombination in Defekten des Materials zusammen. Bei tiefen Temperaturen ist die Diffusionslänge eines Ladungsträgers stark reduziert, wodurch Defekte mit geringerer Wahrscheinlichkeit erreicht werden. Ladungsträger können angeregt werden und geben bei der Rekombination ein Photon ab. Bei höheren Temperaturen erhöht sich die Diffusionslänge und dabei die Wahrscheinlichkeit, eine Defektstelle zu erreichen. Somit reduziert sich die Rekombinationsrate, was zu einem Intensitätsabfall führt. Ein wesentlicher Vorteil von Quantenpunkten ist der dreidimensionale Einschluss der Ladungsträger aufgrund der Potentialdifferenz zum umgebenden Material. Idealerweise verbleibt ein Ladungsträger in dem Quantenpunkt und kann keine Defekte erreichen. Erreicht die Zufuhr von thermischer Energie die Aktivierungsenergie eines Ladungsträgers im Quantenpunkt, so wird der Ladungsträger aus dem Quantenpunktpotential in das umgebende Material angeregt, wo es sich uneingeschränkt ausbreiten und Defekte erreichen kann. Bei einem Quantenfilm ist der Einschluss nur zweidimensional. Defekte können somit stets erreicht werden, da keine energetische Barriere vorhanden ist. Ein relativ schwacher Intensitätsabfall von Quantenpunktstrukturen bei ansteigender Temperatur ist ein wesentlicher Vorteil von Quantenpunkten verglichen mit einem

relativ starken Intensitätsabfall von Quantenfilmen.

Der niedrige Intensitätsabfall von Tief- auf Raumtemperatur der Proben F und G lässt die Annahme zu, dass es sich bei den Proben um Quantenpunktlumineszenz handelt, während bei den Proben E und I Quantenfilmlumineszenz vorliegt, d.h. es haben sich bei den Proben keine Quantenpunkte gebildet. Probe H zeigt kein eindeutiges Verhalten.

In Abb. 3.12 sind die μ -PL-Spektren der Proben G und H gezeigt. Diese Spektren wurden an unstrukturierten Proben aufgenommen, d.h. eine Vielzahl von Quantenpunkten wurde angeregt. Es sind im Ansatz einzelne scharfe Emissionslinien zu erkennen, die von einer breiten Emission überlagert sind. Es zeigt sich, dass sich für die Proben G und H Quantenpunkte gebildet haben. Bei den Proben E und I wurden keine scharfen Emissionslinien detektiert, weshalb die μ -PL-Spektren hier nicht gezeigt werden.

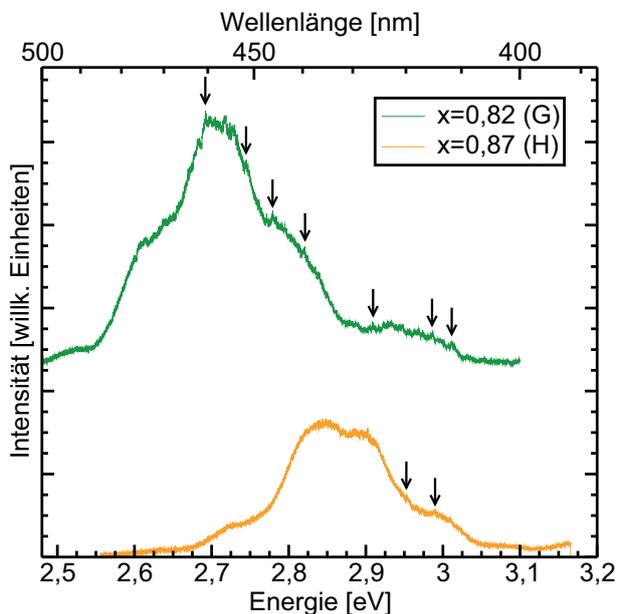


Abbildung 3.12: μ -PL-Spektren aufgenommen bei 4K der Proben G und H. Auf der höherenergetischen Seite der Lumineszenz sind vereinzelte spektral scharfe Linien im Ansatz erkennbar (einige sind mit Pfeilen gekennzeichnet); der spektrale Bereich auf der höherenergetischen Seite weist im Vergleich mit der niederenergetischen Seite stärkere Fluktuationen auf. Die μ -PL-Spektren wurden von Joachim Kalden aus der Arbeitsgruppe Gutowski gemessen.

Für Probe F wurden in der μ -PL auch keine scharfen Linien gefunden, jedoch weist die Übereinstimmung mit Probe G bezogen auf die spektrale Lage und der Temperaturabhängigkeit darauf hin, dass sich Strukturen gebildet haben, die den gleichen InN-Gehalt haben und separiert von Defekten sind, weil sie effektiv nicht-strahlende Rekombination bei RT verhindern. Da sich im mittleren Bereich um 0,794 (entspricht dem Maximum der spinodalen Kurve) eher meanderartige als quantenpunktartige Strukturen bilden (siehe Abb. 1.9), sind keine Quantenpunkte um und unterhalb von 0,794 zu erwarten. Für Probe F mit einem nominelle InN-Gehalt von 78 % findet der Phasenseparationsprozess zwar statt, und es scheinen sich separierte Nanostrukturen gebildet zu haben, welche die Ladungsträger effektiv daran hindern, Defekte zu erreichen und nicht-strahlend zu rekombinieren. Dies erklärt den schwachen Intensitätsabfall bis RT. Die Strukturen sind jedoch zu groß und der Quantenpunktcharakter geht verloren. Es sind keine scharfen Emissionslinien in der μ -PL detektierbar.

Der stärkere Intensitätsabfall bis RT der Probe H hängt mit der erhöhten Energie zusammen. Die höhere Energie kommt durch den quantenmechanischen Größeneffekt zustande. Nach Abb. 1.9 werden mit höherem InN-Gehalt in der InGaN-Schicht nach

der Phasenseparation kleinere Strukturen erwartet. Die Energie dieser kleinen Strukturen ist aufgrund des quantenmechanischen Größeneffekts blauverschoben. Dadurch ist die Potentialdifferenz zwischen dem Quantenpunkt und dem umgebenden Material reduziert, wodurch die Aktivierungsenergie sinkt und der Ladungsträger leichter aus dem Quantenpunkt in das umgebende Material angeregt werden kann.

Das Ergebnis der Variation des InN-Gehalts in der InGaN-Schicht ist die Bildung von Quantenpunkten in einem schmalen Konzentrationsbereich von etwa 0,78 bis 0,87. Phasenseparation wird nach Abb. 1.8 bei einer Temperatur von 650 °C nur in einem Bereich zwischen 0,736 und 0,852 erwartet. Für Probe E und I werden deshalb keine Quantenpunkte erwartet. Theorie und Experiment sind in guter Übereinstimmung. Diese Werte sind in guter Übereinstimmung mit der Theorie von Karpov [Kar98], welche in Abschnitt 1.4.2 ausgeführt ist. Probe H liegt zwar schon außerhalb des Bereichs, jedoch ist die Lage der spinodalen Kurven u.a. stark von den elastischen Konstanten abhängig. Diese Konstanten sind in der Literatur nicht eindeutig bestimmt, weshalb die Lage der spinodalen Kurve variieren kann.

3.4 Variation der Quantenpunktdichte

Die Größe und Dichte von Quantenpunkten (siehe Darstellung in Abb. 1.9) ist von der Diffusion abhängig, welche wiederum von der Zeit und Temperatur abhängt. In diesem Abschnitt wird der Einfluss der Temperatur auf die Quantenpunktdichte diskutiert.

Die kritische Temperatur der Spinodalen für voll verspanntes InGaN auf GaN liegt bei 713 °C (siehe Abb. 1.8), d.h. Phasenseparation und die Bildung von Quantenpunkten sollte für niedrigere Temperaturen auftreten. Um zu zeigen, dass Phasenseparation auch bei höheren Temperaturen als 600 °C auftritt, wurde eine Probe gewachsen, deren $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht bei 650 °C abgeschieden wurde. Die Temperatur wurde für 60 s bei dieser Temperatur gehalten und anschließend abgekühlt. In Abb. 3.13 ist ein AFM-Bild dieser Probe dargestellt.

Es sind, wie bei Probe B in Abb. 3.1, große und kleine Inseln zu erkennen, die eine Höhe von bis zu 20 nm haben. Zwischen den Inseln befinden sich flache Strukturen, welche diesmal nicht meanderartig sondern separiert verteilt sind. Röntgenuntersuchungen belegen, dass sich wieder eine InN-reiche InGaN-Phase gebildet hat (siehe Abb. 3.14). Messungen zeigen eine schwache PL-Aktivität der Probe (siehe Abb. 3.15). Phasenseparation hat somit auch für diese Probe stattgefunden. Der Grund für die Bildung von den separierten Bereichen/Quantenpunkten liegt daran, dass bei 650 °C eine $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht bezüglich der Zusammensetzung am rechten Rand der Spinodalen liegt. Nach der Phasenseparation liegt also weniger Material der InN-armen Phase vor, weshalb sich keine meanderartigen Strukturen bilden.

Das AFM-Bild zeigt jeweils links und rechts der großen Inseln mit den dunklen Bereichen einen Messartefakt in Form eines Messschattens. Der Messschatten wird hauptsächlich durch die Nachbearbeitung des Bildes verursacht, bei dem jede einzelne horizontale Linie des Bildes durch Abzug einer quadratischen Fitfunktion geglättet wird. Auch die AFM-Messspitze erzeugt nach überqueren einer hohen Inseln von links nach rechts bzw. von rechts nach links einen Messschatten, wenn nicht ausreichend schnell

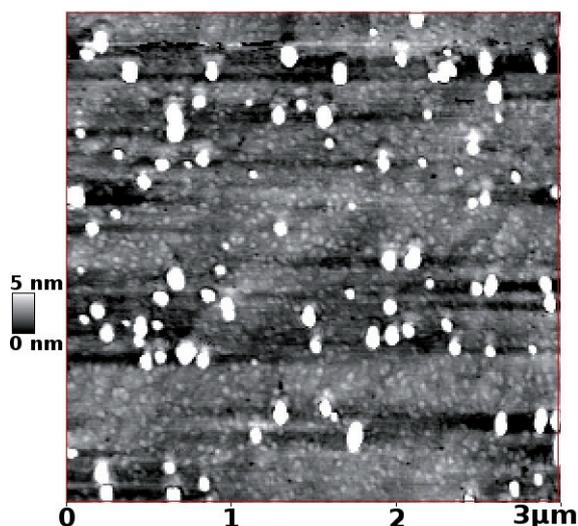


Abbildung 3.13: AFM-Messung von der Probe mit einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht abgeschieden bei 650°C . Die Skala ist auf 5 nm eingeschränkt, um die flachen Oberflächenstrukturen noch darstellen zu können. Die weißen Inseln mit großen und kleinen Durchmesser haben eine Höhe von bis zu 20 nm.

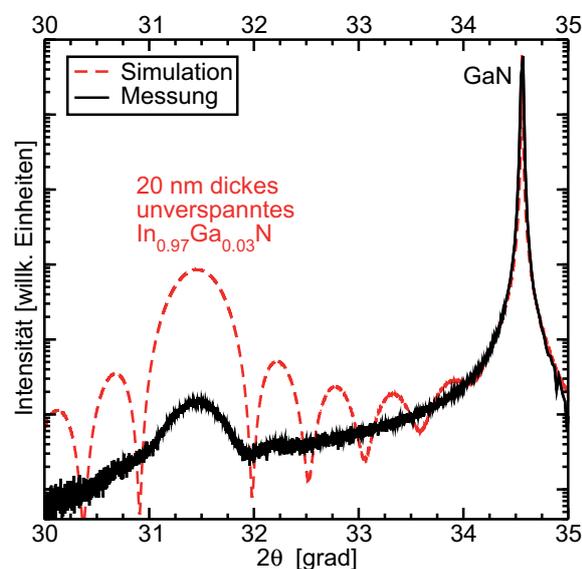


Abbildung 3.14: XRD-Messung von der $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht abgeschieden bei 650°C , welche in Abb. 3.13 gezeigt ist. Zusätzlich ist eine Simulation für 20 nm unverspanntes $\text{In}_{0,97}\text{Ga}_{0,03}\text{N}$ dargestellt, welche bis auf die Intensität in guter Übereinstimmung mit der Messung ist. Die Ursache für die Intensitätsunterschiede ist die Teilbedeckung der Oberfläche mit den InN-reichen Inseln; in der Simulation können nur geschlossene Schichten angenommen werden.

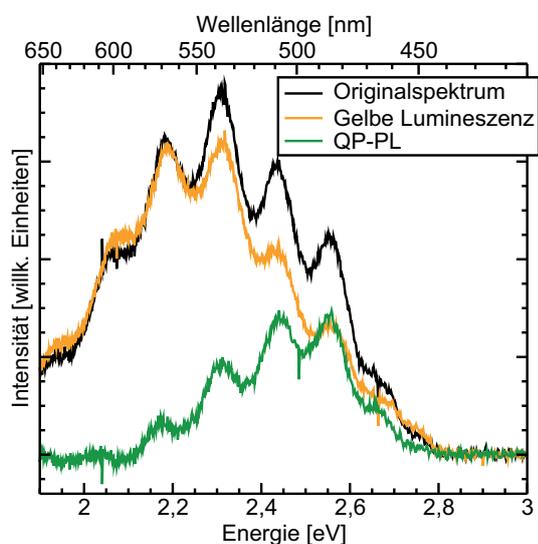


Abbildung 3.15: PL-Messungen an der Probe mit einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht abgeschieden bei 650°C . Das Originalspektrum wird im Wesentlichen von der gelben Störstellenlumineszenz dominiert. Die Quantenpunkt-Lumineszenz lässt sich in diesem Spektrum nur sehr schwach als hochenergetische Schulter ausmachen. Zur Verdeutlichung der Quantenpunkt-photolumineszenz (QP-PL) wurde ein Referenzspektrum vom Probenrand aufgenommen, an welchem aufgrund der schlechten Kristallqualität nur gelbe Lumineszenz vorhanden ist (gelber Graph). Dieses Referenzspektrum wurde bei einer Messungen in der Probenmitte abgezogen, so dass nur die Quantenpunkt-Lumineszenz übrig bleibt (grüner Graph).

die optimale Messhöhe eingestellt wird. Die Probenoberfläche ist demnach weiter von der Spitze entfernt, wodurch diese Bereiche etwas dunkler dargestellt werden. Dieser Effekt ist nicht so stark wie der Effekt durch die Nachbearbeitung des Bildes.

Auf der Probe ist die Dichte der Inseln relativ gering, so dass die Quantenpunkte auf der Oberfläche zu sehen sind. Bei den Proben A-D ist die Inseldichte so hoch, dass die Zwischenbereiche im AFM aufgrund dieses Messartefakts nicht aufgelöst werden können. Der Vergleich mit den REM-Bildern der Probe A-D zeigt, dass die Quantenpunktdichte mit der zunehmenden Wachstumstemperatur abgenommen hat.

Zur Bestätigung des Trends wurden drei Proben hergestellt, bei der eine $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht jeweils bei 600°C , 650°C und 700°C abgeschieden wurde. Die anschließende Prozedur ist die gleiche wie bei den Proben E-I aus dem vorigen Abschnitt. In Abb. 3.16 sind die RT-PL-Spektren der drei Proben dargestellt. Die Probe, die bei 600°C gewach-

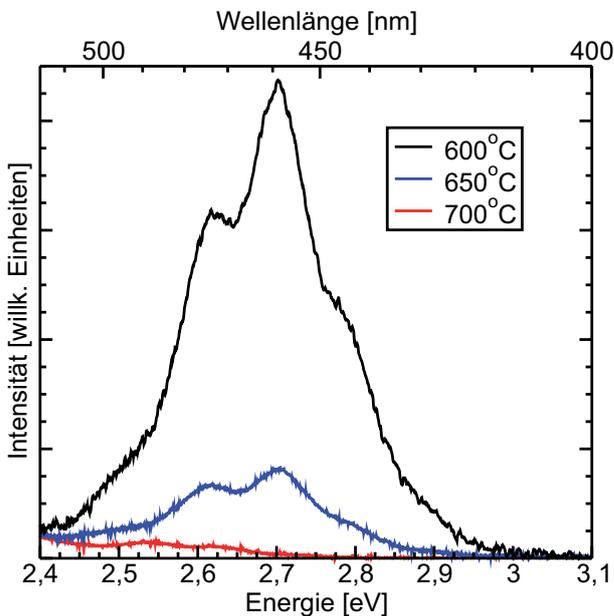


Abbildung 3.16: RT-PL von Proben mit unterschiedlicher Wachstumstemperatur der InGaN-Schicht. Mit zunehmender Wachstumstemperatur nimmt die PL-Intensität der Proben ab.

sen wurde zeigt die hellste Quantenpunktlumineszenz. Mit zunehmender Temperatur nimmt die Lumineszenz jedoch ab und bei 700°C ist neben der gelben Störstellenlumineszenz nur eine schwache Schulter von den InGaN Quantenpunkten zu sehen. Der Trend der abnehmenden Intensität mit zunehmender Temperatur könnte auf eine abnehmende Quantenpunktdichte hinweisen.

Die Temperaturabhängigkeit der Quantenpunktdichte lässt sich mit Hilfe von μ -PL-Messungen und dem Zählen von scharfen Emissionslinien in einer Mesastruktur mit bekannten Durchmesser bestätigen. In Tab. 3.3 sind die Quantenpunktdichten aufgelistet. Bei einer Wachstumstemperatur von 600°C beträgt die Quantenpunktdichte $1 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$. Mit Hilfe der Temperatur kann die Quantenpunktdichte über drei Größenordnungen variiert werden.

Dieses Ergebnis zeigt den vielseitigen Einsatzbereich von den InGaN Quantenpunkten. Prinzipiell ist es möglich, eine hohe Quantenpunktdichte herzustellen, die in LED- oder Laserstrukturen eingesetzt werden kann. Eine niedrige Quantenpunktdichte kann für die Realisierung eines Einzelphotonenemitters verwendet werden.

Eine weitere Absenkung der Wachstumstemperatur der InGaN-Schicht sollte prinzipiell zu einer weiteren Erhöhung der Quantenpunktdichte führen. Eine Absenkung der Temperatur auf 550 °C bei sonst gleichbleibenden Parametern führt jedoch zu einem Einbruch der PL-Intensität, was auf einen gestörten Wachstumsprozess hindeutet. Der Grund liegt in der geringen Dissoziation von Ammoniak. Dieses Problem lässt sich durch eine vierfache Erhöhung des V/III-Verhältnisses lösen, d.h. z.B. Halbierung der Metallorganikaflüsse und Verdoppelung des NH₃-Flusses sowie der Wachstumszeit. Hiermit können LED-Strukturen hergestellt werden, deren optische Eigenschaften (spektrale Lage und Intensität der Lumineszenz bei Photo- und Elektrolumineszenzuntersuchungen) sich nicht von InGaN Quantenpunktproben unterscheidet, deren Schicht bei 600 °C gewachsen wurde. Eine weitere Erhöhung der Quantenpunktdichte aufgrund der Temperaturabsenkung konnte aber nicht festgestellt werden.

3.5 Dynamik der Phasenseparation

In Abb. 3.1 bekommt man einen Eindruck über die Dynamik der Phasenseparation und die Bildung der Strukturen. Jedoch entspricht selbst Probe A nicht der Situation direkt nach dem Wachstum der In_{0,82}Ga_{0,18}N-Schicht. Beispielsweise dauert der Abkühlprozess von 600 °C auf 500 °C 70 s, d.h. selbst bei Probe A, die sofort nach dem Wachstum abgekühlt wurde gibt es ausreichend Zeit und thermische Energie um einen Phasenseparationsprozess anzutreiben.

Um Informationen über die Dynamik und Geschwindigkeit der Phasenseparation zu erhalten wurden zwei Proben hergestellt, deren In_{0,82}Ga_{0,18}N-Schicht bei 600 °C und 650 °C abgeschieden und anschließend ohne Wachstumsunterbrechung mit einer 7 nm GaN-Schicht überdeckt wurde. Zusätzlich wurde eine 36 nm-Deckschicht bei höheren Temperaturen aufgebracht.

Die entsprechenden PL-Spektren sind in Abb. 3.17 dargestellt. Die 650 °C-Probe zeigt typische InGaN Quantenpunktlumineszenz um 450 nm. Die 600 °C-Probe zeigt dagegen keine Lumineszenz, obwohl aufgrund der niedrigeren Temperatur und der daraus resultierenden höheren Quantenpunktdichte eine wesentlich intensivere Lumineszenz zu erwarten wäre (siehe Abschn. 3.4). Durch die unmittelbar aufgetragene GaN-Deckschicht bei 600 °C scheint keine Phasenseparation stattzufinden, so dass sich keine Quantenpunkte bilden können. Die Phasenseparation läuft auf der Oberfläche bei dieser Temperatur nicht schnell genug ab und wird im Kristall aufgrund der geringen Mobilität unterdrückt. Bei 650 °C findet eine effektive Phasenseparation wahrscheinlich während

InGaN Wachstumstemperatur	Anzahl von Quantenpunkten/ scharfen Emissionslinien
600 °C	$1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$
650 °C	$6 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$
700 °C	$2 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$

Tabelle 3.3: Dichte der Quantenpunkte bestimmt aus der Anzahl der spektral scharfen Linien in den μ -PL Spektren von Mesa-Struktur mit definierten Durchmesser.

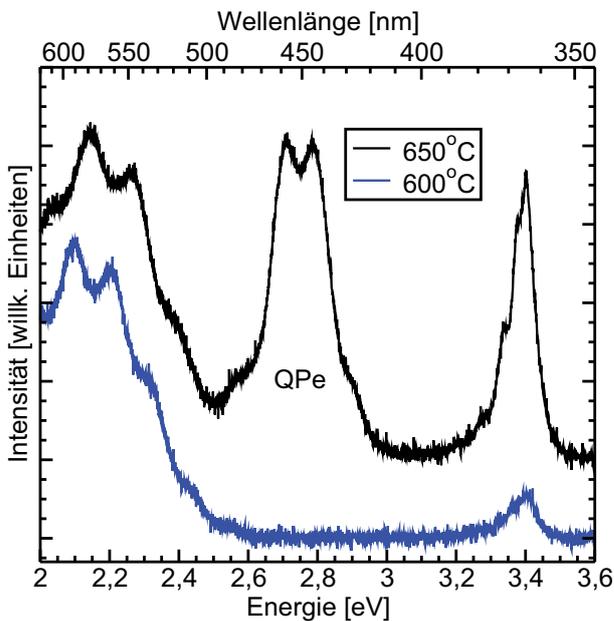


Abbildung 3.17: PL bei RT von zwei Proben mit Wachstum der $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht bei 600°C und 650°C . Die GaN-Deckschicht wurde ohne Wachstumsunterbrechung bei den entsprechenden Temperaturen abgeschieden. Bei niedrigen Energien bis etwa $2,5\text{ eV}$ ist die gelbe Störstellenlumineszenz und bei $3,4\text{ eV}$ die bandkantenennahe Emission des GaN zu erkennen.

des Wachstums statt, d.h. eine GaN-Deckschicht kann ohne Wachstumsunterbrechung abgeschieden werden, ohne dabei negativen Einfluss auf den Phasenseparationsprozess zu haben.

3.6 “Zwei-Stufen Wachstumsmodus”

Zu Beginn dieses Kapitels wurde kurz auf den “Zwei-Stufen Wachstumsmodus” hingewiesen. Diese Methode ist der Vorläufer der in dieser Arbeit vorgestellten Methode, InGaN Quantenpunkte mit Hilfe von Phasenseparation herzustellen. Der “Zwei-Stufen Wachstumsmodus” besteht im Wesentlichen aus einer nominellen $\text{In}_{0,72}\text{Ga}_{0,28}\text{N}$ -Schicht, welche “Nukleationsschicht” genannt wird, die mit einer nominellen $\text{In}_{0,21}\text{Ga}_{0,79}\text{N}$ -Schicht (Name: “Formationsschicht”) bei 700°C überwachsen wird. Die Problematik dieses Prozesses ist die Reproduzierbarkeit. Nur vereinzelte Proben wiesen scharfe Emissionslinien in der $\mu\text{-PL}$ auf. Jedoch war der “Zwei-Stufen Wachstumsmodus” in dreifach gestapelten Proben sehr erfolgreich und reproduzierbar, damit konnten lichtmittlernde Bauelemente im grünen und orangen Spektralbereich hergestellt werden. In diesem Abschnitt wird gezeigt, dass sich mit Hilfe der Theorie der Phasenseparation durch spinodale und binodale Entmischung dieses Phänomen erklären lässt.

Zwei Proben wurden hergestellt, die sich in der Anzahl der Nukleations- und Formationsschichten unterscheidet. Die erste Probe besteht lediglich aus einer Nukleations- und Formationsschicht, während sich die zweite Probe aus drei Nukleations- und Formationsschichten zusammensetzt, die jeweils durch eine 12 nm GaN Zwischenschicht getrennt sind. Bei beiden Proben beträgt die Dicke der abschließenden GaN-Deckschicht 36 nm . Der Probenaufbau ist in Abb. 3.18 schematisch dargestellt.

In Abb. 3.19 sind die PL-Spektren von Proben mit einer und mit drei Lagen aus Nukleations- und Formationsschicht aufgenommen bei Raum- und Tieftemperatur vergleichend dargestellt. Prinzipiell wird bei der dreilagigen Probe eine Verdreifachung der Intensität erwartet. Der Vergleich der Lumineszenz bei 10 K zeigt, dass die Intensität

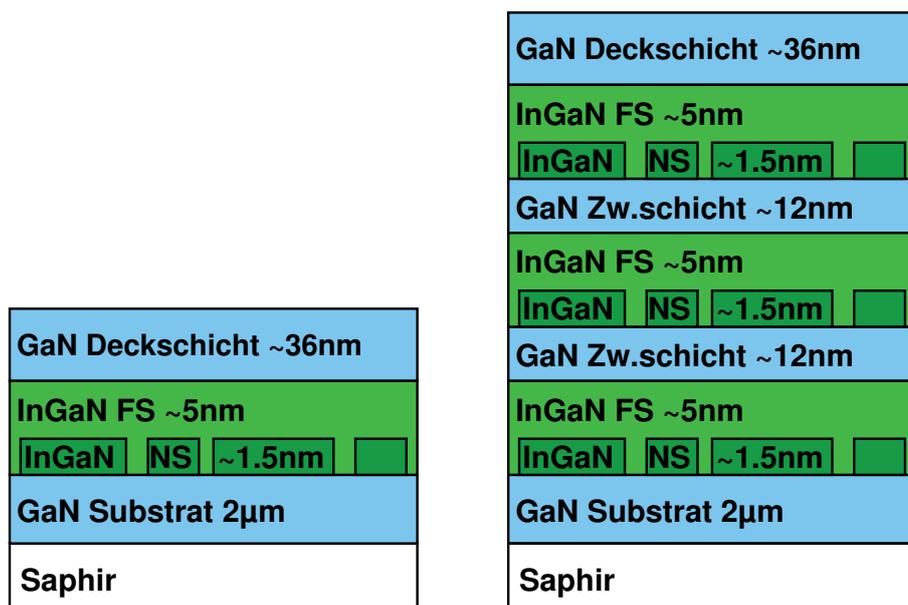


Abbildung 3.18: Aufbau der Proben mit einfach (links) und dreifach (rechts) gestapelten Nukleations-(NS-) und Formationsschicht (FS). Nomineller InN-Gehalt in der NS beträgt 72 %, während er in der FS 21 % beträgt. Die NS wurde bei 650 °C, die FS bei 700 °C unter N₂-Atmosphäre und die GaN-Zwischenschicht bei 820 °C unter N₂/H₂-Mischatmosphäre abgeschieden.

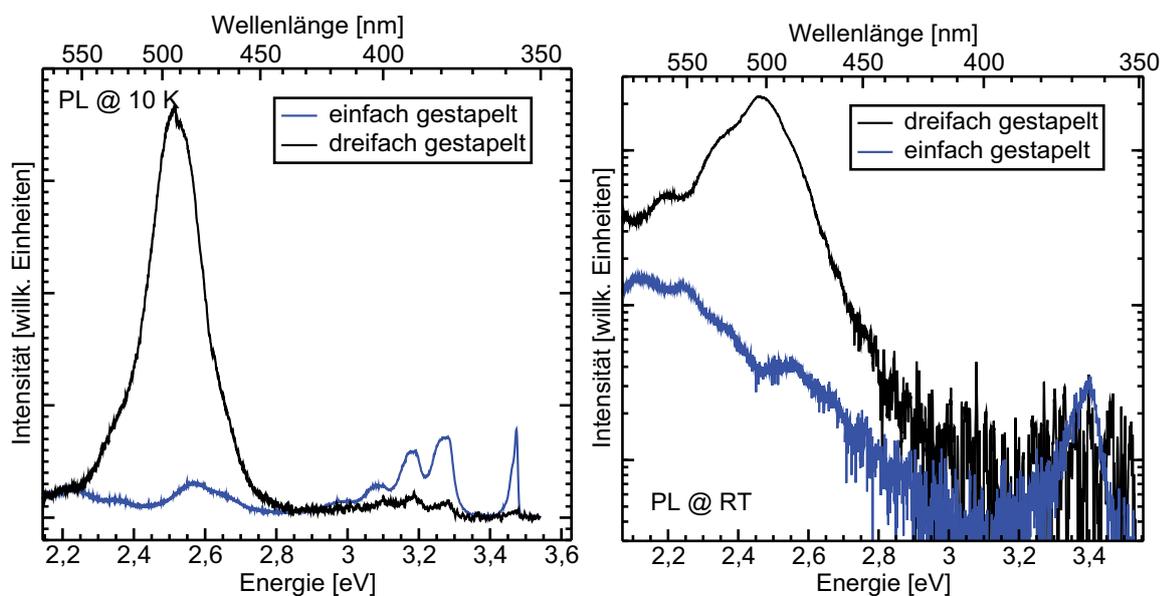


Abbildung 3.19: PL-Vergleich der Proben mit einfach und dreifach gestapelten InGaN-Lagen im Zwei-Stufen Wachstumsmodus. Links: PL-Spektren aufgenommen bei 10 K. Rechts: PL-Spektren bei RT. Aufgrund der großen Intensitätsunterschiede ist die Intensitätsachse logarithmisch aufgetragen.

jedoch um den Faktor 12 zugenommen hat. Der Vergleich bei RT zeigt sogar einen maximalen Intensitätsunterschied von fast zwei Größenordnungen. Eine derartige starke Lumineszenzintensität bei RT ist typisch für quantenpunktartige Strukturen, weshalb angenommen werden kann, dass sich bei der dreifach gestapelten Probe Quantenpunkte gebildet haben, während bei der einfach gestapelten Probe keine Quantenpunkte vorhanden sind.

μ -PL-Untersuchungen an einer dreifach gestapelten Probe zeigen scharfe Emissionslinien (siehe Abb. 3.20). Dies weist deutlich auf die Bildung von quantenpunktartigen Strukturen in dreifach gestapelten Proben hin, welche mit dem “Zwei-Stufen-Wachstumsmodus” hergestellt wurden.

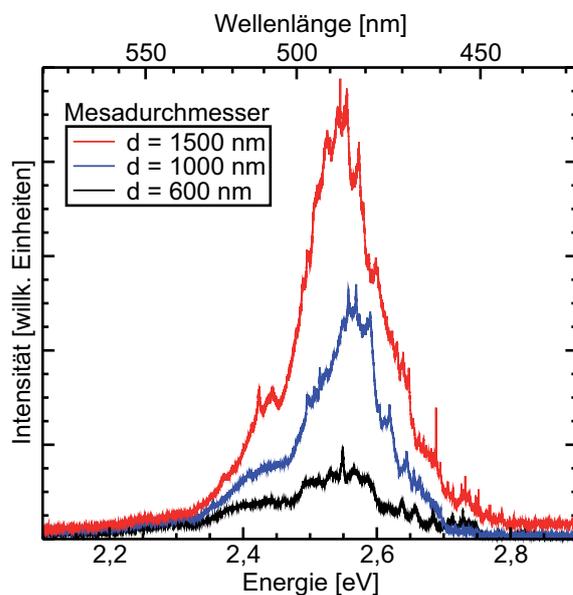


Abbildung 3.20: μ -PL einer dreifach gestapelten Probe hergestellt mittels des Zwei-Stufen Wachstumsmodus. Dargestellt sind Messungen an Mesastrukturen mit unterschiedlichen Durchmesser d . Eindeutig sind spektral scharfe Emissionslinien auf einem breiten Untergrund zu erkennen. Die Messungen wurden von Dr. Joachim Kalden durchgeführt.

Wie schon in den vorigen Abschnitten erläutert wird mit dem Zwei-Stufen Wachstumsmodus und speziell mit einer $\text{In}_{0,72}\text{Ga}_{0,28}\text{N}$ -Schicht keine Phasenseparation erwartet, da dieser InN-Konzentrationswert nicht in dem instabilen Bereich unterhalb der Spinodalen liegt, die für eine voll verspannte InGaN-Schicht auf GaN berechnet wurde.

Ein Blick in Abb. 3.21 auf die reziproke Gitterkarte um den (10-15)-Reflex aufgenommen mit Hilfe der Röntgendiffraktometrie zeigt, dass die InGaN-Schichten nicht voll verspannt sondern leicht relaxiert sind.

Während des Wachstums hat dies Konsequenzen auf die Nukleationsschichten. Für die erste Stapelschicht ändert sich nichts, da sie noch voll verspannt auf dem GaN-Substrat aufwächst. Die erste Nukleations- und Formationsschicht verursacht aufgrund des InN-Vorkommens eine leichte tensile Verspannung auf die darüberliegende GaN-Zwischenschicht. Genauso übt die zweite Nukleations- und Formationsschicht eine tensile Verspannung auf die darüberliegende GaN-Zwischenschicht aus. Dies bedeutet für die zweite und dritte Nukleationsschicht, dass je nach Verspannungsgrad eine andere Spinodale betrachtet werden muss. Dies bedeutet, dass sich der instabile Bereich besonders stark zu niedrigen InN-Konzentrationen hin erweitert. Eine $\text{In}_{0,72}\text{Ga}_{0,28}\text{N}$ -Schicht befindet sich somit im instabilen Bereich, wodurch Phasenseparation und die Bildung von Quantenpunkten stattfinden kann.

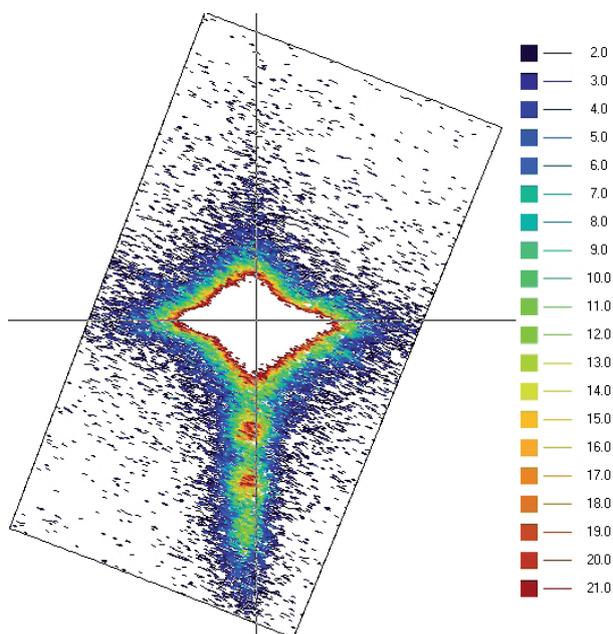


Abbildung 3.21: Reziproke Gitterkarte um den (10-15)-Reflex einer dreifach gestapelten Probe hergestellt mit Hilfe des Zwei-Stufen Wachstumsmodus. Es ist bewusst eine lineare Darstellung mit kleiner Intensitätsskala gewählt, um die Satellitenreflexe besser darzustellen. Der Kreuzungspunkt der schwarzen vertikalen und horizontalen Geraden markiert das Maximum des GaN-Peaks. Die Satellitenreflexe liegen nicht auf der vertikalen Geraden, was bedeutet, dass die InGaN-Schichten nicht vollkommen verspannt sondern leicht relaxiert sind.

3.7 Modell zur Bildung von InGaN Quantenpunktstrukturen

In diesem Kapitel sind eine Reihe von Ergebnissen präsentiert worden, die zeigen, dass sich InGaN Quantenpunkte aufgrund von spinodaler und binodaler Entmischung bilden. In diesem Abschnitt sollen die Erkenntnisse zusammengefasst in einem Modell wiedergegeben werden.

In Abb. 3.22 (links) ist das Phasenseparationsmodell anhand von sechs Schritten dargestellt. In Abb. 3.22 (rechts) ist das dazugehörige spinodale Phasendiagramm gezeigt. In diesem Diagramm befinden sich jeweils zwei spinodale und binodale Linien, eine für voll verspanntes InGaN und eine für teilweise relaxiertes InGaN. Beispielhaft wurde bei der zweiten Spinodale und Binodale ein Verspannungsgrad von 60 % gewählt.

In Schritt **I** wird eine $\text{In}_a\text{Ga}_{1-a}\text{N}$ -Schicht auf GaN abgeschieden. Diese Schicht wächst voll verspannt auf. Es wurde $a = 0,8$ gewählt, womit die $\text{In}_a\text{Ga}_{1-a}\text{N}$ -Schicht direkt im instabilen Bereich unterhalb der Spinodalen berechnet für 100% verspanntes InGaN liegt. Es kommt in Schritt **II** zur Phasenseparation der $\text{In}_a\text{Ga}_{1-a}\text{N}$ -Schicht in Bereiche mit relativ InN-armen $\text{In}_b\text{Ga}_{1-b}\text{N}$ und InN-reichen $\text{In}_c\text{Ga}_{1-c}\text{N}$. Es wird eine hohe Dynamik des Entmischungsprozesses angenommen, weswegen es zur Entmischung bis zur Binodalen kommt. Die relativ geringe Bindungsenergie der In-N-Verbindung kann zu einer Desorption zurück in die Gasphase führen, zusätzlich erhöht es die Mobilität der Atome auf der Oberfläche. Die Atome der InN-reichen Phase sind beweglicher als die der InN-armen Phase. Aufgrund der großen Gitterkonstantenunterschiede zwischen GaN und dem InN-reichen InGaN ist es für das InN-reiche InGaN energetisch günstiger, in Inseln zu akkumulieren, als auf der GaN-Oberfläche zu verbleiben. Es kommt somit in Schritt **III** zur Bildung von flachen und separierten $\text{In}_b\text{Ga}_{1-b}\text{N}$ Quantenpunkten und großen, dem Volmer-Weber-Wachstumsmodus folgenden $\text{In}_c\text{Ga}_{1-c}\text{N}$ -Inseln.

Vom Prinzip her könnte das Quantenpunktwachstum nun abgeschlossen sein. Jedoch

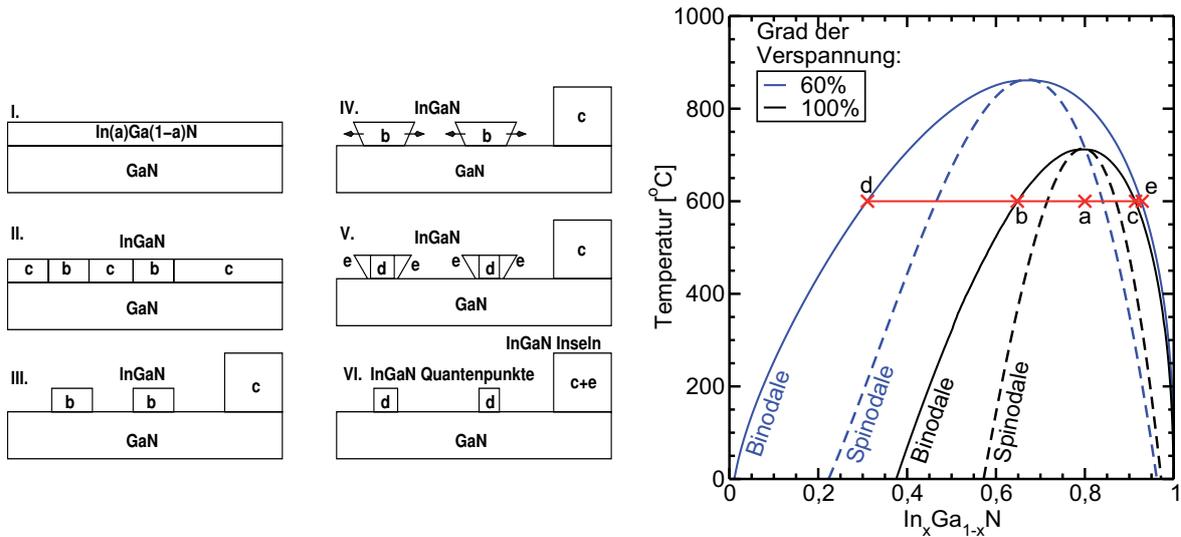


Abbildung 3.22: Modell zur Bildung von InGaN Quantenpunktstrukturen. Links ist der Phasenseparationsprozess in sechs Schritten dargestellt. Rechts ist das spinodale Phasendiagramm gezeigt, indem die fünf verschiedenen InN-Konzentrationen $a - e$ markiert sind.

haben die $\text{In}_b\text{Ga}_{1-b}\text{N}$ Quantenpunkte noch einen sehr hohen InN-Gehalt von $b \approx 0,6$. Dieser hohe InN-Gehalt ist nicht in Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen, die zeigen, dass die Quantenpunkte aus 20-30 % InN in InGaN bestehen. Deshalb muss es noch einen weiteren Prozess geben, der den InN-Gehalt in den Quantenpunkten reduziert. Eine Möglichkeit wäre der Effekt des “Composition Pulling” (siehe Abschn. 1.3). Dieser Prozess würde bei Quantenpunkten stattfinden, die ein sehr niedriges Aspektverhältnis, d.h. Durchmesser \gg Höhe, haben, da dann die Verspannung in den InGaN Quantenpunkten sehr groß wäre. Der InN-Gehalt würde sich so weit reduzieren, bis sich ein von der Konzentration her stabiler InGaN Quantenpunkt gebildet hat.

Eine Alternative zum “Composition Pulling“ ist in Schritt **IV-VI** aufgezeigt. Dies wäre der Fall, wenn das Aspektverhältnis so hoch ist, dass die Quantenpunkte die Möglichkeit zur teilweisen Relaxation haben. In Schritt **IV** kommt es zur Relaxation der flachen $\text{In}_b\text{Ga}_{1-b}\text{N}$ Quantenpunkte. Durch die Relaxation ändert sich der Grad der Verspannung, weswegen eine andere Spinodale und Binodale in Betracht gezogen werden muss, hier beispielhaft die Kurven für 60 % verspanntes InGaN. Die $\text{In}_b\text{Ga}_{1-b}\text{N}$ Quantenpunkte sind somit im instabilen Bereich, weswegen es erneut zur Phasenseparation kommt. In Schritt **V** entmischen die $\text{In}_b\text{Ga}_{1-b}\text{N}$ Quantenpunkte in InN-armes $\text{In}_d\text{Ga}_{1-d}\text{N}$ und InN-reiches $\text{In}_e\text{Ga}_{1-e}\text{N}$. Wegen der hohen Mobilität sammelt sich das $\text{In}_e\text{Ga}_{1-e}\text{N}$ in den $\text{In}_c\text{Ga}_{1-c}\text{N}$ -Inseln. Aufgrund der Nähe im Phasendiagramm gilt $c \approx e$. In Schritt **VI** haben sich nun die Endprodukte gebildet: Separierte $\text{In}_b\text{Ga}_{1-b}\text{N}$ Quantenpunkte, welche Photonen im sichtbaren Spektralbereich emittieren können und große $\text{In}_{c,e}\text{Ga}_{1-c,e}\text{N}$ -Inseln.

Zusammenfassung des Kapitels

Dieses Kapitel hat sich mit der Abscheidung von dünnen InGaN-Schichten beschäftigt. Nach der Abscheidung einer nominellen $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht findet Phasenseparation aufgrund von spinodaler Entmischung statt. Es bilden sich zwei Phasen, von der die InN-arme InGaN-Phase typische meander- und quantenpunktartige Strukturen auf der Oberfläche bildet. Die InN-reiche InGaN-Phase akkumuliert zu ~ 20 nm hohen Inseln. Die meander- und quantenpunktartigen Strukturen werden mit zunehmender Zeit bzw. Temperatur größer, was in Einklang mit der Theorie ist. Obwohl die InGaN-Strukturen unbedeckt sind, zeigen sie starke PL-Aktivität, d.h. nicht-strahlende Rekombinationskanäle über Oberflächenzustände sind entweder nicht vorhanden oder werden effizient abgeschirmt. Der phasenseparierte Bereich wurde eingegrenzt und liegt einem Konzentrationsbereich zwischen 0,78 und 0,87. Dies ist in guter Übereinstimmung mit der spinodalen Kurve für voll verspanntes InGaN auf GaN. Proben, welche in diesem Bereich gewachsen wurden, zeigten spektral scharfe Emissionslinien in μ -PL-Messungen, womit die optische Aktivität von Quantenpunkten nachgewiesen ist. Über die Wachstumstemperatur der $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht kann die Quantenpunktdichte über nahezu drei Größenordnungen eingestellt werden. Bei 600°C läuft die Entmischung der $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht nicht so schnell wie bei 650°C ab. Über die Verspannung, die das InGaN auf die darüberliegenden Schichten ausübt wurde der Erfolg des "Zwei-Stufen-Wachstumsmodest" in gestapelten Proben erklärt. Abschließend wurde ein Modell zur Bildung von InGaN Quantenpunktstrukturen aufgrund von spinodaler Entmischung vorgestellt.

4 Auswirkung von Deckschichten auf die InGaN Strukturen

In Kapitel 3 wurde gezeigt, dass sich u.a. quantenpunktartige Strukturen über eine Phasenseparation erzeugen lassen. Um InGaN Quantenpunkte in opto-elektronischen Bauelementen wie z.B. LEDs oder Lasern nutzbar zu machen, müssen diese in einem p-n-Übergang eingebettet werden. Dies erfordert ein zerstörungsfreies Überwachen der Quantenpunkte mit einer Deckschicht. Dieses Kapitel beschäftigt sich mit dem Einfluss und den Auswirkungen einer GaN- oder InGaN-Deckschicht auf die phasenseparierten Strukturen. Zu Beginn der Untersuchungen war noch nicht klar, ob diese quantenpunktartigen Strukturen mit GaN-Schichten bedeckt werden können, oder ob sie sich ähnlich wie die Stranski-Krastanov Quantenpunkte beim Wachstum einer Deckschicht auflösen [PYK⁺08]. Zudem sollten nach Möglichkeit die InN-reichen InGaN Inseln aus der Struktur entfernt werden, da sich die hohe Versetzungsdichte und der hohe InN-Gehalt der Inseln negativ auf den Betrieb eines Bauelementes auswirken könnte.

4.1 Wachstum einer GaN-Deckschicht bei 700°C

Zuerst wird der Einfluss einer GaN-Deckschicht untersucht, welche bei relativ niedrigen Temperaturen von 700 °C auf die phasenseparierten InGaN Strukturen abgeschieden wird. Zwei Proben wurden hergestellt, jeweils auf einer 2 µm dicken n-dotierten *c*-Ebenen GaN-Schicht, abgeschieden auf einem Saphir-Wafer. Bei beiden Proben wurde bei 600 °C eine In_{0,82}Ga_{0,18}N-Schicht abgeschieden und anschließend die Temperatur in 4 min auf 700 °C hochgerampft. Bei der ersten Probe wurde eine 7 nm dicke GaN-Deckschicht abgeschieden; im Folgenden handelt es sich hierbei um Probe J. Bei der zweiten Probe mit der Bezeichnung K wurden die InGaN Strukturen mit einer 20 nm dicken GaN-Schicht bedeckt, d.h. die Deckschicht ist dabei etwas höher als die InN-reichen InGaN Inseln (siehe z.B. Probe C aus Abb. 3.1). Die GaN-Deckschichten sind im Gegensatz zum n-dotierten GaN-Substrat undotiert. Nach dem Wachstum der Deckschicht wurden die Proben auf Raumtemperatur abgekühlt.

In Abb. 4.1 sind die AFM-Bilder der Proben dargestellt. Die Probe J mit der 7 nm-GaN-Deckschicht hat große und kleine Inseln auf der Oberfläche mit einer Höhe von durchschnittlich jeweils 16,7 nm und 8 nm und weist somit vergleichbare Strukturen auf wie Probe B und C aus Abb. 3.1. Die Oberfläche zwischen den Inseln ist relativ eben, weist allerdings leichte Porosität auf. Es sind wenige Stufenkanten zu erkennen, die in der Stufe leicht ausgefranst sind. Die Probe K mit der 20 nm-GaN-Deckschicht zeigt neben den großen Inseln, die eine Höhe von durchschnittlich 13,5 nm besitzen auch eine Vielzahl von Defekten, die als Löcher zu erkennen sind. Einige Löcher sind mit Inseln besetzt.

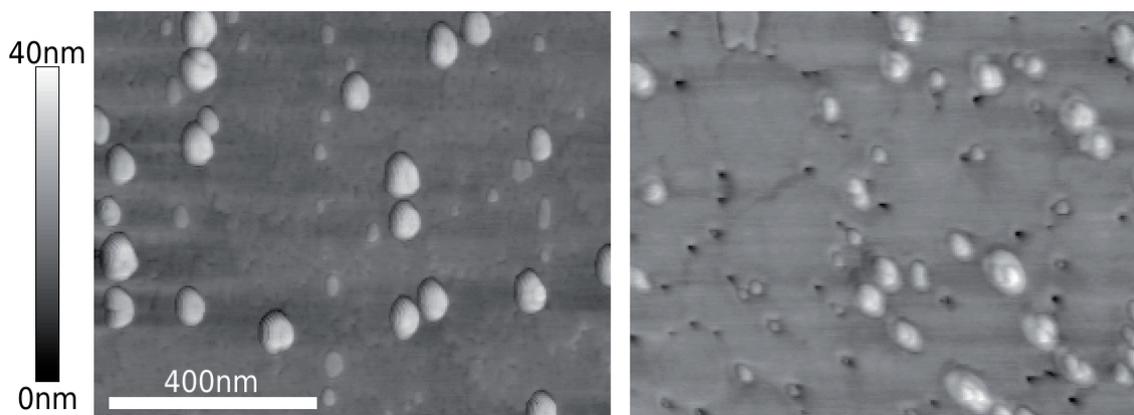


Abbildung 4.1: AFM der $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Proben J mit einer 7 nm- (links) und K mit einer 20 nm-GaN-Deckschicht (rechts). Messbalken und Graustufenskala ist für beide Bilder gültig.

Die Höhe der Inseln ist bei beiden Proben nur geringfügig gesunken und eine komplette Einbettung in die Schicht wurde nur teilweise erreicht. Es entsteht der Eindruck, die Inseln würden auf der GaN-Deckschicht aufschwimmen. Eine weitere Möglichkeit ist, dass sich während des Deckschichtwachstums Material auch auf den Inseln abgeschieden hat, so dass sie gleichmäßig mit der Umgebung wachsen und somit aus der Oberfläche herausragen.

In Abb. 4.2 sind die Röntgen- und RT-PL-Spektren der beiden Proben im Vergleich mit Probe C aus Abschnitt 3.2 dargestellt. Im Röntgenspektrum sind für die Proben J und K die typischen Schichtdickeninterferenzen aufgrund der Reflektion an der InGaN-Schicht zu sehen. Nur schwer zu erkennen ist, da von den Interferenzen überlagert, dass sich die InN-reiche Phase mit steigender Deckschichtdicke leicht zu höheren Winkeln verschiebt. Diese Verschiebung deutet darauf hin, dass es zu einer leichten Vermischung der Inseln mit dem angebotenen GaN kommt, oder dass die Inseln aufgrund der höheren Temperaturen Indium oder InN desorbieren und somit den InN-Gehalt in den Inseln reduzieren. Die Röntgenspektren können mit *X'Pert Epitaxy* nicht simuliert werden, da in dem Programm nur Schichten angenommen werden können. Hier liegen jedoch unterschiedliche Bereiche wie GaN, InN-armes InGaN und InN-reiches InGaN in einer Schicht vor, so dass eine mit dem Experiment übereinstimmende Simulation nicht realisierbar war.

Die PL-Spektren in Abb. 4.2 (rechts) zeigen, dass die Lumineszenz der Quantenpunktstrukturen, die schon bei der unbedeckten Probe C zu sehen war, erhalten bleibt. Die Deckschichtprozedur hat keinen wesentlichen Einfluss auf die Quantenpunktstrukturen. Die Lumineszenzintensität nimmt für die Probe J mit der 7 nm-Deckschicht verglichen mit der Probe ohne Deckschicht zu, und anschließend für die Probe mit der 20 nm-Deckschicht wieder ab. Die Emissionswellenlänge verschiebt dabei mit zunehmender Schichtdicke leicht zu niedrigeren Energien.

Dieses Verhalten der PL-Intensität und -Wellenlänge ist gegensätzlich zu dem Bericht an offenen und überwachsenen Quantenpunktstrukturen in [WWP⁺07]. Dort wird gezeigt, wie die Lumineszenz um 350 meV rotverschiebt und die Intensität auf 5 % abfällt.

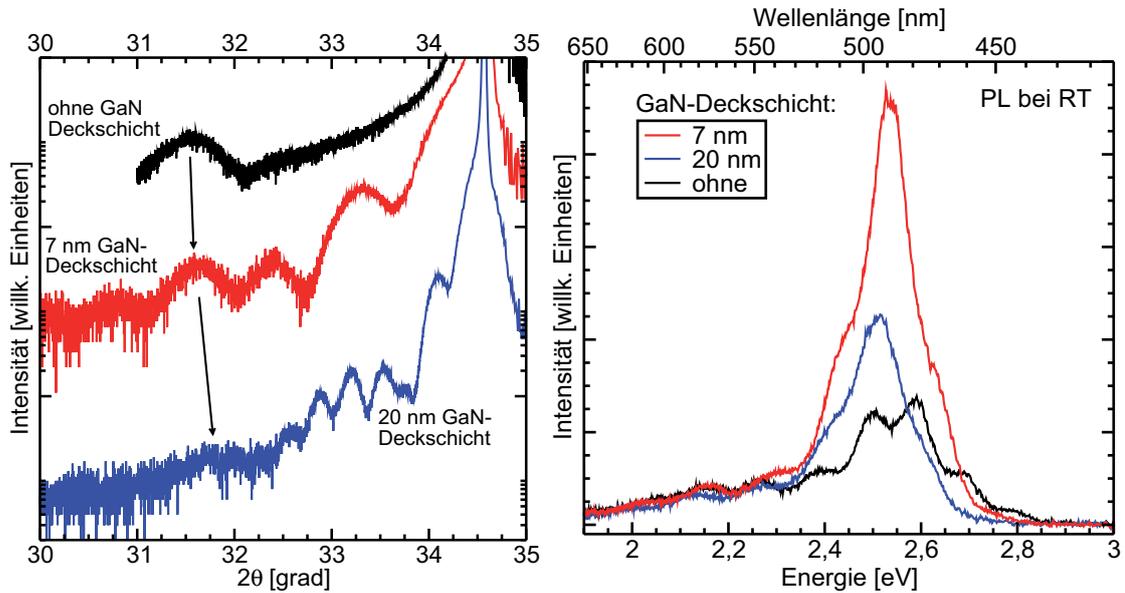


Abbildung 4.2: Röntgenspektren (links) und PL-Spektren (rechts) der Proben J und K mit unterschiedlicher Deckschichtdicke. Zum Vergleich ist das jeweilige Spektrum der Probe C aus Abschnitt 3.2 mit eingefügt. Die Pfeile sollen auf eine Verschiebung des InN-reichen Signals zu niedrigeren InN-Gehalten hinweisen. Die PL-Spektren wurden bei Raumtemperatur unter Anregung mit einer 406 nm Laserdiode aufgenommen. Der breite niederenergetische Ausläufer stammt nicht von den InGaN Quantenpunkten sondern von der gelben Störstellenlumineszenz.

Beide Effekte werden mit dem QCSE erklärt, der bei den voll relaxierten unbedeckten S-K-Inseln nicht auftritt. Der QCSE könnte die leichte Wellenlängenverschiebung der Proben ohne und mit 7 nm Deckschicht erklären, wenn man annimmt, dass die offenen Quantenpunktstrukturen sehr gering relaxiert sind. Die weitere Wellenlängenverschiebung, die zwischen den Proben J und K mit 7 nm und 20 nm Deckschicht auftritt, lässt sich jedoch nicht mehr durch den QCSE erklären, da man davon ausgehen kann, dass die InGaN Quantenpunkte schon nach der 7 nm-Deckschicht voll verspannt sind. Der Intensitätsunterschied zwischen der unbedeckten Probe und der Probe mit 7 nm GaN-Bedeckung könnte darauf hinweisen, dass Oberflächenzustände oder die durch Sauerstoff passivierte Oberfläche die strahlende Rekombination reduzieren. Der Intensitätsabfall von Probe K mit 20 nm gegenüber Probe J mit 7 nm Deckschicht könnte an der dickeren Schicht liegen, an dem der Anregungslaser absorbiert wird, so dass weniger Anregungslicht die Quantenpunkte direkt und das dotierte GaN-Substrat erreichen kann. Desweiteren können die Defekte, die für die 20 nm-Probe nach Abb. 4.1 deutlich zugenommen haben, Ladungsträger einfangen, so dass diese nicht-strahlend rekombinieren können.

4.2 Einfluss der Temperatur beim Wachstum der ersten Deckschicht

Die Wachstumstemperatur der GaN-Deckschicht ist ein wichtiger Parameter, da sie möglichst hoch bis etwa 1050 °C gewählt werden muss, um eine qualitativ hochwertige Schicht zu erzeugen. Eine hohe Temperatur kann sich jedoch negativ auf InGaN-Strukturen auswirken, da diese desorbieren oder aufgrund der hohen Mobilität der Atome auf der Oberfläche verändert werden können. In diesem Abschnitt soll der Einfluss der Wachstumstemperatur der ersten GaN-Deckschicht auf die InGaN-Strukturen untersucht werden.

Drei Proben wurden hergestellt¹, bestehend aus einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht abgeschieden bei 600 °C, die jeweils nach einer vierminütigen Temperaturrampe bei 700 °C, 750 °C oder 820 °C mit einer nominell 7 nm dicken $\text{In}_{0,09}\text{Ga}_{0,91}\text{N}$ -Schicht überwachsen wurden. Anschließend wurde jede Probe bei 820 °C mit einer 36 nm GaN-Schicht überwachsen. In Abb. 4.3 sind die PL-Spektren der drei Proben dargestellt. Die Proben, die bei

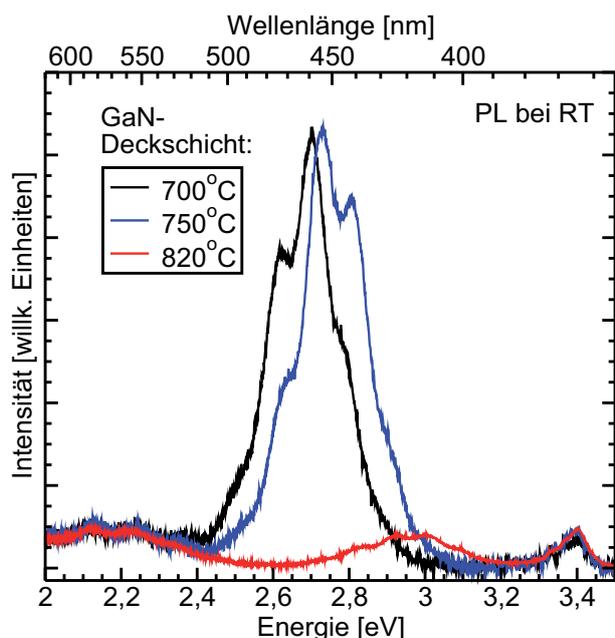


Abbildung 4.3: RT-PL-Spektren unter Anregung mit einem 325 nm Laser der überwachsenen phasenseparierten $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schichten. Die Wachstumstemperatur der ersten Deckschicht betrug jeweils 700 °C, 750 °C und 820 °C. Neben der InGaN-Lumineszenz zwischen 2,4 eV und 3,2 eV ist im niederenergetischen Bereich um 2,2 eV die spektral breite gelbe Störstellenlumineszenz und um 3,4 eV die bandkantennahe Emission zu sehen.

700 °C und 750 °C überwachsen wurden zeigen eine sehr intensive InGaN Quantenpunktlumineszenz. Der Peak verschiebt mit höherer Wachstumstemperatur leicht zu höheren Energien, was mit einer schnelleren Annäherung der entmischten InN-armen Phase an die Binodale oder mit der In-/InN-Desorption zusammenhängen kann. Eine weitere Erhöhung der Temperatur wirkt sich fatal auf die Lumineszenzeigenschaften aus. Die 820 °C-Deckschicht führt zu einer starken Reduktion der Intensität und zu einer erheblichen Verschiebung hin zu höheren Energien. Diese Charakteristika deuten auf die Zerstörung der Quantenpunktstrukturen und im Vergleich mit Abb. 3.11 auf die Bildung eines Quantenfilmes hin.

Der Bereich zwischen 700 °C und 750 °C ist somit geeignet für die Abscheidung der

¹Die Abscheidung fand statt auf einer 2 µm dicken n-dotierten c-Ebenen GaN-Schicht, welches auf einem Saphir-Wafer gewachsen wurde.

ersten Deckschicht auf die phasenseparierten InGaN-Strukturen. Niedrigere Temperaturen sind im Allgemeinen aufgrund der geringeren Kristallqualität eher nicht geeignet. Nichts desto trotz kann eine Niedrigtemperatur-Deckschicht von Vorteil sein, wenn die phasenseparierten Strukturen in einem frühen Stadium überwachsen und fixiert werden sollen. In Abschnitt 3.5 wurde diese Problematik bereits behandelt. Zu beachten ist, dass der Temperatursprung von z.B. 600 °C auf 700 °C nicht sofort geschehen kann. Um Beschädigungen des MOVPE-Heizsystems zu vermeiden wird Temperatur nicht schneller als 2 °C/s gesteigert.

4.3 Auflösung der InN-reichen Inseln und Bildung eines Quantenfilms

In Abschnitt 4.1 wurde gezeigt, dass die InN-Inseln stabil gegen ein Überwachsen mit GaN bei 700 °C sind. In der Literatur wird von der Auflösung von InN-Nanopunkten oberhalb von 700 °C berichtet [KCL07, CKY⁺08]. In diesem Abschnitt soll geklärt werden, was mit InN-reichen InGaN Inseln während des Deckschichtwachstums bei unterschiedlichen Temperaturen geschieht. Zusätzlich wird gezeigt, dass die InGaN Quantenpunkte schadlos überwachsen werden können.

Zwei Proben wurden hergestellt, bestehend aus einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht bei 600 °C, genauso wie die vorherigen Proben abgeschieden auf einer GaN/Saphir-Substrat. Nach einer vierminütigen Temperaturrampe wurde die erste Probe L bei 700 °C und die zweite Probe M bei 750 °C mit einer 7 nm dicken GaN-Schicht überwachsen. Es folgte eine weitere vierminütige Temperaturrampe auf 820 °C, das Umschalten von N_2 - auf H_2 -Atmosphäre inklusive einer 60 s dauernden Stabilisierung. Bei der sogenannten Hochtemperaturdeckschicht wurde 12 nm GaN während einer 200 s-Temperaturrampe von 820 °C auf 1050 °C abgeschieden. Abschließend wird unter optimalen Wachstumsbedingungen bei 1050 °C eine 24 nm GaN-Schicht abgeschieden. Der Atmosphärenwechsel und die Hochtemperaturdeckschicht tragen zur Verbesserung der Kristallqualität bei. Diese Schritte werden ausführlich in Abschnitt 4.6 besprochen.

In Abb. 4.4 sind die HRSTEM Z-Kontrast Bilder mit den entsprechenden farbkodierten Indium-Konzentrationen abgebildet. Beide Proben bestehen aus einer InGaN-Region, die unten durch das GaN-Substrat und oben durch die GaN-Deckschicht begrenzt wird. Die InGaN-Region ist mit 8-9 nm relativ breit, was zuerst überraschend erscheint, da Indium nur während der 1,5 nm dicken $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht angeboten wurde. Die phasenseparierten InN-armen InGaN Quantenpunkte sind in der untersten Schicht zu erkennen. Die Konzentrationsfluktuationen liegen in einem Bereich von 8-18 % von InN in InGaN. Hierbei muss beachtet werden, dass der Durchmesser der Quantenpunkte kleiner als die Probendicke von 60-110 nm sind, d.h. es wird unter Umständen über mehrere Quantenpunkte und die GaN-Zwischenbereiche gemittelt. Deshalb kann die maximale InN-Konzentration in den Quantenpunkten höher als 18 % liegen.

Die InN-reichen InGaN Inseln (siehe Abb. 3.1) sind nicht mehr in diesen Proben vorhanden. Wie schon vermutet haben sich die Strukturen während der Temperaturrampen beim Wachstum der zweiten Deckschicht aufgelöst. Das InN der Inseln hat einen zusätzlichen InGaN Quantenfilm gebildet. Die InGaN-Schichten über den Quanten-

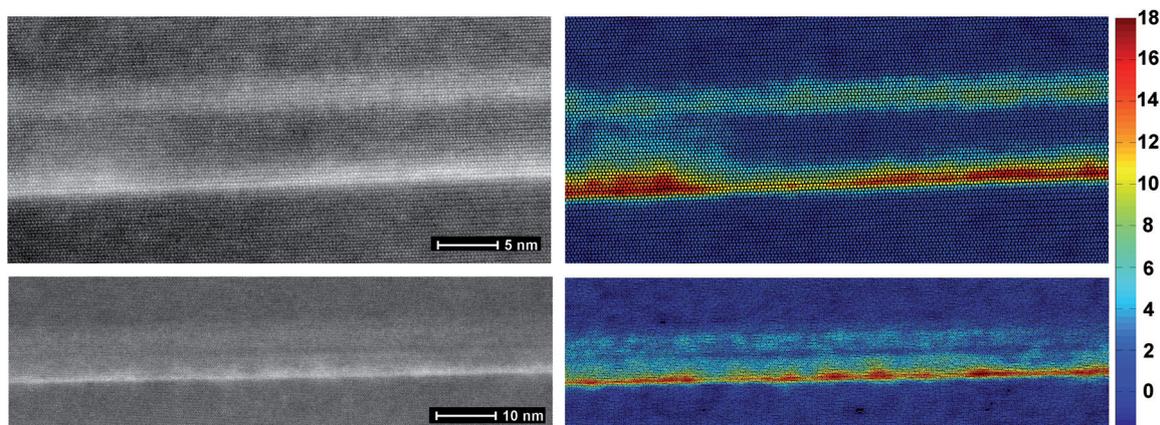


Abbildung 4.4: Dargestellt sind HRSTEM Z-Kontrast Bilder (links) und die farb-kodierten InN-Konzentrations-Karten (rechts) der mit GaN überwachsenen phasenseparierten InGaN-Strukturen. In der oberen Zeile befinden sich die Ergebnisse der Probe L (700 °C) und in der unteren Zeile die der Probe M (750 °C). Die Wachstumsrichtung ist von unten nach oben, d.h. unten ist das GaN-Substrat, oben ist die GaN-Deckschicht. Die Messungen und die Auswertungen wurden von Herrn Professor Rosenauer durchgeführt.

punkten haben einen relativ niedrigen InN-Gehalt, wobei die Verteilung im Vergleich zu den Quantenpunkten sehr homogen ist. Die Dicke und Position des Quantenfilmes ist bei beiden Proben unterschiedlich.

Bei Probe L sind Quantenpunktschicht und Quantenfilm räumlich von einer GaN-Schicht getrennt. Der InN-Gehalt im Quantenfilm beträgt 6 %. Die Konzentration ist homogen, es sind keine Fluktuationen wie in der Quantenpunktschicht zu erkennen. Die Dicke der GaN-Schicht entspricht etwa 5-7 nm, was mit der Schichtdicke der bei 700 °C abgeschiedenen Schicht in guter Näherung übereinstimmt. Während des Wachstums der GaN-Deckschicht bei 700 °C wurde kein InN in die Schicht eingebaut. Das bedeutet, dass die InN-reichen InGaN-Inseln bei Temperaturen von 700 °C stabil sind. Erst während der Rampe von 700 °C auf 820 °C werden die Inseln instabil, lösen sich auf und desorbieren zurück in die Gasphase oder verteilen sich auf der Oberfläche. Beim Wachstumsstart der Hochtemperaturdeckschicht bei 820 °C werden die noch auf der Oberfläche befindlichen InN-Reste in die Schicht eingebaut, so dass sich der von der Quantenpunktschicht separierte Quantenfilm bildet.

Bei der Probe M ist der Quantenfilm im direkten Kontakt mit der Quantenpunktschicht. Die InN-Konzentration ist homogen verteilt mit 8 %. Die Dicke des Quantenfilmes beträgt 7 nm was der beabsichtigten Dicke der GaN-Deckschicht entspricht, d.h. InN wurde während des kompletten Wachstums der GaN-Deckschicht bei 750 °C eingebaut. Dies bedeutet, dass sich die InN-Inseln bei 750 °C beginnen aufzulösen.

Ein detaillierter Blick in die InN-Verteilung des Quantenfilmes der Probe M in Abb. 4.5 (links) zeigt, dass sich in der Mitte eine Region niedrigeren InN-Gehaltes gebildet hat (dies ist auch in Abb. 4.4 rechts unten zu sehen). Diese Region ist nicht mit der GaN-Zwischenschicht der anderen Probe L zu verwechseln. Der Grund für das Konzentrationsminimum ist der Temperaturverlauf während des Deckschichtwachstums,

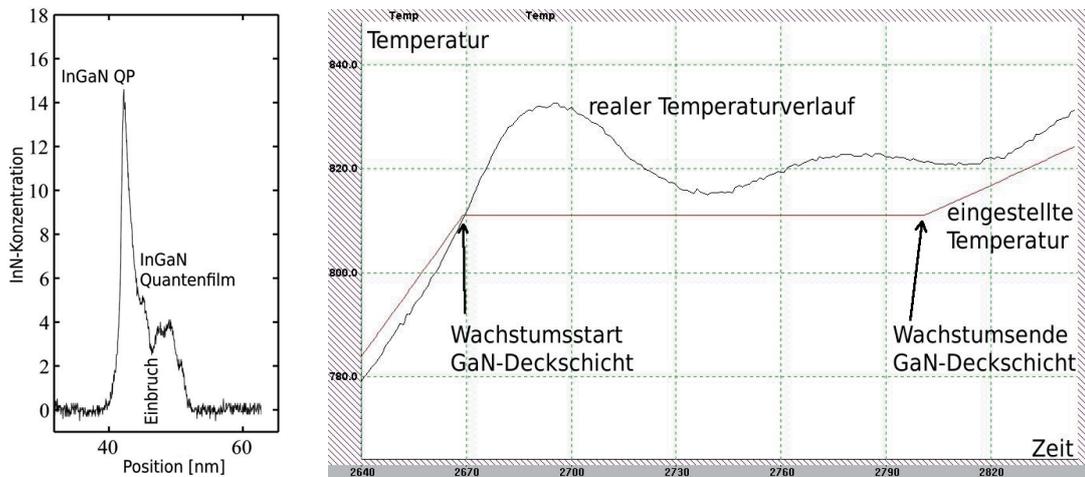


Abbildung 4.5: InN-Konzentration parallel zur Wachstumsrichtung (links) und das reale Temperaturprofil während des Wachstums der GaN-Deckschicht (rechts) für Probe M. Die reale Temperatur berechnet sich in diesem Temperaturbereich aus der Temperatur des Thermoelements minus ca. 70 °C. Die linke Graphik ist von Prof. Andreas Rosenauer erstellt worden.

welcher in Abb. 4.5 (rechts) abgebildet ist. Der Temperaturverlauf ist nicht konstant, es zeigt aufgrund der PID-Regelung² ein gedämpftes Schwingungsverhalten. Bei Wachstumsstart ist die Temperatur noch 10 °C unter dem Sollwert von 750 °C, schnell jedoch über den Sollwert hinaus und erreicht nach etwa 25 s die maximale Temperatur von etwa 762 °C. Danach fällt die Temperatur wieder ab, um nach 70 s das Minimum bei 745 °C zu durchlaufen. Bis zum Ende des Deckschichtwachstums nach 132 s stabilisiert sich die Temperatur bei 751-752 °C.

In der InGaN Quantenfilmschicht gibt es eine Korrelation zwischen Temperatur und InN-Konzentration (siehe Abb. 4.5 rechts). Jedoch verhält es sich umgekehrt, wie man es von dem temperaturabhängigen In-Einbau (höhere Temperatur reduziert den In-Einbau in der InGaN-Schicht, siehe Abschnitt 1.2) erwarten würde. Diese thermodynamischen Effekte scheinen in diesem Temperaturbereich nicht zu dominieren als viel mehr die Auflösung der InN-Inseln. Kleine Temperaturvariationen um 750 °C wirken sich kritisch auf die Auflösung aus. Das Temperaturminimum nach 70 s bei 745 °C führt zu einer reduzierten Auflösung der InN-Inseln, so dass weniger Indium für den Einbau in den Quantenfilm zur Verfügung steht. Im Anschluss steigt die Temperatur wieder leicht, der Auflösungsprozess der Inseln ist erhöht, wodurch wieder mehr Indium über die Oberfläche diffundieren und in den Quantenfilm eingebaut werden kann. Schließlich haben sich die InN-Inseln komplett aufgelöst, das Indium-Reservoir ist erschöpft, so dass kein Indium in den Quantenfilm eingebaut werden kann und der InN-Gehalt reduziert sich auf Null.

Optische Untersuchungen an den Proben L und M zeigen, dass spektral scharfe Emissionslinien in der μ -PL detektiert werden können. Die Spektren der beiden Proben sind in Abb. 4.6 abgebildet. Die Emissionslinien zeigen, dass die Quantenpunkte, die in den

²PID ist die Abkürzung für Proportional-Integral-Differential

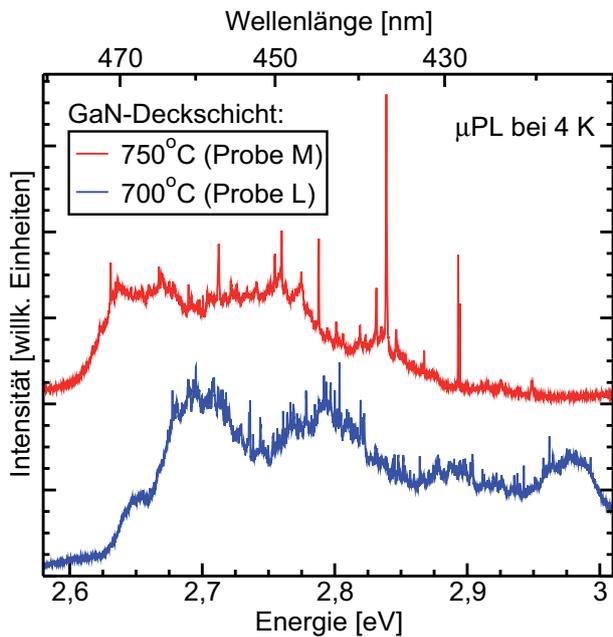


Abbildung 4.6: μ -PL-Spektren der Proben L und M, die sich in ihrer GaN-Deckschicht-Wachstumstemperatur unterscheiden. Spektral scharfe Emissionslinien von einzelnen InGaN Quantenpunkten können detektiert werden. Die Spektren wurden von Moritz Seyfried gemessen.

TEM-Untersuchungen in Abb. 4.4 zu sehen sind, optisch aktiv sind. Die Einzellinien stechen aus einem breiten Untergrund hervor. Die Ursache für den Untergrund könnte die hohe Dichte an Quantenpunkten sein. Weiterhin ist möglich, dass die laterale Größe der Quantenpunkte stark variiert, da nicht alle Quantenpunkte separiert sind, sondern teilweise zusammenhängende meanderartige Strukturen bilden, wie es in Abb. 3.1 gezeigt ist. Größere InGaN-Gebiete wirken wie ein Quantenfilm und zeigen eine spektral verbreiterte Emission.

Die macro-PL-Spektren bei Raum- und Tieftemperatur geben Aufschluss über die optische Aktivität der Quantenpunkte und der Quantenfilme. Die Spektren sind in Abb. 4.7 dargestellt. Bei der Probe L ist bei Tieftemperatur-Emission der Quantenpunkte im Bereich zwischen 430-520 nm zu sehen. Bei 390 nm dominiert die InGaN Quantenfilmlumineszenz das Spektrum. Der zusätzliche Quantenfilm, welcher sich durch die Auflösung der InN-reichen InGaN-Inseln gebildet hat, ist optisch aktiv. Das RT-Spektrum der Probe offenbart den Vorteil von Quantenpunkten zu Quantenfilmen: während nun die InGaN Quantenpunktlumineszenz das Spektrum dominiert, ist die Quantenfilmlumineszenz nicht mehr detektierbar. Durch die höhere Temperatur erhöht sich die Mobilität der Ladungsträger, die sich im Quantenfilm in zwei Dimensionen uneingeschränkt bewegen können, bis sie z.B. Defekte erreichen und dort nicht-strahlend rekombinieren. Der Einschluss der Ladungsträger in Quantenpunkten ist dreidimensional, Defekte können nicht ohne weiteres erreicht werden. Dies ist nur möglich, wenn der Ladungsträger über thermische Energie aus dem Quantenpunktzustand in höhere kontinuierliche Zustände angeregt wird, so dass keine Energie-Barriere vorhanden ist, um in die Umgebung zu diffundieren.

Bei der 750 °C-Probe M ist bei dem Tieftemperatur-Spektrum neben der GaN-Lumineszenz nur Lumineszenz von den InGaN Quantenpunkten zu sehen. Von dem Quantenfilm ist keine Lumineszenz detektierbar. Der Grund liegt in dem direkten Kontakt zwischen den Quantenfilm und den Quantenpunkten. Die Ladungsträger können aus dem Quantenfilm in die Quantenpunkte relaxieren und dort unter Aussendung eines Photons

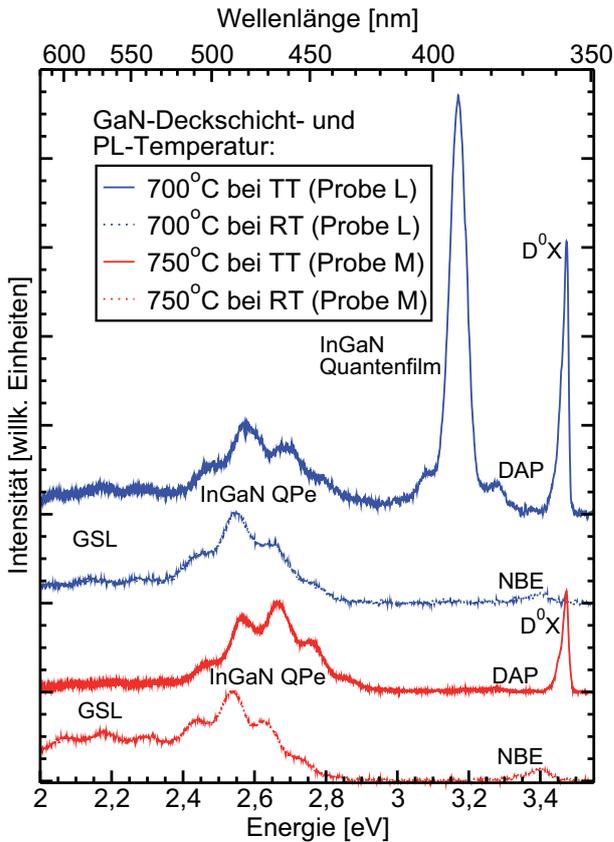


Abbildung 4.7: Macro-PL-Spektren bei Tieftemperatur (TT; entspricht 10 K) und RT der bei 700 °C und 750 °C überwachten Proben. Neben der Quantenpunkt-(QP-)lumineszenz im Bereich von 430-520 nm und der Quantenfilmlumineszenz bei 390 nm ist im niederenergetischen Bereich die gelbe Störstellenlumineszenz (GSL) und im höherenergetischen Bereich die Donator-Akzeptor-Rekombination (DAP) sowie die bandkanten nahe Emission (NBE) und das D⁰X zu sehen (siehe dazu auch Abschn. 2.2.1).

rekombinieren. Bei der 700 °C-Probe ist dies nicht der Fall, da die GaN-Barriere eine Relaxation der Ladungsträger aus dem Quantenfilm in die Quantenpunkte verhindert. Näheres zu dem Einfluss der GaN-Barriere auf die Quantenfilmlumineszenz wird in Abschnitt 4.4 gezeigt. Ein weiterer Grund, dass die 750 °C-Probe keine Quantenfilmlumineszenz abstrahlt könnte die Dicke des Filmes sein, die mit 7 nm relativ dick ist. Der QCSE führt zu einer starken räumlichen Separation der Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern, so dass die Wahrscheinlichkeit für strahlende Rekombination sehr gering ist.

Der Vergleich des Tief- mit dem Raumtemperaturspektrum zeigt, dass auch bei dieser Probe noch genügend Lumineszenz der Quantenpunkte detektierbar ist. Quantenpunkte sind somit unter optischer Anregung geeigneter für Raumtemperaturanwendungen als Quantenfilme.

4.4 Variation der Dicke der GaN-Deckschicht

Im vorigen Abschnitt wurde gezeigt, dass sich durch Auflösung der InN-reichen InGaN-Inseln ein Quantenfilm oberhalb der Quantenpunktlage bildet. Für Proben, die bei 700 °C überwacht wurden, befindet sich eine GaN-Barriere zwischen Quantenpunktschicht und Quantenfilm, weswegen der Film optisch aktiv ist. Die optische Aktivität des Filmes kann von Vorteil sein, wenn z.B. eine vielfarbige LED hergestellt werden soll, ist aber für reine Quantenpunktanwendungen nachteilig. In diesem Abschnitt soll gezeigt werden, wie die optische Aktivität des Quantenfilms unterdrückt werden kann.

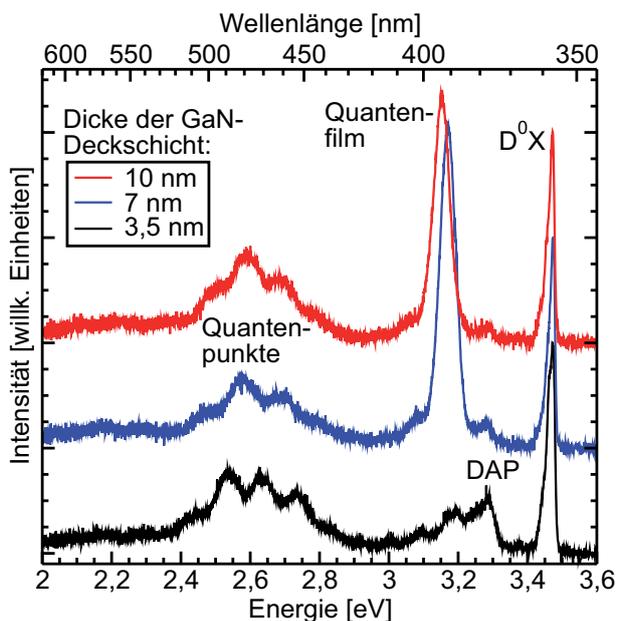


Abbildung 4.8: PL-Spektren bei 10 K von drei Proben mit unterschiedlichen GaN-Deckschichtdicken. Bis auf die 3,5 nm-Probe, die keine Quantenfilmlumineszenz aufweist, sind die Spektren sehr ähnlich. Die Spektren sind auf den D^0X normiert weswegen die Intensitäten der einzelnen Spektren nicht miteinander vergleichbar sind. Die weiteren Bereiche des Spektrums sind in Abschnitt 2.2.1 erläutert.

Drei Proben wurden hergestellt, jeweils mit einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht bei 600°C und mit einer Variation der GaN-Deckschichtdicke von 3,5 nm, über 7 nm bis 10 nm. Die Wachstumstemperatur der GaN-Schicht betrug 700°C . Bei der 7 nm-Probe handelt es sich um die Probe L aus dem vorigen Abschnitt. Zusätzlich wurden die Proben wie bei Probe L mit einer 36 nm GaN-Schicht überwachsen, 12 nm während einer Temperaturrampe von 820°C auf 1050°C und 24 nm bei 1050°C .

Die PL-Spektren, aufgenommen bei 10 K, sind in Abb. 4.8 dargestellt. Alle Proben weisen Quantenpunktlumineszenz um 480 nm auf. Die spektrale Position der Quantenpunkte verändert sich nicht, die Dicke der GaN-Deckschicht hat keinen Einfluss auf die Quantenpunkte. Bei der 3,5 nm-Probe ist keine Lumineszenz des Quantenfilms im Spektrum zu sehen, es sind lediglich Donator-Akzeptor-Paarrekombination und ihre Phononen-Repliken von 3,3 eV bis 3,1 eV zu erkennen. Die 7 nm-Probe und 10 nm-Probe zeigen starke Lumineszenz des Quantenfilmes bei jeweils 390 nm und 393 nm. Der Grund für die Nichtaktivität der 3,5 nm-Probe liegt in der räumlichen Nähe des Quantenfilmes zur Quantenpunktschicht. Die Ladungsträger des Quantenfilmes können aufgrund der niedrigen Distanz durch die GaN-Barriere in die Quantenpunkte tunneln. Eine strahlende Rekombination findet somit nicht im Quantenfilm, sondern nur in den Quantenpunkten statt.

Diese Information ist für die Herstellung von Stapelschichten wichtig. Bei Mehrfach-Quantenpunktschichten sollte somit der Abstand zwischen den Schichten größer als 3,5 nm sein, um ein Tunneln der Ladungsträger durch die GaN-Barriere zu verhindern. Dies würde zu einer Erhöhung der Lebensdauer der angeregten Ladungsträger und somit zur Verringerung der Effizienz eines Bauelements führen.

4.5 Einfluss von InGaN-Deckschichten auf die Emissionswellenlänge

In diesem Abschnitt soll der Einfluss von unterschiedlichen Deckschichten auf die InGaN Quantenpunkte untersucht werden. Hierbei wurde beim Wachstum der ersten GaN-Deckschicht zusätzlich Indium angeboten. Drei Proben wurden untersucht, bei denen die $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schichten zur Bildung der Quantenpunkte bei $650\text{ }^\circ\text{C}$ und die Deckschicht bei $700\text{ }^\circ\text{C}$ abgeschieden wurde. Bei der ersten Probe betrug das $\text{In}/(\text{In}+\text{Ga})$ -Gasphasenverhältnis während des Wachstums der Deckschicht $0,21$, bei der zweiten Probe $0,09$. Die Deckschicht der dritten Probe bestand aus reinem GaN.

In Abb. 4.9 sind die RT-PL-Spektren der drei Proben dargestellt. Das Emissionsmaximum schiebt mit zunehmenden InN-Gehalt in der Deckschicht zu höheren Wellenlängen. Es ist somit möglich, die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte über den InN-Gehalt der Deckschicht in einem gewissen Rahmen einzustellen.

Beim Wachstum der InGaN-Deckschicht ist es für das Indium aus der Gasphase günstiger, sich an den InGaN Quantenpunkten anzulagern als auf der GaN-Oberfläche. Umgekehrt ist es für das Gallium günstiger, sich auf der GaN-Oberfläche abzuscheiden, da die Gitterkonstantenunterschiede so gering gehalten werden. Es wird angenommen, dass dadurch die Quantenpunkte leicht an Größe gewinnen. Damit kommt es zu einem reduzierten Quanten-Größen-Effekt sowie einem gesteigerten QCSE. Beide Effekte führen zu einer Verschiebung der Emission zu längeren Wellenlängen. Ob es tatsächlich zu einer Größenänderung der Quantenpunkte gekommen ist, ließe sich mit TEM-Untersuchungen klären, die aber nicht durchgeführt wurden.

Jedoch ist es für den Ladungsträger einschluss nachteilig, wenn die InGaN Quantenpunkte von einer InGaN-Schicht anstelle von einer GaN-Schicht umgeben sind. Der PL-Vergleich von Proben mit InGaN Quantenpunkten im oder nicht im direkten Kontakt mit einer InGaN-Schicht (wie es in Abb. 4.4 dargestellt ist) zeigt, dass die Quantenpunkte, die in GaN eingeschlossen sind wesentlich temperaturstabilere PL zeigen

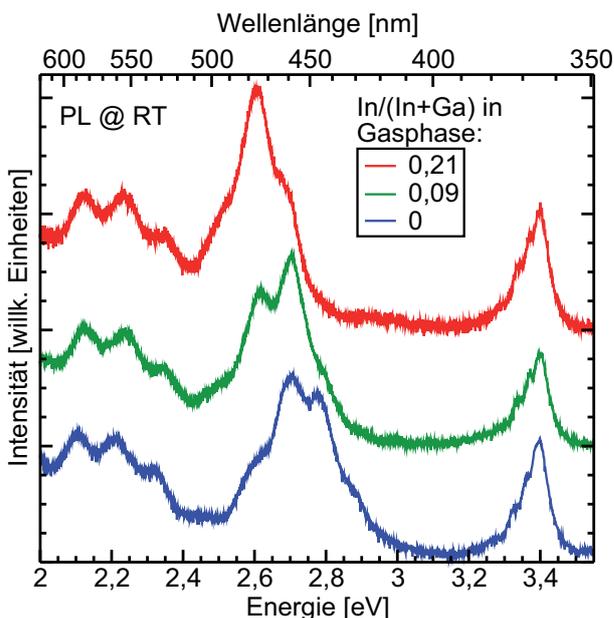


Abbildung 4.9: Dargestellt sind die PL-Spektren von Proben, die mit einer GaN- bzw. unterschiedlichen InN-Gehalten in der InGaN-Deckschicht hergestellt wurden. Im niederenergetischen Bereich ist die gelbe Störstellenlumineszenz sowie im höherenergetischen Bereich die bandkantennahe Emission zu sehen.

als die Quantenpunkte im direkten Kontakt mit einer InGaN-Schicht. Bei RT sind von der Probe mit den in GaN eingeschlossenen Quantenpunkten noch 36 %³ der Quantenpunktlumineszenz detektierbar, während bei der Probe mit Quantenpunkten, die oberhalb mit InGaN bedeckt sind, die Intensität auf 19 % abgesunken sind. Die geringe Potentialdifferenz zwischen den InGaN Quantenpunkten und darüberliegenden InGaN Quantenfilm führt dazu, dass bei thermischer Anregung die Ladungsträger leicht aus den Quantenpunkten in den Quantenfilm entkommen können. Bei den in GaN eingebetteten Quantenpunkten ist der Einschluss hoch, so dass die Ladungsträger stärker im Quantenpunkt gebunden sind, und somit mehr Lumineszenz bei Raumtemperatur beobachtet werden kann.

4.6 Optimierung der zweiten GaN-Deckschicht

Das Wachstum einer qualitativ hochwertigen GaN-Schicht benötigt in der Regel eine Wachstumstemperatur um 1050 °C in einer H₂-Atmosphäre. Die hohen Temperaturen und die H₂-Atmosphäre sind für das Wachstum von InGaN nicht geeignet, da Indium sofort wieder in die Gasphase desorbiert wird und nicht in den Kristall eingebaut werden kann. In der Regel findet das Wachstum von InGaN bei Temperaturen (weit) unterhalb von 900 °C in einer N₂-Atmosphäre statt. In diesem Abschnitt wird der Einfluss von Atmosphäre und Temperatur während des Wachstums der zweiten GaN-Deckschicht untersucht. Die wesentlichen Ergebnisse dieses Abschnittes finden sich auch in kompakter Form in [TYFH09].

4.6.1 Einfluss der Atmosphäre

Drei Proben wurden nach dem "Zwei-Stufen-Wachstumsmodus" (siehe Abschn. 3.6) hergestellt, die aus dreifach gestapelten Nukleations- und Formationsschichten bestehen. Der Aufbau der Proben ist in Abb. 4.10 schematisch dargestellt. Die 1,5 nm dicke Nukleationsschicht wurde bei 650 °C abgeschieden. Der InN-Gehalt betrug nominell 72 %⁴. Nach einer zweiminütigen Wachstumsunterbrechung inklusive Temperaturrampe, wurde die InGaN-Formationsschicht mit einer Dicke von 7 nm und mit einem relativ niedrigen InN-Gehalt von nominell 21 % bei 700 °C abgeschieden. Das Wachstum von Nukleations- und Formationsschicht fand unter N₂-Atmosphäre statt. Anschließend folgte eine erneute Temperaturrampe auf 820 °C, wonach eine 12 nm dicke GaN-Schicht abgeschieden wurde. Diese Wachstumsprozedur wurde dreimal durchgeführt und abschließend mit einer 24 nm dicken GaN-Schicht bei 820 °C bedeckt. Die drei Proben unterscheiden sich bezüglich der Atmosphäre beim Wachstum der GaN-Zwischenschichten und der GaN-Abschlusschicht. Die betreffenden Schichten wurden bei der ersten Probe unter N₂, bei der zweiten unter einer H₂/N₂-Mischatmosphäre und bei der dritten Probe unter reiner H₂-Atmosphäre gewachsen.

³Vergleich der Quantenpunktlumineszenz bei 10 K und Raumtemperatur

⁴Dieser InN-Gehalt ist für die Bildung von Quantenpunkten nach dem Phasenseparationsprozess durch spinodaler Entmischung zu gering. Dennoch kommt es in Stapelschichten zur Bildung von Quantenpunkten. Der Grund wird ausführlich in Abschnitt 3.6 besprochen.



Abbildung 4.10: Aufbau der Proben im Zwei-Stufen-Wachstumsmodus. Auf die 1,5 nm InGaN-Nukleations-schicht (NS) folgt die 7 nm InGaN-Formationsschicht (FS) und die 12 nm GaN-Zwischenschicht (ZS). Diese drei Schichten wurden dreifach gestapelt und jeweils mit einer 24 nm GaN-Abschlusschicht (AS) überwachsen.

In Abb. 4.11 sind REM-Bilder der jeweiligen Oberfläche der drei Proben dargestellt. Die N_2 -Probe weist eine sehr raue Oberfläche auf, es sind keine ebenen Bereiche zu erkennen. Gebirgskettenartige Strukturen überziehen die Oberfläche. Das Wachstum von mehrfach gestapelten Schichten unter derartigen Bedingungen ist sehr ungünstig, da nicht die gleichen Oberflächenbedingungen für alle weiteren Schichten verglichen mit der ersten Schicht vorhanden sind.

Die H_2/N_2 -Probe weist eine etwas verbesserte Oberflächenstruktur auf, es ist eine ebene Abschlusschicht zu erkennen. Jedoch ist die Oberfläche von einer Vielzahl von Löchern übersät. Auch hier sind die Bedingungen für das Wachstum von Mehrfach-Stapelschichten äußerst ungünstig.

Die H_2 -Probe zeigt eine deutlich verbesserte Oberfläche im Vergleich zu den anderen Proben. Die Anzahl der großen Löcher ist drastisch reduziert. Die Oberfläche erscheint verglichen mit den anderen Proben sehr eben, dennoch sind noch eine Vielzahl von kleinen Defekten auf der Oberfläche sichtbar. Der Grund für diese noch nicht ideale Oberfläche ist die relativ niedrige Wachstumstemperatur von 820 °C. Aus struktureller Sicht ist eine GaN-Schicht abgeschieden unter H_2 -Atmosphäre für das Stapeln von Quantenpunkten die Geeignetste.

Der Einfluss der unterschiedlichen Schichtqualitäten auf die Nukleationsschichten wird in den PL-Spektren in Abb. 4.12 dokumentiert. Die Spektren der Proben mit den GaN-Zwischenschichten und der GaN-Deckschicht unter reiner N_2 - und reiner H_2 -Atmosphäre weisen deutliche Unterschiede in der Emission auf. Während die Emission der H_2 -Probe einen einzelnen Peak mit einem Maximum bei 480 nm zeigt, ist in dem Spektrum der N_2 -Probe die Emission aufgespalten. Es ist ein relativ schwacher Peak bei 465 nm und ein starker bei 510 nm zu sehen. Auch, wenn die einzelnen Peaks nicht den Schichten zugeordnet werden können, zeigt es, dass eine homogene Emission nur unter reiner H_2 -Atmosphäre zu erreichen ist.

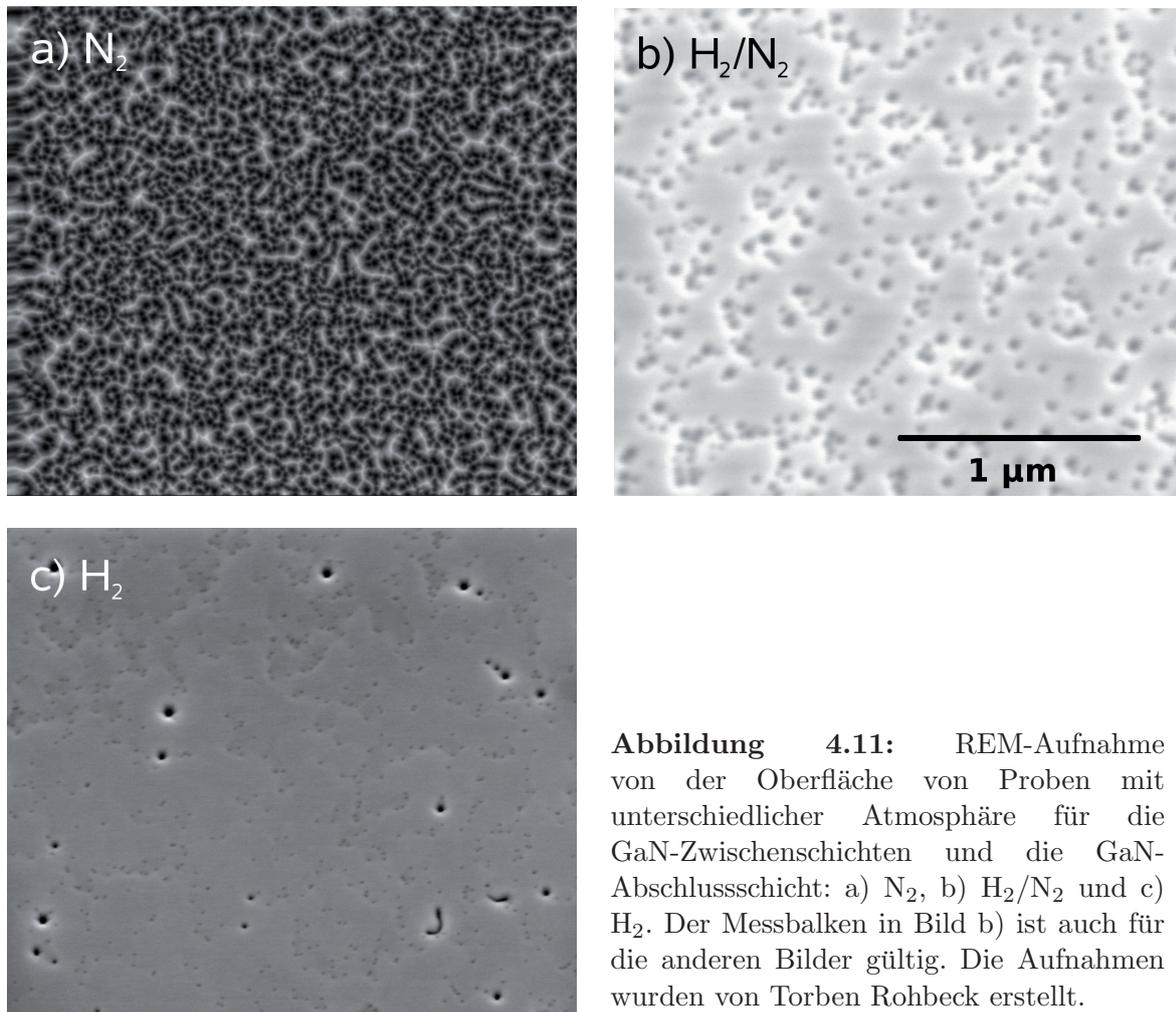


Abbildung 4.11: REM-Aufnahme von der Oberfläche von Proben mit unterschiedlicher Atmosphäre für die GaN-Zwischenschichten und die GaN-Abschlusschicht: a) N_2 , b) H_2/N_2 und c) H_2 . Der Messbalken in Bild b) ist auch für die anderen Bilder gültig. Die Aufnahmen wurden von Torben Rohbeck erstellt.

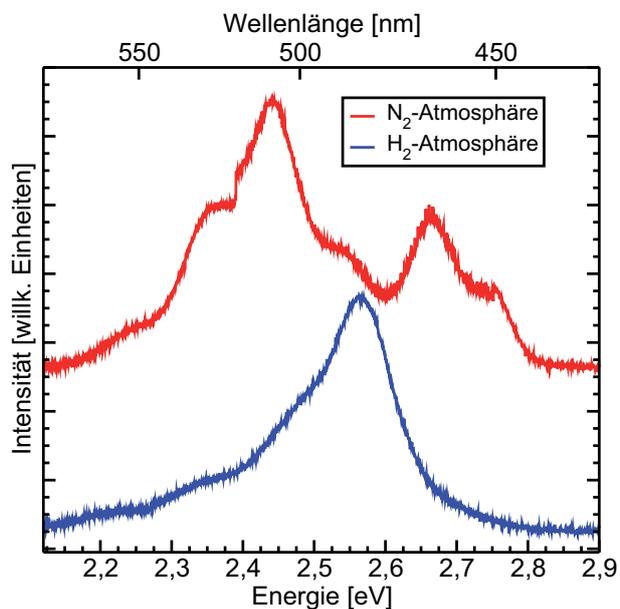


Abbildung 4.12: PL-Spektren der Proben, deren GaN-Zwischenschichten und GaN-Abschlusschicht unter N_2 - oder H_2 -Atmosphäre gewachsen wurde.

4.6.2 Wachstum einer Hochtemperatur-Deckschicht

Im vorigen Abschnitt hat sich gezeigt, dass der Wechsel von einer N₂- zu einer H₂-Atmosphäre nach der Bedeckung der InGaN Quantenpunkte zu einer signifikanten Verbesserung der Oberflächenqualität führt. Jedoch ist die Wachstumstemperatur von 820 °C zu niedrig, um eine hochwertige GaN-Schicht zu erhalten. Deshalb ist es notwendig, das Wachstum wieder bei 1050 °C durchzuführen. Dabei muss beachtet werden, dass sich die InGaN-Quantenpunktstrukturen nicht nachträglich durch die hohen Temperaturen auflösen.

In mehreren Veröffentlichung wird berichtet, dass die Auflösung von Quantenpunktstrukturen durch niedrige Wachstumstemperaturen nach dem Wachstum von Quantenpunkten verhindert wird. Z.B. berichtet Zhang et al. [ZBG10] über das Wachstum der abschließenden Mg-dotierten GaN-Schicht bei 740 °C. In der Veröffentlichung von Chua et al. [CSL⁺08] beträgt die Wachstumstemperatur der Mg-dotierten GaN-Schicht 780 °C. Derart niedrige Temperaturen führen zu einer schlechten Kristallqualität, weswegen die Bauelemente nur mit geringer Leistung betrieben werden können, um eine Zerstörung zu verhindern.

Weiterhin problematisch ist die p-Aktivierung der durch Wasserstoff passivierten Mg-Donatoren. In unserer Arbeitsgruppe konnte gezeigt werden, dass sich mit einem schnellen thermischen Ausheizprozess oberhalb von 850 °C eine maximale Lochdichte einstellt [Den08]. Eine niedrigere p-Schicht-Wachstumstemperatur von 775 °C führt jedoch beim p-Aktivierungsprozess oberhalb von 830 °C zur Auflösung der Quantenpunktstrukturen [WWB⁺08].

In diesem Abschnitt wird gezeigt, dass mit Hilfe einer Temperaturrampe während des Wachstums eine Hochtemperatur-Deckschicht ohne die Auflösung der Quantenpunktstrukturen möglich ist.

Drei Proben wurden wie im vorigen Abschnitt nach dem “Zwei-Stufen-Wachstumsmodus” hergestellt. Dabei handelt es sich um Dreifachstapelproben, die den gleichen Aufbau wie in Abb. 4.10 haben. Variiert wurde lediglich die Wachstumstemperatur der abschließenden GaN-Deckschicht. Für die erste Probe N wurde die 36 nm dicke GaN-Abschlusschicht komplett bei 820 °C gewachsen. Bei der zweiten Probe O wurden zuerst 24 nm bei 820 °C, 5 nm während einer 90 s-Temperaturrampe von 820 °C auf 1050 °C und 12 nm bei 1050 °C abgeschieden. Bei der dritten Probe P wurden 12 nm während einer Wachstumsrampe von 820 °C auf 1050 °C und 24 nm bei 1050 °C gewachsen.

In Abb. 4.13 sind die PL-Spektren der drei Proben dargestellt. Alle Proben zeigen Lumineszenz bei 480 nm. Für die Probe O ist die Lumineszenz jedoch stark eingebrochen, woraus man schließen kann, dass die hohen Temperaturen die Quantenpunktschichten im Wesentlichen aufgelöst haben. Die Probe P jedoch zeigt wieder sehr intensive Lumineszenz, d.h. die hohen Temperaturen scheinen hier keinen Einfluss auf die Quantenpunktstrukturen zu haben.

Bei Probe O ist der Grund für die Reduzierung der Quantenpunktlumineszenz die 24 nm dicke defektreiche 820 °C-GaN-Schicht. Je dicker die Schicht ist, umso schlechter wird die Kristallqualität. Aufgrund der Defekte wird angenommen, dass es selbst in der bedeckten Struktur aufgrund der späteren hohen Temperaturen von 1050 °C zu einer hohen Mobilität der Atome im Kristall und somit zu einer starken Umordnung kommt.

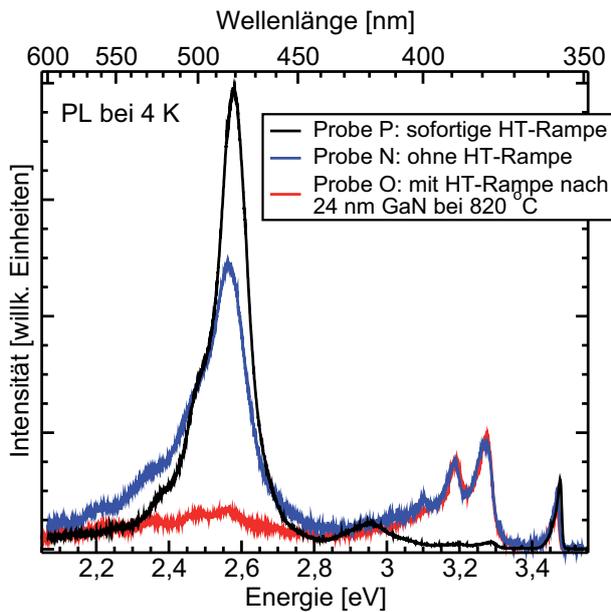


Abbildung 4.13: PL-Spektren der Proben, die ohne (Probe N), mit sofortiger (Probe P) und später Hochtemperatur-(HT-)Rampe (Probe O) gewachsen wurden. Die bandkanten nahe Emission des GaN ist bei 3,47 eV zu erkennen. Die Proben N und O zeigen relativ starke Aktivität des Donator-Akzeptor-Paarrekombination (DAP) inklusive der Phononenrepliken; bei Probe P ist diese nur ansatzweise zu erkennen. Bei Probe P ist eine zusätzliche Emission um 2,95 eV zu erkennen, die aufgrund der spektralen Lage wahrscheinlich von einem Quantenfilme verursacht wird.

Wahrscheinlich lösen sich die Quantenpunkte bei dem Hochtemperaturprozess auf. Wird die Temperatur jedoch früh auf hohe Werte um 1050 °C gebracht, d.h. die Schicht ist noch relativ defektarm, so ist die Mobilität gering und es gibt keine Möglichkeit zur Umordnung. Die Quantenpunkte bleiben erhalten und es kann problemlos weiter bei hohen Temperaturen gewachsen werden.

Ein Blick auf die DAP-Rekombination und den niederenergetischen Phononenrepliken zeigt, dass diese Art von Störstellenlumineszenz bei den Proben N und O recht dominant auftritt, jedoch lässt sie sich bei Probe P durch die Hochtemperatur-Rampe fast komplett unterdrücken. Dies weist darauf hin, dass sich diese Art von Störstellen durch den Hochtemperaturschritt vermeiden lassen. In Abschnitt 2.2.1 wurde darauf hingewiesen, dass die Ursache für die DAP-Rekombination vermutlich Si_{Ga} -, O_{N} -, Si_{N} - oder C_{N} -Störstellen sind. Die hohen Temperaturen können dazu führen, dass der Kohlenstoff bzw. der Sauerstoff aus dem Kristall desorbiert, bzw. dass das Silizium von einem Stickstoff- auf einen Galliumgitterplatz wechselt. Dadurch würde die DAP-Rekombination reduziert werden.

Durch die Temperaturrampe auf 1050 °C wird wieder die ursprüngliche Oberflächenqualität erreicht, wie es in Abb. 4.14 dargestellt ist. Die Oberfläche wurde mit dem AFM vermessen. Dabei handelt es sich um eine InGaN Quantenpunktschicht, die nach der oben genannten Methode bei hohen Temperaturen überwachsen wurde. Es sind die typischen terrassenförmigen Stufen zu erkennen. Zum Vergleich ist ein AFM-Bild der Oberfläche einer reinen GaN-Schicht dargestellt, die unter optimalen Bedingungen hergestellt wurde.

Die Temperaturrampen während des Wachstums können nicht nur in der GaN-Abschlusschicht, sondern auch in den GaN-Zwischenschichten bei Mehrfachstapelproben angewendet werden. Selbst eine Temperaturrampe während des Wachstums der ersten GaN-Deckschicht führt nicht zu einer Auflösung der InGaN Quantenpunkte (PL-Ergebnisse sind hier nicht aufgeführt). Dabei ist eine 2,5 nm dicke GaN-Deckschicht ausreichend, um die Quantenpunkte bei 1050 °C vor der Auflösung zu schützen.

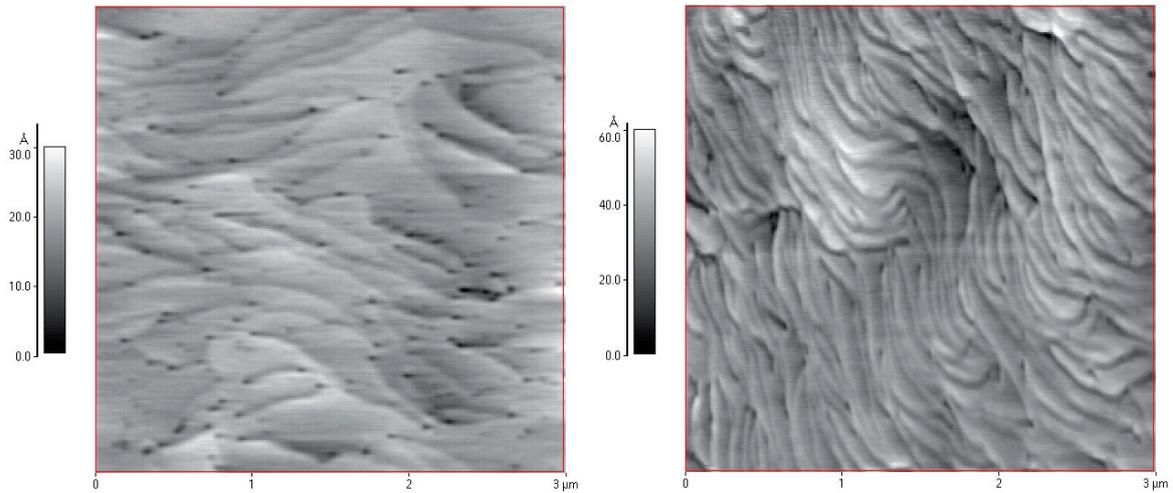


Abbildung 4.14: AFM von einer InGaN-Probe, die mit einer Hochtemperatur-GaN-Schicht nach einer Temperaturrampe überwachsen wurde (links) und zum Vergleich von einem GaN-Substrat (rechts). Die Oberflächenrauigkeit ist mit 0,28 nm für die InGaN-Probe etwas geringer als die 0,49 nm für das GaN-Substrat (aufgrund der stärkeren Oberflächenvariation ist bei der Berechnung der Rauigkeit nur die untere Hälfte des rechten Bildes berücksichtigt worden). Typische Defektstellen (wahrscheinlich Schraubenversetzungen) sind auf den Bildern als Löcher zu erkennen. Es wird wieder eine sehr gute Oberflächenqualität der GaN-Deckschicht vergleichbar mit einem GaN-Substrat eingestellt.

Abschließend soll demonstriert werden, dass sich die Hochtemperatur-GaN-Schicht schützend auf die Quantenpunkte auswirkt sowie die Stabilität von Bauelementen erhöht.

Zwei Proben mit überwachsenen InGaN Quantenpunkten, die erste mit einer 820 °C-GaN-Abschlusschicht und die zweite mit der Hochtemperatur-GaN-Abschlusschicht (Deckschichtdicke beträgt bei beiden Proben ca. 45 nm), wurden in einem Heizofen für 30 s bei 850 °C und für 300 s bei 600 °C ausgeheizt. Ein derartiger Ausheizschritt wird bei der p-Aktivierung der Mg-Akzeptoren durchgeführt. In Abb. 4.15 (links) sind die PL-Spektren von zwei Proben dargestellt, jeweils vor und nach der thermischen Behandlung. Die Lumineszenz bricht komplett ein, wenn die Quantenpunkte abschließend nur bei 820 °C überwachsen werden. Dieses Ergebnis ist in sehr guter Übereinstimmung mit [WWB⁺08]. Die Probe mit der Hochtemperatur-GaN-Deckschicht zeigt nur geringe Degradierung der PL. Die Quantenpunkte sind durch die Hochtemperaturschicht im Wesentlichen geschützt.

In Abb. 4.15 (rechts) sind die I-V-Kurven von zwei LEDs dargestellt, welche auf identische Weise prozessiert wurden. Bei der ersten bzw. zweiten LED wurde die p-dotierte GaN-Schicht bei 820 °C bzw. 1050 °C abgeschieden. Die Einschaltspannung der 820 °C-Probe ist mit ca. 8 V fast doppelt so hoch verglichen mit 4 V der 1050 °C-Probe. Die I-V-Kurve der Niedrigtemperaturprobe bricht bei 93 A/cm² ein, das Bauelement ist durch die Ströme irreversible beschädigt. Nach der Zerstörung des Bauelements zeigt sich keine Dioden- sondern eine ohmsche Strom-Spannungs-Charakteristik. Die

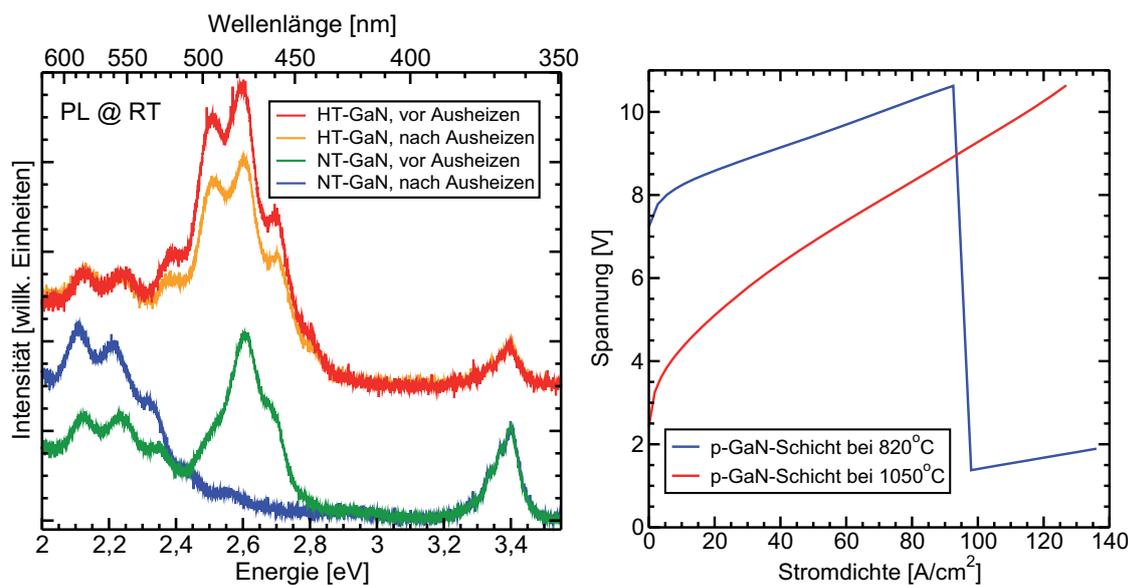


Abbildung 4.15: Links: PL-Spektren von Proben vor und nach einer Behandlung mit einem Ausheizzschritt, welcher bei der p-Aktivierung von Mg-Akzeptoren angewendet wird. Verglichen wurde eine Hochtemperatur-(HT-)Probe (GaN-Deckschicht bei 1050 °C) mit einer Niedrigtemperatur-(NT-)Probe (GaN-Deckschicht bei 850 °C). Rechts: Strom-Spannungskurven von LEDs, bei denen die p-GaN-Schicht bei 820 °C bzw. 1050 °C gewachsen wurde.

Hochtemperatur-LED ist selbst bei hohen Strömen noch betreibbar.

Die Hochtemperatur-GaN-Deckschicht ist essentiell für den Betrieb von langlebigen und bei hohen Strömen robusten Bauelementen. Diese Schichten eignen sich somit auch für Laseranwendungen, da in diesen Bauelementen in der Regel eine relativ hohe Schwellstromdichte benötigt wird.

Zusammenfassung des Kapitels

Dieses Kapitel hat sich mit dem Wachstum einer Deckschicht auf die InGaN Quantenpunkte befasst. Die InGaN Quantenpunkte können bei 700 °C und 750 °C überwachsen werden. 820 °C führt jedoch zur Auflösung der Quantenpunktstrukturen. Es hat sich gezeigt, dass die InN-reichen Inseln selbst nach einer 20 nm dicken GaN-Deckschicht nicht komplett überwachsen lassen. Die Inseln lösen sich bei Temperaturen oberhalb von 750 °C auf und bilden zusammen mit den GaN des Deckschichtwachstums einen InGaN Quantenfilm. InGaN Quantenpunkte konnten mit HRSTEM-Untersuchungen und μ -PL-Messungen in den Proben nachgewiesen werden. Die Wachstumstemperatur sowie die Dicke der GaN-Deckschicht haben Einfluss auf das Auftreten der Quantenfilmlumineszenz im PL-Spektrum. Mit InGaN-Deckschichten kann die Wellenlänge in einem kleinen Wellenlängenbereich von etwa 20 nm eingestellt werden. Die zweite GaN-Deckschicht sollte unter H_2 -Atmosphäre und bei hohen Temperaturen gewachsen werden, um eine qualitativ hochwertige Schicht zu erhalten.

5 Elektrisch betriebene Lichtemitter auf Basis von InGaN Quantenpunkten

Dieses Kapitel wird sich ausführlich mit der Anwendung von InGaN Quantenpunkten in Licht emittierenden Strukturen beschäftigen. Im Fokus ist der elektrische Betrieb von LEDs und es wird gezeigt, dass InGaN Quantenpunkte prinzipiell erfolgreich in Laserdioden und Kavitätsstrukturen eingesetzt werden können.

5.1 InGaN Quantenpunkt LEDs

Im folgenden Abschnitt werden LED-Strukturen mit InGaN Quantenpunkten als aktives Material diskutiert. Es wird u.a. diskutiert, wie sich die Emissionswellenlänge der Bauelemente einstellen lässt und inwiefern Stapelschichten zu einer Erhöhung der Ausgangsleistung führen können. Eine mehrfarbige LED wird präsentiert.

Aufbau der epitaktischen Schichten

Der Aufbau der epitaktischen Schichten einer LED ist in Abb. 5.1 dargestellt. Auf dem Saphir-Substrat ist eine 2 μm dicke n-dotierte GaN-Schicht aufgetragen. Details zur Nukleation und zum Wachstum von GaN auf *c*-Ebenen Saphir finden sich in [Bö02, Fig03]. Auf diesem Puffer befinden sich die Quantenpunkte, welche durch Phasenseparation aus der $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht entstehen. Die Quantenpunkte werden mit einer intrinsisch leitenden (i-)GaN-Deckschicht überwachsen. Durch die Auflösung der InN-reichen InGaN-Inseln entsteht ein nicht beabsichtigter Quantenfilm innerhalb der Deckschicht

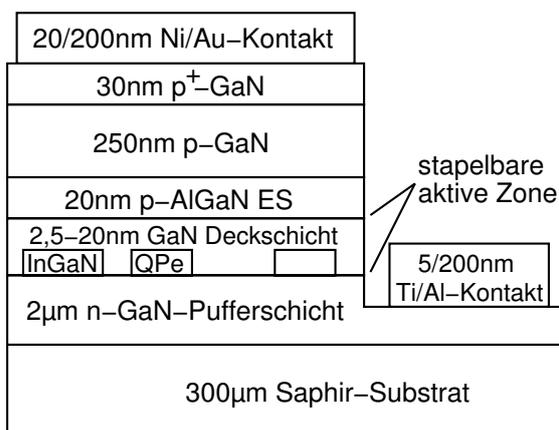


Abbildung 5.1: Probenaufbau einer LED. Die Elektronen-Sperrschicht ist mit ES, die Quantenpunkte mit QPe abgekürzt.

(siehe Abb. 4.4), welcher in dem Schema nicht eingezeichnet ist, bei der Diskussion der Ergebnisse jedoch berücksichtigt werden muss. Über der je nach Wachstumsrezept 2,5-20 nm dicken i-GaN-Deckschicht folgt eine 20 nm p-dotierte $\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$ -Schicht, welche als Elektronen-Sperrschicht (ES) dient. Darauf folgt eine p-dotierte GaN-Schicht, welche mit einer hoch-p-dotierten 30 nm dicken GaN-Schicht abschließt. Die gesamte Dicke des p-dotierten Bereichs beträgt 300 nm.

Die Prozessierung der Bauelemente erfolgt nach Abschnitt 2.2.2. Das fertige Bauelement hat einen p-seitigen Ni/Au-Kontakt und einen n-seitigen Ti/Al-Kontakt.

5.1.1 Variation der Emissionswellenlänge

In Abschnitt 4.5 wurde gezeigt, dass durch das Wachstum von InGaN-Deckschichten die Emissionswellenlänge je nach InN-Gehalt in der Deckschicht in einem schmalen spektralen Bereich kleiner 30 nm eingestellt werden kann. Dies ist jedoch nachteilig, da das umgebende InGaN die Austrittsarbeit für einen Streuprozess der Ladungsträger aus dem Quantenpunkt verringert, was sich negativ auf die Lichtausbeute bei Raumtemperatur auswirkt. In diesem Abschnitt wird eine effizientere Methode zur Einstellung der Emissionswellenlänge von InGaN quantenpunkt-basierten Lichtemittern, nämlich der Quanten-Größen-Effekt diskutiert. Die drei nach dem Schema in Abb. 5.1 hergestellten Proben unterscheiden sich lediglich in der Wachstumszeit des InGaN. Bei einem NH_3 -Fluss von 3000 sccm und einem molaren Fluss von 28,63 $\mu\text{mol}/\text{min}$ für TMI und 6,37 $\mu\text{mol}/\text{min}$ für TMG betrug die Wachstumszeit jeweils 10 s, 14 s und 18 s. Dies entspricht jeweils einer Schichtdicke von nominell 1,7 nm, 2,3 nm und 3 nm. Die InGaN-Schichten wurden bei 750 °C überwachsen, d.h. das sich nach den TEM-Ergebnissen aus Abb. 4.4 ein Quantenfilm gebildet hat, welcher im direkten Kontakt mit den Quantenpunkten ist.

Die Elektrolumineszenzspektren dieser Proben sind in Abb. 5.2 dargestellt. Mit zunehmender Wachstumszeit, d.h. mit zunehmender Dicke der InGaN-Schicht und der daraus resultierenden höheren Quantenpunkte verschiebt die Emissionswellenlänge von 480 nm für die 10 s-Probe über 500 nm für die 14 s-Probe auf 530 nm für die 18 s-Probe. Die Ursache für die Wellenlängenverschiebung ist der Quanten-Größen-Effekt. Über die Wachstumszeit ändert sich die Dicke der abgeschiedenen InGaN-Schicht. Es wird angenommen, dass die Höhe der Quantenpunkte der vorher abgeschiedenen InGaN-Schicht (vor dem Phasenseparationsprozess) entspricht, d.h. die Quantenpunkte nehmen an Höhe zu wenn eine dickere InGaN-Schicht abgeschieden wird. Für den Quanten-Größen-Effekt bedeutet dies: je kleiner die Strukturen sind, umso mehr entfernen sich die Energieniveaus der Elektronen- und Lochzustände im Quantenpunkt. Die Übergangsenergie erhöht sich und die Wellenlänge verschiebt zu niedrigeren Wellenlängen. Die Ausgangsleistung der LEDs wurde mit einer Photodiode gemessen, wobei nur das Licht detektiert wurde, welches unterhalb der Probe durch das Saphirsubstrat austreten konnte. In Tab. 5.1 sind die Ausgangsleistungswerte der LEDs wiedergegeben. Die Ausgangsleistungen der 10 s- und 14 s-Probe unterscheiden sich nicht wesentlich. Jedoch gibt es einen starken Intensitätsabfall für die 18 s-Probe, was sich auf den QCSE zurückführen lässt. Elektronen- und Löcherwellenfunktionen werden räumlich durch die internen elektrischen Felder im Quantenpunkt getrennt. Der Wellenfunktionenüberlapp ist reduziert, so dass sich die Rekombinationswahrscheinlichkeit erniedrigt.

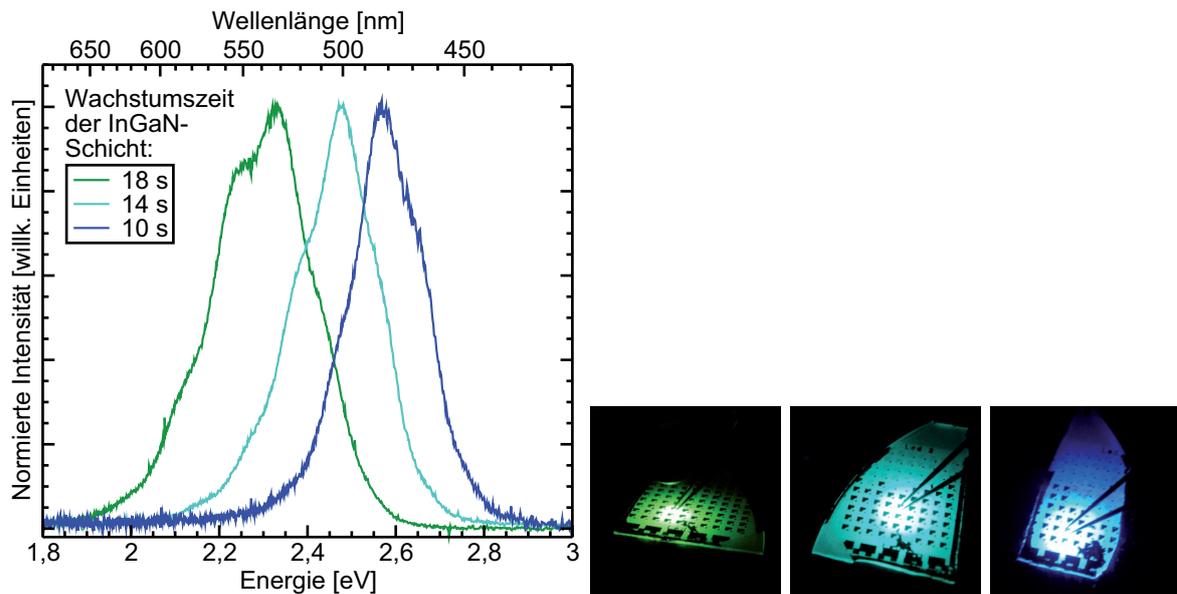


Abbildung 5.2: Variation der Emissionswellenlänge über die Einstellung der Wachstumszeit der InGaN-Lagen. Links dargestellt sind die Spektren der Proben, rechts sind photographische Bilder der LEDs im Betrieb gezeigt.

Probe, Abscheidedauer der $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht	Emissionswellenlänge	maximale Ausgangsleistung
10 s	480 nm	137 μW
14 s	500 nm	142 μW
18 s	530 nm	3 μW

Tabelle 5.1: Emissionswellenlänge und Lichtausgangsleistung der drei LEDs unter vergleichbaren Bedingungen.

Die RT-PL-Analyse dieser Proben mit Hilfe eines 406 nm-Lasers bringt Erkenntnisse über die Wirkung des zusätzlichen Quantenfilmes auf die Quantenpunkte, welcher sich durch die Auflösung der InN-reichen InGaN-Inseln oberhalb der Quantenpunkte bildet. In Abb. 5.3 sind die Spektren der drei Proben dargestellt. Die Emissionswellenlängen der Proben stimmen mit den Ergebnissen der LED-Proben im elektrischen Betrieb überein, wobei bei der 18 s-Probe keine Quantenpunktlumineszenz detektierbar ist. Die Intensität ist so gering, dass sie komplett von der gelben Störstellenlumineszenz überstrahlt wird. Quantitativ unterscheiden sich die LED-Proben mit 10 s und 14 s jedoch sehr stark. Die Ursache liegt hier in der Besonderheit der optischen Anregung des 406 nm-Lasers. Die Photonenenergie des Lasers beträgt 3,05 eV, dies bedeutet, dass GaN für das Laserlicht transparent ist. Deswegen ist bei 694 nm der relativ scharfe Peak des mit Chrom dotierten Saphirsubstrates (auch bekannt als Rubin) zu erkennen. Der Laser hat lediglich die Möglichkeit, die aktive Region direkt anzuregen. Im GaN werden keine Ladungsträger generiert, es können keine Ladungsträger aus dem GaN in die aktive Zone relaxieren.

Die 14 s-Probe ist wesentlich intensiver als die 10 s-Probe. Dies hängt mit dem zusätzli-

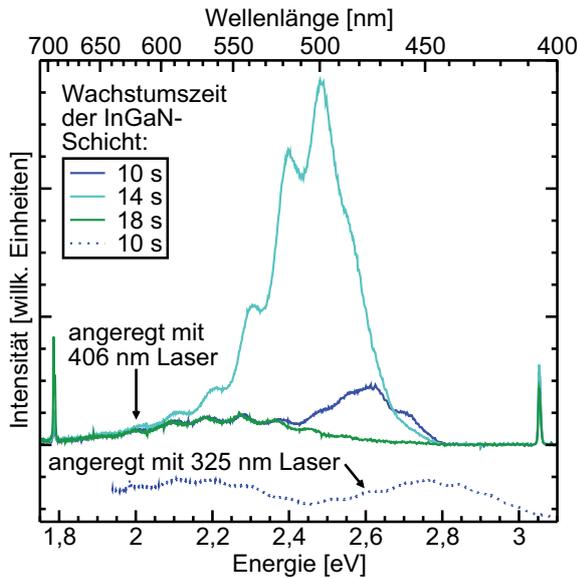


Abbildung 5.3: Anregung der LED-Proben mit einem 406 nm-Laser. Zusätzlich ist im Graphen ein Spektrum der 10 s-Probe abgebildet, die mit einem 325 nm-Laser angeregt wurde.

chen Material an InGaN zusammen, das durch die höhere Wachstumszeit abgeschieden wurde. Es wird angenommen, dass sich nach der Phasenseparation größere oder/und eine größere Anzahl der InN-reichen InGaN-Inseln bilden. Größeren Inseln bleiben bei dem späteren Auflösungsprozess bei höheren Temperaturen länger erhalten, wodurch länger Indium in die GaN-Deckschicht eingebaut werden kann. Dadurch wird der InGaN Quantenfilm dicker, wodurch mehr aktives Material zur Anregung durch den 406 nm Laser zur Verfügung steht. Eine größere Anzahl der Inseln führt dazu, dass beim Auflösungsprozess mehr Indium gebildet wird, was in den Quantenfilm eingebaut werden kann. Der Quantenfilm hat einen höheren InN-Gehalt, wodurch es mehrere Energieniveaus gibt, d.h. es können mehr Ladungsträger angeregt werden. In beiden Fällen können aus dem Quantenfilm somit mehr Ladungsträger in die Quantenpunkte relaxieren und anschließend strahlend rekombinieren.

Zusätzlich ist in Abb. 5.3 die RT-PL der 10 s-Probe dargestellt, um zu demonstrieren, dass die aktive Region unterhalb einer 300 nm dicken p-Schicht mit einem 325 nm nicht mehr untersucht werden kann. Es ist neben der breiten niederenergetischen gelben Störstellenlumineszenz auch die breite höherenergetische von Mg-Donatoren verursachte Störstellenlumineszenz um 2,8 eV detektierbar [RM05]. Es ist keine Lumineszenz der aktiven Region detektierbar, d.h. die gesamte Laserintensität wird von der p-dotierten GaN-Schicht absorbiert.

Die absolut untere Wellenlängengrenze wurde nicht bestimmt, da es u.a. Ziel dieser Arbeit war, Quantenpunkte für den langwelligen grünen Spektralbereich herzustellen. Dennoch gab es im Rahmen von weiteren Untersuchungen Ergebnisse, in denen eine weitere dem Trend folgende Wellenlängenverschiebung festgestellt werden konnte. Bei diesen Proben wurde keine zusätzliche p-Schicht abgeschieden. Die PL-Spektren der Proben sind in Abb. 5.4 (links) dargestellt. Für eine Wachstumszeit der InGaN-Schicht von 8 s bzw. 5 s verschiebt sich die Wellenlänge auf etwa 450 nm bzw. 435 nm. Es lässt sich annehmen, dass eine weitere Reduzierung der Wachstumszeit die Wellenlänge noch weiter verringern würde.

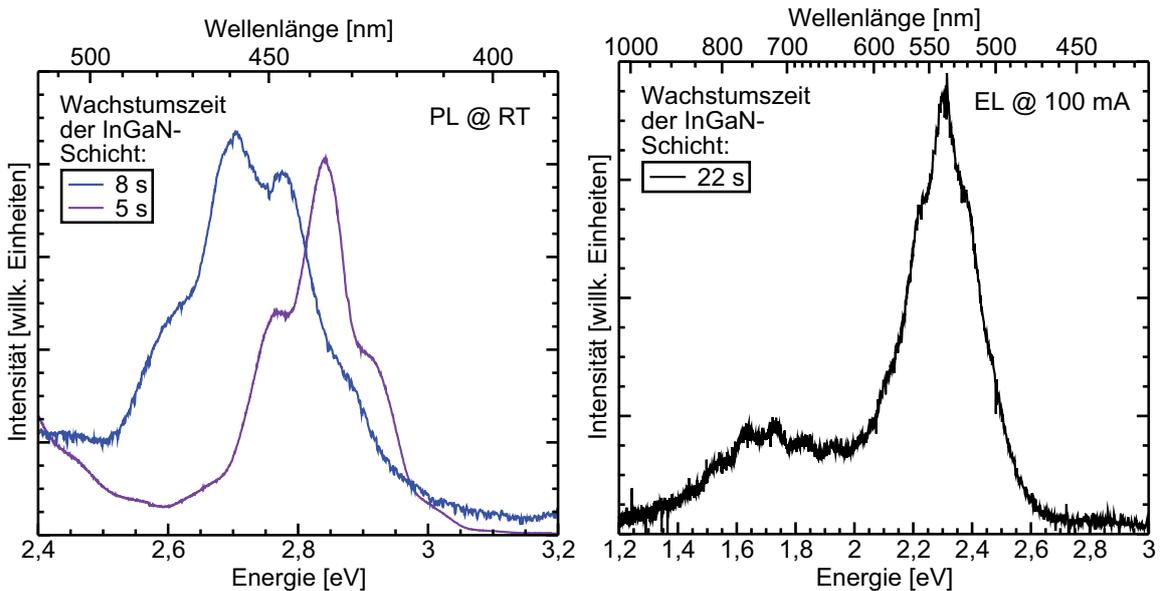


Abbildung 5.4: Links: RT-PL-Spektren von zwei Proben mit relativ geringer Wachstumszeit der InGaN-Schicht von 8 s und 5 s unter Anregung mit einem 325 nm Laser. Rechts: Elektrolumineszenzspektrum einer Probe mit 22 s Wachstumszeit. Bis auf die Wachstumszeit ist diese Probe identisch mit den Proben aus Abb. 5.2 .

Eine obere Wellenlängengrenze scheint sich für derartige Proben um 535 nm einzustellen, wie es in Abb. 5.4 (rechts) dargestellt ist. Das EL-Spektrum einer LED vergleichbar mit den LED-Proben aus Abb. 5.2, jedoch mit 22 s Wachstumszeit der InGaN-Schicht, ist verglichen mit der 18 s-Probe nur noch spektral um 5 nm verschoben. Signifikanter dagegen verändert ist die Ausgangsleistung der LED. Während für die 18 s-LED noch $3 \mu\text{W}$ gemessen wurden, ist für die 22 s-LED nur eine Ausgangsleistung von bis zu 110 nW detektiert worden. Die Ursache liegt wahrscheinlich in der langen Wachstumszeit und der daraus resultierenden dicken Schicht: es wird die kritische Schichtdicke erreicht und es kommt zum S-K-Wachstum. Diese Annahme ist in guter Übereinstimmung mit den Untersuchungen von Dr. T. Yamaguchi an InGaN-S-K-Inseln [YEG⁺06]. Dieser konnte zeigen, dass es bei einer vergleichbaren Abscheidung zur Bildung von S-K-Inseln kommt.

Dr. T. Yamaguchi konnte jedoch mit dem “Zwei-Stufen-Wachstum” zeigen, dass sich noch längerwellige, bei 600 nm emittierende LEDs herstellen lassen [YDT⁺06]. In Abschnitt 3.6 wurde gezeigt, dass die dritte InGaN-Schicht auf teilweise tensil verspannten GaN aufwächst, was durch die unteren InGaN-Schichten verursacht wird. Dies führt dazu, dass der Composition-Pulling-Effekt reduziert wird und weniger Indium die Quantenpunkte verlässt. Der InN-Gehalt in den Quantenpunkten ist höher, wodurch eine höhere Wellenlänge erreicht werden kann. Das Wachstum von $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schichten auf InGaN-Pufferschichten wurde in dieser Arbeit nicht durchgeführt, kann aber eine Methode sein, langwellig emittierende Bauelemente zu erreichen.

Dieser Abschnitt hat gezeigt, dass sich die Wellenlänge der Proben alleine mit Hilfe der Wachstumszeit über einen Wellenlängenbereich von bis zu 100 nm im blauen bis grünen Spektralbereich kontrollieren lässt.

5.1.2 InGaN Quantenpunkte in Vielfachschichten

Um eine möglichst hohe Effizienz der Lichterzeugung in Bauelementen zu erreichen, ist eine Stapelung der Quantenpunktschichten notwendig. Dies erhöht die Quantendichte pro Flächeneinheit und vermeidet, dass Ladungsträger aufgrund von Sättigungseffekten bei hohen Strömen aus der aktiven Region abwandern. Die maximale noch sinnvolle Stapelanzahl hängt von der optischen Aktivität jeder Stapelschicht ab. Jede optisch nicht aktive Schicht trägt zur Absorption und somit zur Effizienzniedrigung eines Bauelements bei. Dieser Abschnitt zeigt die Unterschiede zwischen optischer und elektrischer Anregung von Mehrfach-Quantenpunktstapelschichten.

Um zu zeigen, dass eine Stapelung sinnvoll ist, wurden drei Proben hergestellt, jeweils bestehend aus einer einfach, dreifach und siebenfach gestapelten Quantenpunktschicht. Jede $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht wurde bei $600\text{ }^\circ\text{C}$ abgeschieden und anschließend bei $700\text{ }^\circ\text{C}$ mit einer 7 nm GaN-Deckschicht überwachsen. Um für jede weitere InGaN-Schicht wieder eine qualitativ hochwertige Oberfläche zu erlangen wurde eine zweite 12 nm GaN-Deckschicht unter H_2 -Atmosphäre und während einer 200 s dauernden Temperaturrampe von $820\text{--}1050\text{ }^\circ\text{C}$ gewachsen. Die komplette Struktur schließt stets mit einer 24 nm GaN-Schicht bei $1050\text{ }^\circ\text{C}$ ab. Es ist zu beachten, dass sich durch den Auflösungsprozess der InN-reichen InGaN-Inseln für jeden Quantenpunktstapel im Bereich zwischen erster und zweiter GaN-Deckschicht ein InGaN-Quantenfilm bildet. Diese Annahme ist aufgrund der TEM-Messungen aus Abb. 4.4 gerechtfertigt, da die Wachstumsparameter identisch sind.

Die PL-Spektren der drei Proben sind in Abb. 5.5 (links) dargestellt. Es ist eine Zunahme der Intensität und eine Blauverschiebung der Wellenlänge mit zunehmender Stapelanzahl zu erkennen. In Tab. 5.2 sind die wesentlichen Ergebnisse zusammengetragen. Trotz gleicher Wachstumsbedingungen für jede Schicht verschiebt die Wellenlänge von

Anzahl Stapel	Emissionswellenlänge	Halbwertsbreite	integrierte Intensität
1	483 nm	0,22 eV	1
3	473 nm	0,19 eV	2,3
7	465 nm	0,19 eV	4,7

Tabelle 5.2: Maximum der Emissionswellenlänge, Halbwertsbreite und integrierte Intensität der drei Proben mit jeweils einem, drei und sieben InGaN Quantenpunktstapelschichten. Die integrierten Intensitäten sind auf die ungestapelte Quantenpunktprobe normiert. Die Halbwertsbreiten wurden über den Messwerten angepasste Gauß-Funktionen bestimmt.

der Probe mit der einfach zur Probe mit der siebenfach gestapelten Quantenpunktschicht um 18 nm . Dennoch gibt es keine Verbreiterung des Peaks, die Halbwertsbreite nimmt sogar von der einfach zur dreifach gestapelten Quantenpunktschicht ab und bleibt bei der siebenfach gestapelten Quantenpunktlage gleich. Das zeigt, dass je Probe für alle Schichten relativ homogene Quantenpunkte bezüglich Größe und InN-Gehalt gewachsen werden können. Die Ursache für die Variation der Wellenlänge ist nicht geklärt. Der Vergleich zwischen Proben aus anderen Serien, z.B. jeweils bestehend aus

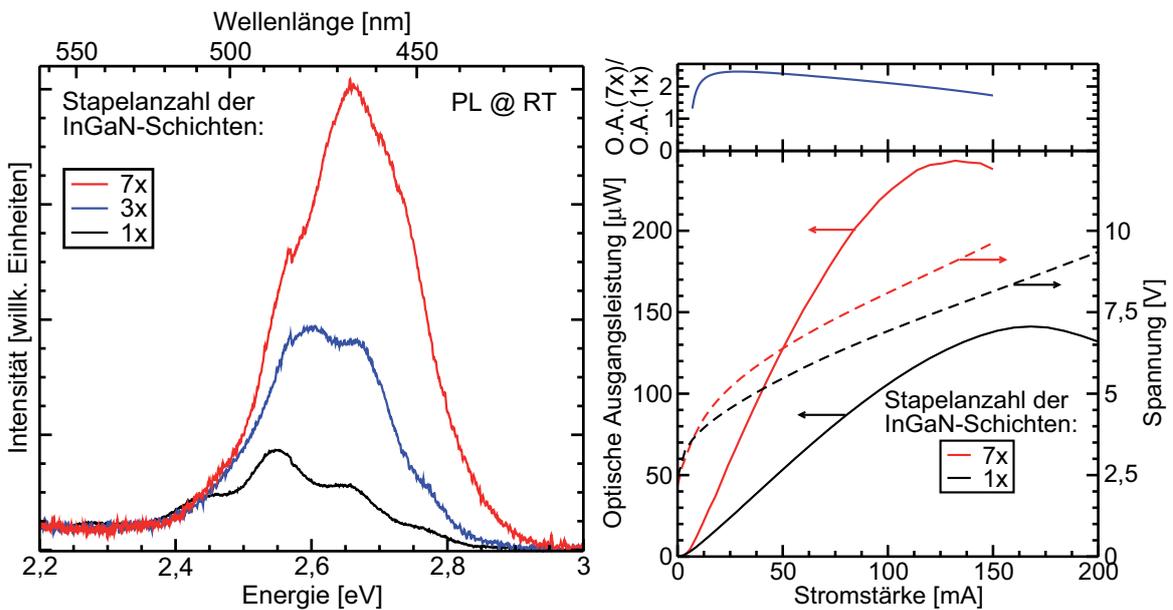


Abbildung 5.5: Links: Vergleich von RT-PL-Spektren der Proben mit einer einfach, dreifach und siebenfach gestapelten InGaN Quantenpunktschicht. Die Spektren sind mit Fabry-Perot-Resonanzen überlagert. Rechts: Gemessene optische Lichtstärke bzw. elektrische Spannung aufgetragen gegen die eingestellte Stromstärke einer einfach und siebenfach gestapelten InGaN Quantenpunktschicht in einer prozessierten LED-Struktur. Das epitaktische Wachstum der einzelnen InGaN Quantenpunktschichten und GaN-Deckschichten sind bei allen Proben identisch. In dem oberen Graphen ist der Quotient aus optischer Ausgangsleistung (O.A.) der Proben mit einer siebenfach und einer einfach gestapelten Quantenpunktlage in Abhängigkeit der Stromstärke dargestellt.

einer einfach und einer dreifach bzw. einer dreifach und sechsfach gestapelten Quantenpunktschicht zeigt mit einer Rotverschiebung einen gegensätzlichen Trend (die Spektren der Proben werden hier nicht gezeigt). Gründe können technischer Natur sein wie z.B. inhomogene Wachstumsflüsse, -temperaturen oder die Auflagefläche der Probe auf dem Suszeptor.

Der Vergleich der integrierten Intensitäten, normiert auf die Probe mit einer Quantenpunktlage, zeigt einen Anstieg um den Faktor 2,3 bzw. 4,7 für die Probe mit der dreifach bzw. siebenfach gestapelten Quantenpunktschicht. Es wird nicht ganz eine erwartete Verdrei- bzw. Versiebenfachung der Intensität erreicht. Berücksichtigt man, dass die Anregungsintensität des 325 nm-Lasers aufgrund von Absorption für tieferliegende Quantenpunktschichten abnimmt und Emission von den unteren Schichten von weiter oberen Schichten absorbiert werden kann, so lässt sich annehmen, dass jede Quantenpunktschicht prinzipiell in der Lage ist, die gleiche Intensität zu emittieren. Das Stapeln von Quantenpunktschichten ist nach dem Standpunkt der optischen Anregung erfolgreich und führt zu einer Erhöhung der Quantenpunktlumineszenz. Eine weitere Erhöhung der Stapelanzahl sollte zu einem weiteren Anstieg der Lumineszenz führen, jedoch fällt der Gewinn mit jeder zusätzlichen Schicht geringer aus.

In elektrisch betriebenen Bauelementen zeigt sich jedoch ein anderes Verhalten. Der Vergleich von elektrisch betriebenen LEDs basierend auf einer einfach und einer sie-

benfach gestapelten Quantenpunktschicht ist in Abb. 5.5 (rechts) dargestellt. In dem Graphen ist die optische Ausgangsleistung und die angelegte Spannung gegen die Stromstärke aufgetragen. Zusätzlich ist im oberen Bereich der Quotient aus optischer Ausgangsleistung der Probe mit siebenfach Quantenpunktstapel und der Probe mit nur einer Quantenpunktlage als Funktion der Stromstärke gezeigt. Die Probe mit sieben Quantenpunktlagen erreicht lediglich eine Verstärkung der Intensität von 2,46 bei 29 mA. Oberhalb von 115 mA fällt die Verstärkung auf einen Faktor unterhalb von 2 ab. Bei der einlagigen Probe bzw. der Probe mit siebenfach gestapelten Quantenpunktschichten tritt Sättigung der Intensität bei 140 mA bzw. 125 mA auf. Dies hängt mit der undotierten GaN-Schicht in der aktiven Zone zusammen, welche für die Probe mit siebenfach gestapelten Quantenpunktschichten etwa 130-140 nm beträgt, verglichen mit 19-20 nm für die einlagige Probe. Dies verursacht einen höheren Widerstand und ein schnelleres Aufheizen des Bauelements, wodurch es zur thermischen Streuung der Ladungsträger aus den Quantenpunktniveaus kommt. Der höhere Widerstand durch die undotierten GaN-Zwischenschichten zeigt sich auch in der Strom-Spannungscharakteristik. Bei der Probe mit der siebenfach gestapelten Quantenpunktschicht muss eine höhere Spannung angelegt werden, um eine gleiche Stromstärke wie bei der einlagigen Probe zu erreichen.

Das Ergebnis zeigt, dass für elektrisch betriebene Bauelemente die Quantenpunktstapelanzahl wahrscheinlich auf drei beschränkt ist. Eine weitere Erhöhung der Stapelanzahl würde im Gegensatz zur optischen Anregung zu keiner Erhöhung der Ausgangsleistung und zu einer Verringerung der Betriebseigenschaften führen.

Die Ursache der nur 2,46-fachen optischen Ausgangsleistung bei der Probe mit sieben Quantenpunktlagen liegt in der relativ geringen Löcherkonzentration und der geringen Lochmobilität. Die Löcherkonzentration im p-dotierten GaN ist mit etwa $5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ca. eine Größenordnung niedriger als die Elektronenkonzentration im n-dotierten GaN (vergleiche [Fig03] und [Bö02]). Die effektive Masse von Elektronen in GaN beträgt $0,2 \cdot m_0$ (m_0 ist die Elektronenmasse) [BLRZ01], während die effektive Masse $1,4 \cdot m_0$ bzw. $0,3 \cdot m_0$ für ein schweres bzw. leichtes Loch im GaN ist. Die relativ hohe effektive Masse führt zu einer geringen Mobilität der Löcher, wodurch jede weiter von der p-Schicht entfernte Quantenpunktschicht für Löcher schwerer erreichbar ist.

Ein weiteres Problem ist die Quantenfilmschicht, die sich durch die Auflösung der InN-reichen InGaN-Inseln oberhalb der Quantenpunkte gebildet hat. Dieser Film kann sich parasitär auf den Ladungsträgerfluss auswirken, indem Ladungsträger im Film abgefangen und dort strahlend rekombinieren oder zu Defekten geführt werden um dort nichtstrahlend zu rekombinieren. Es ist zu erwarten, dass die Eliminierung des Quantenfilmes zu einer Effizienzerhöhung von Bauelementen führt. In dem Fall könnte eine Erhöhung der Anzahl der Stapelschichten auf z.B. sieben oder mehr zu einen weiteren Intensitätsgewinn führen.

5.1.3 Mehrfarbige LED

Die Herstellung von weißen Licht emittierenden LEDs für Beleuchtungszwecke ist für die Industrie von großem Interesse, da diese stromsparend, langlebig und damit wartungsarm sind. Es gibt mehrere Möglichkeiten, weiß emittierende Bauelemente zu erhalten. Der Einsatz von drei separaten Bauelementen, die jeweils blau, grün und rot

emittieren, würde im Gesamteindruck weiß ergeben. Diese Methode ist technologisch jedoch aufwendig, da pro Lampeneinheit drei Elemente kontaktiert werden müssen. Eine weitere Möglichkeit ist der Einsatz eines Lichtkonverters, z.B. eine Phosphorschicht, die ein breites Band im gelben bis roten Spektralbereich emittiert [MMM⁺05]. In der Regel wird eine blau oder violett emittierende Leuchtdiode mit einer Phosphorschicht versehen. Die blaue/violette und gelbe Emission zusammen ergeben einen weißen Eindruck. Nachteilig ist hierbei der Wirkungsgrad aufgrund der Lichtkonversion: ein hochenergetisches blaues Photon erzeugt ein niederenergetisches gelbes/rotes Photon, die Energiedifferenz geht nichtstrahlend verloren. Desweiteren haben effiziente Phosphorschicht-LEDs eine kalte Farbtemperatur, welches für den Menschen oftmals ungewohnt und nicht gewünscht ist. Phosphorschichten mit längerwelliger Emission leiden jedoch unter einem reduzierteren Wirkungsgrad, da die Energiedifferenz bei der Lichtkonversion ansteigt.

In diesem Abschnitt wird eine mehrfarbige LED vorgestellt. Dies ist ein erster Ansatz hin zu einer weiß emittierenden LED auf Basis von InGaN Quantenpunkten.

Zwei Proben wurden hergestellt, jeweils bestehend aus drei Quantenpunktschichten. Jede Quantenpunktschicht unterscheidet sich durch die Abscheidedauer, d.h. jede Schicht emittiert bei unterschiedlichen Wellenlängen. Die weiteren Wachstumsparameter sind identisch zu den mehrfach gestapelten Quantenpunktschichten der Proben des vorigen Abschnitts. Die beabsichtigten Emissionswellenlängen sind ca. 450 nm (tiefblau, kurz: t), 480 nm (blau, kurz: b) und 500 nm (grün, kurz: g). Beide Proben unterscheiden sich durch die Reihenfolge der Schichten, wobei die erstgenannte Schicht am nächsten zur n-GaN-Schicht liegt:

Probe R: g-b-t

Probe S: t-b-g

Jede Probe wurde auf zwei Probenstücken gewachsen. Nach dem Wachstum wurde jeweils ein Probenstück für PL-Untersuchungen mit dem 325 nm Laser entfernt. Die jeweils anderen Stücke wurden mit einer p-Schicht überwachsen und anschließend zu einer LED prozessiert. Die p-Schicht besteht aus einer 20 nm p-Al_{0,2}Ga_{0,8}N Elektronen-Sperrschicht, 250 nm p-GaN und einer hochdotierten 30 nm p⁺-GaN-Abschlusschicht.

Photolumineszenz

Anregung und Detektion der PL wurde an den Proben von der GaN-Seite durchgeführt, d.h. die Emission der jeweils oberen Schichten haben den kürzesten Weg zur Oberfläche. Die Strahlung der mittleren und unteren Quantenpunktschichten müssen zum einen mehr GaN durchqueren und zum anderen die überliegenden Quantenpunkt- und Quantenfilmschichten passieren. In Abb. 5.6 sind die PL-Spektren der beiden Proben R und S ohne p-Schicht dargestellt. Die Emission beider Proben ist nicht identisch. Probe R entspricht grob den Erwartungen: bei etwa 455 nm (t) emittiert die dritte/obere Quantenpunktschicht, um 475 nm (b) strahlt die zweite/mittlere Quantenpunktschicht und bei 495 nm (g) ist die erste/untere Quantenpunktschicht aktiv. Die Intensität der einzelnen Quantenpunktschichten nimmt leicht ab, je weiter die Schicht von der Oberfläche entfernt ist.

Probe S ist dagegen etwas unausgewogener. Die Intensitäten der einzelnen Schichten variieren stark. Die dritte/obere Quantenpunktschicht (g) weist die höchste Intensität

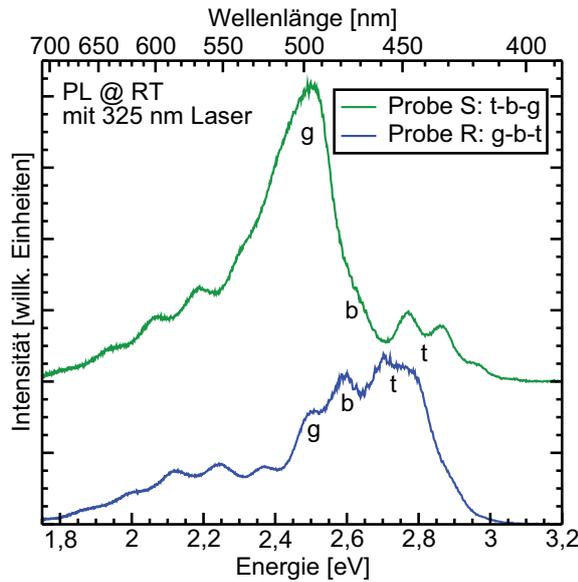


Abbildung 5.6: PL-Spektren der Proben R und S unter Anregung mit einem 325 nm Laser. Beide Spektren wurden mit der gleichen Integrationszeit gemessen, d.h. die Intensitäten sind direkt miteinander vergleichbar. Die Spektren weisen im niedere energetischen Bereich um 2,2 eV die spektral breite gelbe Störstellenlumineszenz auf, welche mit Fabry-Perot-Oszillationen überlagert sind.

auf und liegt spektral um 495 nm. Die zweite/mittlere Quantenpunktschicht (b) lässt sich in dem Spektrum kaum ausmachen. Die Intensität der oberen Schicht (g) ist derart dominant und es kann nur abgeschätzt werden, dass die schwache Schulter bei 475 nm von der mittleren Quantenpunktschicht kommt. Die erste/untere Quantenpunktschicht (t) emittiert bei etwa 440 nm und ist von Fabry-Perot Interferenzen überlagert. Diese Schicht ist spektral um 15 nm bezogen auf die gleiche Schicht der Probe R verschoben. Ein Vergleich der beiden Proben zeigt, dass jeweils die am nächsten zur Oberfläche liegende Quantenpunktschicht die größte Intensität aufweist.

Drei optische Mechanismen können für die unterschiedliche Intensitäten der jeweiligen Quantenpunktschichten verantwortlich sein. Zum einen nimmt die Anregungsdichte der Laserstrahlung mit der Tiefe ab, da es vom GaN und von den Quantenpunktschichten absorbiert wird. Zum anderen gilt: je tiefer eine Quantenpunktschicht im Material ist, umso höher ist die Wahrscheinlichkeit, dass sie von Defektstellen, die für die gelbe Störstellenlumineszenz verantwortlich sind, wieder absorbiert werden. Jedoch ist dieser Effekt eher als schwach anzusehen. Zusätzlich können Quantenpunktschichten mit Photonen höherer Bandlücke die Quantenpunkte mit niedrigerer Energie pumpen.

Daraus lassen sich die Intensitätsunterschiede zwischen den Proben erklären. Bei der Probe S ist die grüne Emission sehr dominant, da die Anregungsintensität am höchsten und Reabsorption an Defekten am geringsten ist. Zusätzlich wird die grün emittierende Schicht von der höherenergetischen Strahlung der unteren Schichten gepumpt. Durch den Pumpeffekt verlieren die blaue und tiefblaue Emission an Intensität. Bei der Probe R ist die tiefblaue Lumineszenz etwas stärker als die blaue und grüne, da in der oberen Schicht die Anregungsintensität am höchsten und die Reabsorption am geringsten ist. Ein Pumpeffekt findet hier jedoch nicht statt, weshalb die Intensität der tiefblauen Emission der Probe R nicht so dominant wie die grüne der Probe S ist. Ein Überblick der einzelnen Effekte auf die jeweiligen Schichten ist in Tab. 5.3 dargestellt.

Mit Hilfe der PL-Spektren lässt sich nicht eindeutig klären, ob sich in beiden Proben jeweils die gleichen Quantenpunktschichten gebildet haben. Möglich wäre, dass die jeweils unteren Quantenpunktschichten und Quantenfilme während des Wachstums

Probe, Quantenpunktschicht	Anregungsintensität	Absorption an Defekten	Pumpeffekt
R, tiefblau	+	+	0
R, blau	0	0	+
R, grün	-	-	++
S, grün	+	+	++
S, blau	0	0	0
S, tiefblau	-	-	-

Tabelle 5.3: Vergleich der einzelnen Schichten der Probe R und S bezüglich Anregungsintensität, Absorption an Defekten und Pumpeffekt bei Anregung und Detektion von der Probenvorderseite. Ein “+” bedeutet eine positive Wirkung, “0” steht für neutral und “-” für negative Wirkung auf die Intensität der jeweiligen Schicht. In der Spalte “Pumpeffekt” werden “++” vergeben, wenn für eine Schicht die Möglichkeit besteht, von der Emission der zwei anderen Schichten gepumpt zu werden. Aus der Tabelle lässt sich ablesen, dass die grün emittierende Quantenpunktschicht der Probe S die günstigsten Voraussetzung hat und deshalb im Spektrum die stärkste Intensität aufweist.

Verspannung auf die darüberliegenden Schichten ausüben, wodurch sich der Quantenpunktwachstumsprozess verändert. Aufschluss über eine Veränderung der Quantenpunktschichten könnten TEM-Messungen geben, wurden im Rahmen dieser Arbeit aber nicht durchgeführt.

Elektrolumineszenz

Die EL-Spektren unterscheiden sich von den PL-Spektren und sind stark abhängig von der Stromstärke, welche durch das Bauelement fließt. Die EL-Spektren der beiden zur LED prozessierten Proben R und S sind in Abhängigkeit der Stromstärke in Abb. 5.7 dargestellt. Probe R zeigt bei relativ niedrigen Strömen unterhalb von 100 mA Lumineszenz um 445 nm, d.h. dass nur die dritte/obere Quantenpunktschicht optisch aktiv ist. Bei Strömen zwischen 100 mA und 200 mA wächst bei 480 nm ein zweites Intensitätsmaximum heraus. Diese Lumineszenz wird von der zweiten/mittleren Quantenpunktschicht emittiert. Die obere Quantenpunktschicht um 445 nm erreicht bei 150 mA ihre maximale Stärke und bleibt bis 200 mA nahezu konstant. Die mittlere Quantenpunktschicht erreicht bei 200 mA ihre maximale Intensität, die erst bei 300 mA wieder abnimmt. Bei 200 mA sind die Intensitäten der oberen und mittleren Quantenpunktschicht nahezu gleich und es bildet sich ein Plateau von etwa 40 nm Breite aus. Die Halbwertsbreite beträgt 70 nm bzw. 405 meV. Bei 200 mA wird die erste/untere Quantenpunktschicht bei etwa 510 nm aktiv. Jedoch bleibt die Lumineszenz dieser Schicht bis 360 mA nur als Schulter neben dem stets intensivieren Peak der mittleren Quantenpunktschicht zu erkennen. Die maximal detektierbare optische Ausgangsleistung wird bei 175 mA erreicht und beträgt 70 μ W.

Oberhalb von 200 mA machen sich die ersten thermischen Effekte bemerkbar. Das Aufheizen des Bauelements wird durch den hohen Stromfluss und die niedrige Wärmeabfuhr verursacht. Die thermischen Effekte führen zur Anregung der Ladungsträger

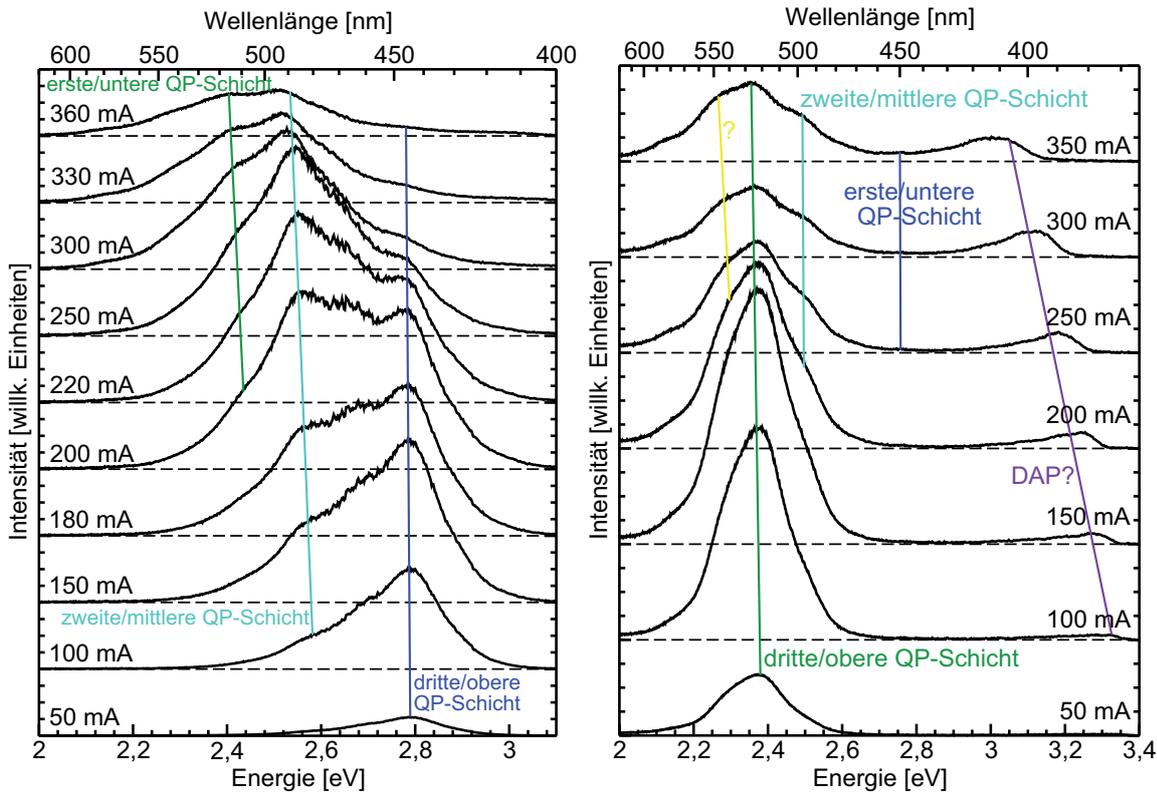


Abbildung 5.7: Dargestellt sind stromstärkeabhängige EL-Spektren von mehrfarbigen LEDs. Links: Probe R, rechts: Probe S. Im linken Graphen sind die Spektren nicht im gleichen Stromstärkeintervall dargestellt; es sind die Spektren gezeigt, welche die stärksten Veränderungen zum jeweils vorigen Spektrum aufgewiesen haben.

aus tiefe in höhere Quantenpunktniveaus. Die Ladungsträger können leichter in das umgebende GaN entweichen. Die thermischen Effekte wirken sich zuerst auf die relativ flachen Niveaus der oberen bei 445 nm emittierenden Quantenpunktschicht aus und erst bei höheren Strömen auf die anderen Schichten. Die Ladungsträger werden aus den Quantenpunkten gestreut und die Intensität der Schicht nimmt ab. Oberhalb von 250 mA reicht die thermische Energie offenbar aus, um die Ladungsträger auch aus der mittleren Quantenpunktschicht zu streuen, so dass die Intensität abnimmt.

Die geringe Löcherkonzentration und -mobilität kann eine Ursache für das ungleichmäßige Einsetzen der Lumineszenz jeder Quantenpunktschicht sein. Die Quantenpunktschicht, die der p-Schicht am nächsten ist, leuchtet zuerst auf. Tritt Sättigung auf, so haben die Löcher die Möglichkeit bis zur zweiten Schicht vorzudringen usw.

Die stromstärkeabhängigen EL-Spektren der Probe S mit der umgekehrten Reihenfolge der unterschiedlich emittierenden Quantenpunktschichten ist in Abb. 5.7 (rechts) dargestellt. In Analogie zu Probe R sieht man bei niedrigen Strömen die Lumineszenz der zur p-Schicht am nächsten gelegenen, d.h. der dritten/obersten Quantenpunktschicht. Der Vergleich mit dem PL-Spektrum aus Abb. 5.6 weist eine starke spektrale Verschiebung um 25 nm auf, die EL liegt jetzt bei 520 nm. Um 150 mA erreicht die Probe ihre maximale Ausgangsleistung, die jedoch nur $3 \mu\text{W}$ beträgt und vergleichbar mit der bei

530 nm emittierenden LED aus Abb. 5.2 ist. Diese Ausgangsleistung ist überraschend niedrig. In den PL-Untersuchungen (siehe Abb. 5.6) war die Probe S sogar etwas intensiver als die Probe R. Für eine derartige Diskrepanz bezüglich der Intensität der Proben in der PL und EL gibt es keine Anhaltspunkte zur Erklärung.

Aufgrund von thermischen Effekten, d.h. Streuprozessen der Ladungsträger aus den Quantenpunkten, nimmt die Intensität mit zunehmender Stromstärke oberhalb von 200 mA wieder ab. In diesem Stromstärkebereich zeigt sich die zweite/mittlere Quantenpunktschicht als schwache Schulter neben der Hauptemission. Ob es strahlende Rekombination in der ersten/unteren Quantenpunktschicht gibt ist in den Spektren nicht eindeutig zu klären. Der Vergleich mit der mehr als 20-fach höheren Ausgangsleistung der Probe R zeigt, dass die mittlere und die untere Quantenpunktschicht kaum optische Aktivität aufweisen. Die Löcher scheinen enorme Schwierigkeiten zu haben, die obere Quantenpunktschicht samt darüberliegenden Quantenfilm zu passieren.

Überraschenderweise taucht in dem EL-Spektrum ein Peak auf, der nicht im PL-Spektrum detektierbar war. Auch wurde diese Emission nicht bei der Probe R oder bei den anderen LEDs aus Abb. 5.2 detektiert. Schon bei 100 mA ist bei 3,3 eV ein asymmetrischer Peak sichtbar. Die hochenergetische Seite fällt stark ab, die niederenergetische Seite weist einen breiten Ausläufer auf. Mit zunehmender Stromstärke wandert der Peak stark zu niedrigeren Energien und nimmt stetig an Intensität zu. Bei 350 mA ist der Peak um 300 meV auf 3 eV geschoben, wobei der Unterschied in den energetischen Flanken nicht mehr so stark ausfällt.

Der Ursprung dieser Lumineszenz ist nicht geklärt. Als erster Ansatz dient die Feststellung, dass die Position und der Verlauf in guter Übereinstimmung mit der DAP-Rekombination samt LO-Phononen-Repliken ist. Ein detaillierter Blick auf den niederenergetischen Ausläufer zeigt, dass dieser leicht moduliert ist (siehe Abb. 5.8). Die Abstände der Modulation entsprechen den energetischen Abständen der Phononen-Repliken. Ein derartiger Rekombinationskanal könnte auch die starke Verschiebung mit

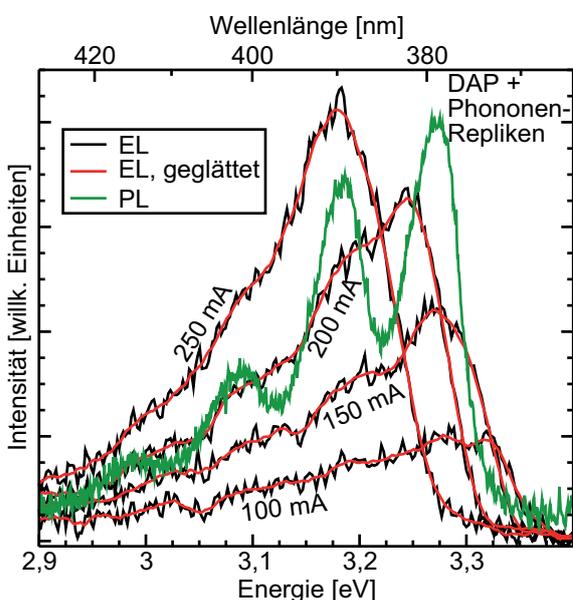


Abbildung 5.8: Vergleich der kurzwelligen EL der Probe S mit einem PL-Spektrum, welches DAP-Rekombination und Phononen-Repliken aufweist. Die roten Linien sind jeweils geglättete Spektren der Originalmessung, um die Modulationen besser sichtbar zu machen.

steigender Stromstärke erklären. Bei einem hohen Stromfluss und aufgeheizten Bauelement nimmt die Wahrscheinlichkeit für eine Wechselwirkung zwischen Ladungsträger und Gitteratomen des Kristalls (Phononenerzeugung) zu, so dass ein reiner DAP-Übergang nicht mehr beobachtbar wird. Der DAP-Übergang läuft somit im Zusammenspiel mit der Erzeugung eines oder mehrerer LO-Phononen ab. Gegen diese These spricht, dass die DAP-Lumineszenz in PL-Untersuchungen nur bis 150 K detektierbar ist. Weiterhin wurde bisher noch nicht von der Elektrolumineszenz der DAP-Rekombination mit Phononenrepliken berichtet.

Weitere Ursprünge der Lumineszenz könnte der zusätzlich gebildete Quantenfilm oder ein Elektronenfluss aus der aktiven Region in die Mg-dotierte GaN-Schicht sein. Die Elektronen könnten in der p-GaN-Schicht mit den Löchern an den Mg-Störstellen rekombinieren.

Auch wenn der Ursprung nicht klar ist, die kurzwellige Lumineszenz scheint die Ladungsträger abzugreifen, so dass bei der Probe S nur wenige Ladungsträger für die Rekombination der oberen Quantenpunktschicht und keine für die weiteren Schichten zur Verfügung stehen.

Dieser Abschnitt hat gezeigt, dass es möglich ist, mehrfarbige LEDs aus mehreren Quantenpunktschichten zu produzieren. Womöglich muss man sich auf zwei Quantenpunktschichten reduzieren, da nicht genügend Ladungsträger für mehrere Quantenpunktschichten zur Verfügung stehen. Die Eliminierung der Quantenfilme sollte jedoch die nichtstrahlende Rekombination reduzieren, so dass mehr Ladungsträger vorhanden wären und somit evtl. mehr Quantenpunktschichten eingesetzt werden können. Die Anordnung der Quantenpunktschichten sollte sich nach Probe R richten, d.h. die Quantenpunkten mit den flachsten Energieniveaus sollten der p-Schicht am nächsten sein.

Um eine weiß emittierende LED zu erreichen bedarf es einer Quantenpunktschicht, die noch langwelliger im gelben oder roten Spektralbereich strahlt. Es wurde gezeigt, dass man mit den derzeitigen Strukturen über die Einstellung der Wachstumszeit mit etwa 530 nm eine obere Wellenlängengrenze erreicht hat. Tomohiro Yamaguchi hat in dieser Arbeitsgruppe mit dem "Zwei-Stufen-Wachstumsmodus" eine bei 600 nm emittierende LED hergestellt [YDT⁺06]. In Zusammenhang mit diesem Ergebnis wurde hier schon gemutmaßt, dass man längerwellige Emittier durch das Wachstum von Quantenpunkten auf InGaN-Pufferschichten erreichen könnte. Dies wäre ein möglicher Ansatz zur Realisierung von roten und und schließlich weißen LEDs.

5.2 InGaN Quantenpunkte in Laserstrukturen

Quantenpunkte sind hervorragend für den Einsatz in Laserstrukturen geeignet, da verglichen mit Quantenfilmen u.a. eine Verringerung und Temperaturunabhängigkeit der Schwellstromdichte sowie ein hoher modaler Gewinn vorhergesagt wird [AS82, LUS⁺97]. Dieser Abschnitt soll sich mit dem Einsatz von InGaN Quantenpunkten als aktives Material in Laserstrukturen beschäftigen.

Der kritische Punkt bei diesem Vorhaben ist die lange Wachstumszeit von mehr als 45 min bei 1050 °C nach der Abscheidung der InGaN Quantenpunkte, um eine vollständige Wellenleiterstruktur zu erhalten. Es soll demonstriert werden, dass die Quanten-

punkte stabil sind und sich durch langanhaltende hohe Temperaturen nicht auflösen. Dies ist ein entscheidender Vorteil gegenüber anderen Methoden zum Wachstum von Quantenpunkten [ZBG10, CSL⁺08, WWB⁺08]. Bisher ist es noch nicht gelungen, stimulierte Emission der Bauelemente auf Basis von InGaN Quantenpunkten zu erhalten. Die Probleme betreffen das Wachstums und die Prozesstechnik, welche in vielerlei Hinsicht optimiert werden müssen, um die optoelektronischen Eigenschaften der Bauelemente zu verbessern und um eine laserfähige Struktur zu erhalten. Dennoch wird typische spontane Emission der Quantenpunkte im elektrischen Betrieb demonstriert. Das zeigt, dass es möglich ist, InGaN Quantenpunkte in Laserstrukturen einzubetten. Zwei Proben wurden in Zusammenarbeit mit Timo Aschenbrenner in der MOVPE hergestellt, eine enthält eine dreifach und die andere eine siebenfach gestapelte Quantenpunktschicht. Diese Schicht ist eingebettet in eine GaN-Wellenleiterstruktur, welche umgeben von einer AlGaN-Mantelschicht ist. Diese Struktur wurde auf einem GaN-Substrat mit einer geringen Defektdichte von kleiner als 10^7 cm^{-2} abgeschieden. Dies ist etwa ein bis zwei Größenordnungen niedriger als die Defektdichte von GaN-Pufferschichten abgeschieden auf Saphir [Bö02]. Zusätzlich ist in diese Struktur eine AlGaN-Elektronen-Sperrschicht integriert. Den Abschluss bildet eine hochdotierte p-GaN-Schicht. Der Aufbau, die Abmessungen und weitere Details sind in Abb. 5.9 dargestellt.

Die Prozessierung der Bauelemente auf GaN-Homosubstraten ist in [Den08] ausführlich diskutiert. Vereinfacht gegenüber einem Prozess auf Saphir ist die n-seitige Kontaktierung, die aufgrund des leitenden GaN-Substrates rückseitig aufgebracht werden kann. Aufwendig ist die Prozessierung eines schmalen, unterhalb von $10 \mu\text{m}$ breiten p-seitigen Steges, welcher zur Strompfadeinschnürung dient. Dadurch können bei konstanter absoluter Stromstärke im Bauelement höhere Stromdichten in der aktiven Region eingestellt werden. Die Schwellstromdichte wird bei einer niedrigeren absoluten Stromstärke erreicht, was zu einer reduzierten Erhitzung des Bauelements führt. Dies kann mitunter entscheidend für den Betrieb einer Laserdiode sein (siehe [Fig03]).

Die Prozessierung und elektrische Charakterisierung der Bauelemente wurde von Jakob Ebeling durchgeführt. Weitere detaillierte Informationen zu dieser Probe finden sich in [Ebe10] und [Asc10]. Die EL-Spektren sind in Abb. 5.10 (links) abgebildet und verglichen mit einer LED aus siebenfach gestapelten Quantenpunktschichten, die auf Saphir gewachsen wurde. Die spektralen Positionen der Emissionen der LED und des Lasers, jeweils mit sieben Quantenpunktlagen, unterscheiden sich lediglich um 10 nm . Das 45 min lange Wachstum bei hohen Temperaturen um $1050 \text{ }^\circ\text{C}$ hat keinen negativen Einfluss auf die Quantenpunkte. Die Quantenpunkte sind auch nach längeren Wachstumsschritten bei hohen Temperaturen stabil.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde nicht festgestellt, inwiefern der InGaN-Phasenseparationsprozess auf den defektarmen GaN-Substraten abläuft und ob es zur Bildung der InN-reichen InGaN Inseln kommt. Da sich die Elektrolumineszenz zwischen LED und Laserstruktur von der spektralen Lage kaum unterscheidet, liegt die Annahme nahe, dass die spinodale Entmischung unabhängig von der Defektdichte der hier benutzten GaN-Substrate/-Schichten stattfindet. In Abb. 3.4 wurden zwei Arten von InN-reichen InGaN Inseln vorgestellt: unsymmetrische kraterförmige Inseln, welche offenbar auf einer Fadenversetzung sitzen und symmetrische runde Inseln, die wahrscheinlich nicht

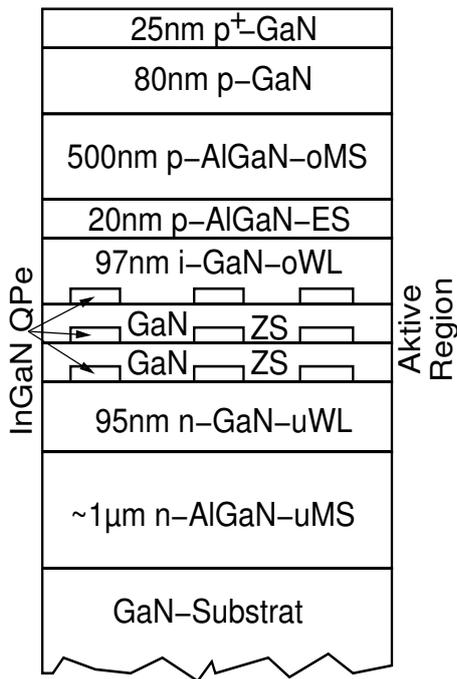


Abbildung 5.9: Dargestellt ist der Aufbau des Lasers mit drei Quantenpunktstapeln. Die Laserstruktur ist auf einem GaN-Homosubstrat aufgewachsen und besteht aus einer 1 µm n-dotierten Al_{0,08}Ga_{0,92}N unteren Mantelschicht (uMS), einem unteren 95 nm n-GaN Wellenleiter (uWL), der aktiven Region, einem 97 nm intrinsischen GaN oberen Wellenleiter (oWL), einer 20 nm p-dotierten Al_{0,2}Ga_{0,8}N-Elektronen-Sperrschicht (-ES), sowie einer 500 nm p-Al_{0,1}Ga_{0,9}N oberen Mantelschicht (oMS), einer 80 nm p-GaN-Schicht und einer 25 nm hoch p-dotierten GaN-Abschlusschicht. Die aktive Region besteht aus einer dreifach gestapelten Quantenpunktschicht mit jeweils 20 nm undotierten GaN-Zwischenschichten (-ZSen). Die InGaN Quantenpunkt-(QP-)schicht wurde bei 600 °C abgeschieden. Die GaN-ZS teilweise bei 700 °C und bei einer Rampe von 820-1050 °C. Die Probe mit der siebenfach gestapelten Quantenpunktschicht besteht entsprechend aus zusätzlichen InGaN Quantenpunktlagen und GaN-ZS. Die Dicke der Wellenleiterschichten reduziert sich aufgrund der zusätzlichen Quantenpunktschichten und GaN-Zwischenschichten. Die Dicke des unteren Wellenleiters beträgt 53 nm, die des oberen 55 nm. In dem Aufbau ist nicht berücksichtigt, dass es wahrscheinlich zur Bildung eines zusätzlichen Quantenfilms oberhalb der Quantenpunktschichten gekommen ist, wie es in den HRSTEM-Untersuchungen in Abb. 4.4 an der Probe L gezeigt wurde.

gebunden an eine Defektstelle sind. Es wird demnach weiterhin angenommen, dass es aufgrund der relativ geringen Defektdichte des GaN-Substrats eher zur Bildung der runden Inseln kommt. Das Auftreten einer Quantenfilmlumineszenz auch bei den Laserstrukturen deutet an, dass InN-reiche InGaN Inseln nach der InGaN-Abscheidung auf der Oberfläche vorhanden sind und bei dem anschließenden Deckschichtwachstum bei höheren Temperaturen auflösen und zusammen mit dem abgeschiedenen GaN einen InGaN Quantenfilm bilden, wie es in Abb. 4.4 an der Probe L gezeigt wurde. Die Quantenfilmlumineszenz wird im folgenden diskutiert.

Neben der Quantenpunktlumineszenz zwischen 460 und 470 nm ist auf dem höherenergetischen Ausläufer die Emission des zusätzlichen Quantenfilmes zu sehen, welcher sich während des GaN-Deckschichtwachstums durch die Auflösung der InN-reichen InGaN-Inseln oberhalb der Quantenpunkte bildet. Für die LD mit der dreifach gestapelten Quantenpunktlage ist der Quantenfilm bei 430 nm am stärksten ausgeprägt. Für die LD mit sieben Quantenpunktschichten hat die Intensität des bei 415 nm emittierenden Quantenfilm um etwa eine Größenordnung abgenommen. Die LED bestehend aus sieben Quantenpunktlagen zeigt die schwächste Quantenfilmlumineszenz bei 405 nm.

Die Unterschiede in der Lumineszenzaktivität des Quantenfilmes lässt sich über die

zugenommen hat. Zum anderen müssen die Elektronen einen längeren und erschwerten Weg durch die intrinsisch leitende aktive Region zurücklegen, um die oberen Quantenpunktschichten zu erreichen.

Der Vergleich zwischen LD und LED mit sieben Quantenpunktlagen zeigt, dass Quantenpunkte verglichen mit Quantenfilmen unempfindlicher gegenüber Defekten sind. Während sich die Quantenpunktlumineszenz zwischen der LD mit drei Quantenpunktlagen und der LED mit sieben Quantenpunktschichten bei 100 mA nur um den Faktor 2,5 unterscheiden, ist die Quantenfilmintensität der genannten Proben schon bei den normierten Spektren aus Abb. 5.10 (links) um zwei Größenordnungen verschieden. Bei niedrigen Strömen bis 30 mA unterscheiden sich die Lichtleistungsdichte von Laserdiode und LED kaum, d.h. Defekte spielen bei diesen Strömen keine wesentliche Rolle. Erst bei Strömen oberhalb von 30 mA weichen die Lichtleistungskurven voneinander ab. Bei etwa 120 mA sättigt die Lichtleistung der LED und sinkt anschließend wieder ab, während die Lichtleistungskurve der Laserdiode ein fast lineares Verhalten aufweist. Die unterschiedliche Erwärmung der Bauelemente macht sich in den Lichtleistungskurven bemerkbar. Dies hängt zum Einen mit der höheren Wärmeleitfähigkeit der GaN-Homosubstrate verglichen mit dem Saphir-Substrat zusammen, wodurch die Wärme effizienter abgeführt werden kann. Zum Anderen heizt sich das LED-Bauelement durch die höhere Defektdichte im Kristall schneller auf.

Die Ergebnisse zeigen, dass das Wachstum der InGaN Quantenpunkte nicht im Zusammenhang mit der Defektdichte steht, wie es oftmals bei Präsentationen und Konferenzen von Fachkollegen vermutet wurde¹. Der Vergleich zwischen der LED und den LDs zeigt, dass sich die Quantenpunkte unabhängig von der Substratqualität bilden. Die Quantenpunkte sind sehr temperaturstabil und damit für die Integration in Laserstrukturen geeignet. Um stimulierte Emission der Bauelemente zu erreichen, sind jedoch noch einige Punkte zu beachten.

Inwieweit der Quantenfilm sich negativ auf die Betriebseigenschaften der Bauelemente auswirkt, ist nicht eindeutig geklärt. Jedoch ist vorstellbar, dass der Quantenfilm einen parasitären Einfluss hat und massiv Ladungsträger, im besonderen Löcher, davon abhält, in die Quantenpunktschichten vorzudringen. Stattdessen findet strahlende und vor allem nichtstrahlende Rekombination im Quantenfilm statt. Eine Eliminierung des Quantenfilmes sollte zu einer wesentlichen Verbesserung der Bauelement-Betriebseigenschaften führen. Desweiteren können Quantenpunktstapelschichten sinnvoller eingesetzt werden, da mehr Ladungsträger zur Verfügung stehen, die auch in weiter unten liegende Schichten vordringen könnten. Weitere Punkte zur Verbesserung der epitaktischen Schichten werden in Abschnitt 5.4 diskutiert.

Neben den Problemen bei Wachstum der Schichten ist auch die Prozesstechnik noch nicht ausgereift und kann dafür verantwortlich sein, dass die Bauelemente nicht zur stimulierten Emission angeregt werden können. Der differentielle Widerstand von laserfähigen GaN-Laserdioden aus dem Jahr 2002 betrug 3Ω , während die aktuell diskutierten Laserdioden einen Wert von $7,5 \Omega$ haben. Dies zeigt, dass die Prozesstechnologie nicht optimiert ist. Weitere Probleme der Prozessierung wie der Lift-Off-Prozess in der Photolithographie, Leckströme durch poröse oder gebrochene Isolatorschichten, die Re-

¹Als Argument diene hierbei die ungefähre Übereinstimmung der Größenordnung der Dichten von Quantenpunkten und Defekten.

duzierung der Schottky-Barriere im Metall-Halbleiter-Übergang (siehe Abb. 2.7) oder die Präparation eines Steges mit einer Breite unterhalb von $10\mu\text{m}$ werden ausführlich in [Ebe10] und [Asc10] diskutiert.

5.3 Fortschritt auf dem Gebiet der Einzelphotonenemission

Im Abschnitt 3.4 wurde gezeigt, dass die Quantenpunktdichte mit Hilfe der Wachstumstemperatur über einen weiten Bereich von $10^8 - 10^{11}\text{ cm}^{-2}$ eingestellt werden kann. Mit einer hohen Quantenpunktdichte können, wie in den vorigen Abschnitten gezeigt, einfarbige und mehrfarbige LEDs betrieben werden und prinzipiell eignen sich derartige Strukturen auch für weiß emittierende LEDs sowie Laserdioden. Eine geringe Quantenpunktdichte hingegen kann dazu genutzt werden, das Tor für zukünftige Technologien zu öffnen. Die Quantenkryptographie kann zur abhörsicheren Datenübermittlung genutzt werden und mit Hilfe eines Quantencomputers könnten sonst zeitaufwendige mathematische Probleme schnell berechnet werden.

Derartige Technologien können mit einem elektrisch betriebenen Quantenpunkt in einer Mikrokavität realisiert werden, welcher in der Lage ist, einzelne Photonen zu emittieren. Dieser Abschnitt befasst sich mit dem Fortschritt auf dem Gebiet der elektrisch betriebenen Einzelphotonenemission.

5.3.1 Nachweis des elektrischen Betriebs eines Quantenpunkts

Der elektrische Betrieb einzelner Quantenpunkte ist wesentlich aufwendiger als die optische Anregung mit Hilfe eines Lasers. Problematisch ist die stabile Kontaktierung der Bauelemente, welche später in einem Kryostaten bei tiefen Temperaturen untersucht werden sollen. Es ist nicht ohne weiteres möglich, Mesastrukturen mit Hilfe des fokussierten Ionenstrahls zu präparieren, da diese vom elektrischen Strom separiert wären. Desweiteren behindert die Metallschicht den direkten optischen Zugang zu einem Quantenpunkt.

Mit Proben aus dieser Arbeitsgruppe, hergestellt von Arne Gust und basierend auf dem II-VI-Materialsystem, konnte das erste Mal im Jahre 2008 an einem breitlückigem Halbleitermaterialsystem die Emission eines einzelnen Quantenpunkts unter elektrischer Anregung nachgewiesen werden [AGK⁺08a]. Im Jahre 2009 wurde an diesem Institut der elektrische Betrieb eines einzelnen Quantenpunktes in einer RCLED (resonant cavity LED) präsentiert [GKO⁺09]. Damit war der Grundstein gelegt, den elektrischen Betrieb auch für einen InGaN Quantenpunkt in Nitrid-basierten Bauelementen nachzuweisen. In der Literatur findet sich ein Artikel der Gruppe von der Universität Cambridge in England, die den elektrischen Betrieb von mehreren InGaN Quantenpunkten gezeigt hat [JTO⁺08]. Der Nachweis eines einzelnen spektral isolierten InGaN Quantenpunkts unter elektrischer Anregung ist Joachim Kalden mit Proben, die im Rahmen dieser Arbeit hergestellt wurden, gelungen [KTS⁺10a].

Es gibt mehrere Möglichkeiten, den Licht undurchlässigen Ni/Au p-Metallkontakt zu

umgehen. Zum einen könnte ein transparenter Indiumzinnoxid-(ITO-)Metallkontakt benutzt werden [LCS⁺03]. Zum anderen wäre ein dünner Ni/Au-Metallkontakt unterhalb von 15 nm ausreichend, um noch eine 80%ige Transparenz zu erhalten [KP04]. Beides hätte den Nachteil, dass ein großflächiger Teil angeregt wird, wodurch die Spektroskopie einer einzelnen Linie kaum möglich ist.

Dies lässt sich mit einer prozesstechnischen Eigenschaft des Ni/Au-Metallkontaktes umgehen. Um die Schottky-Barriere im Metall-Halbleiter-Kontakt zu minimieren, ist ein Ausheizschritt unter Sauerstoffatmosphäre notwendig. Bei diesem Schritt entstehen Nanooperaturen nach dem Modell von [LJNK07]. Diese können genutzt werden, um bei vollflächiger Anregung nur einen kleinen Bereich zu spektroskopieren, während die umgebenden Bereiche durch die Absorption im dicken Metallkontakt ausgeblendet werden.

Der elektrische Betrieb eines einzelnen Quantenpunkts wurde an der bei 500 nm emittierenden LED aus Abb. 5.2 demonstriert. Der Aufbau der Probe mit den Nanoporen ist links in Abb. 5.11 dargestellt. Das μ -EL-Spektrum der Probe ist im rechten Graphen abgebildet. Das Maximum des EL-Spektrums ist verglichen mit dem Spektrum aus Abb. 5.2 aufgrund der niedrigen Temperaturen im Bereich von 4 K zu höheren Energien verschoben. Es ist bei 2,35 eV eine spektral scharfe Einzelleine detektierbar, die nahezu untergrundfrei ist. Diese Einzelleine lässt sich bis 150 K verfolgen

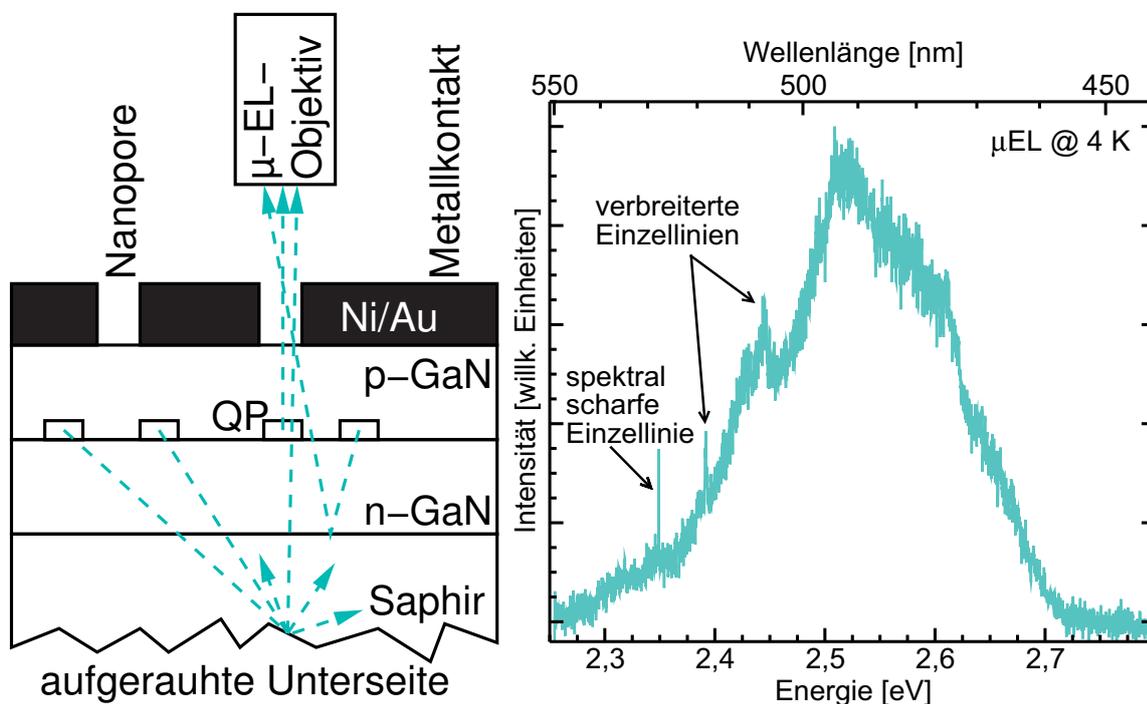


Abbildung 5.11: Links: Schematischer Aufbau der Probe mit der nanoporösen Metallmaske und dem μ -EL-Objektiv über der Probe. Die blauen gestrichelten Linien kennzeichnen den möglichen Lichtweg eines Photons von einem Quantenpunkt (QP) in das Objektiv was entweder direkt oder über Streuung des Lichtes an der aufgerauten Saphirunterseite geschieht. Rechts: μ -EL-Spektrum der bei 500 nm emittierenden LED aus Abb. 5.2. Die Messung wurde von Joachim Kalden aus der AG Gutowski durchgeführt.

[KTS⁺10b, KTS⁺10a]. Weitere ausführliche Details können in [Kal10] nachgelesen werden. Es sind noch zusätzliche Einzellinien bei 2,39 eV und 2,44 eV erkennbar. Ansonsten ist das Spektrum überlagert von der Lumineszenz des Quantenpunktensembles, die hauptsächlich durch Streuung an der rauen Unterseite des Saphirsubstrates erzeugt wird. Die schematische Zeichnung des Lichtwegs ist links in Abb. 5.11 in den Probenaufbau eingezeichnet. Vermutlich sind aufgrund der Streuung keine weiteren Einzellinien im Spektrum sichtbar.

Eine Möglichkeit diese störende, gestreute Quantenpunktlumineszenz zu minimieren ist die Reduktion der Bauelementgröße auf einen Durchmesser von wenigen μm . Dazu sind technologisch sehr aufwendige Prozessschritte notwendig. Diesen Ansatz hat Malte Fandrich in seiner Diplomarbeit verfolgt [Fan09]. Darin ging es u.a. um die Prozessierung einer Mikrokavitätsstruktur mit Intrakavitätsmetallkontakten. Im Idealfall enthält ein derartiges Bauelement einen einzigen elektrisch betreibbaren Quantenpunkt. Der elektrische Betrieb eines einzelnen Quantenpunkts konnte bisher noch nicht nachgewiesen werden, dennoch wurden Fortschritte erzielt, wie die nächsten Abschnitte zeigen werden.

5.3.2 InGaN Quantenpunkte in einer monolithischen Kavität

Um eine starke Vorzugsrichtung und eine Erhöhung der spontanen Emission eines Quantenpunkts zu erhalten, bietet sich die Integration von Quantenpunkten in Mikrokavitätsstrukturen an. Eine Kavitätsstruktur besteht aus einem Bragg Spiegel (kurz: DBR für engl. distributed Bragg reflector), welcher in seiner Periodizität durch eine Kavität gestört ist. Hiermit wird bei einer geeigneten Dicke der Kavität erreicht, dass das sonst undurchlässige Stopband bei einer gewissen Wellenlänge transparent ist [Dar07]. Um eine Kavitätsstruktur mit InGaN Quantenpunkten zu erhalten wurden zuerst auf einem GaN-Saphir-Substrat ein 40-fach DBR abgeschieden. Dieser DBR besteht aus abwechselnden GaN-AlInN-Spiegelpaaren. Der InN-Gehalt im AlInN beträgt 18 %, wodurch das AlInN die gleiche Gitterkonstante wie GaN hat. Dadurch wird gewährleistet, dass keine Verspannungen in den Schichten auftreten. Die Schichtdicke ist auf eine Zielwellenlänge von 500 nm eingestellt worden. Für GaN bzw. $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}$ beträgt die $\lambda/4$ -Schicht wegen des Brechungsindex von 2,4 bzw. 2,2 bei Raumtemperatur 52,8 nm bzw. 56,8 nm [Asc10]. Aufgrund von thermodynamischen Effekten (siehe Abschn. 1.2) findet das Wachstum von $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}$ bei 820 °C statt. Die GaN-Schichten wurden bei 1050 °C abgeschieden. Während der Temperaturrampen fand kein Wachstum statt. Die Dicke der n-dotierten λ -GaN-Kavität von 208 nm entspricht der Zielwellenlänge im Medium. Im Zentrum der Kavität wurde eine einzelne InGaN Quantenpunktschicht bei 600 °C abgeschieden und bei 750 °C mit 8 nm GaN und während einer Temperaturrampe von 820-1050 °C mit 12 nm GaN überwachsen, um die restliche obere Kavität wieder bei optimalen Wachstumstemperaturen abzuschneiden. Auf die Kavität wurde ein 20-fach DBR aus GaN- $\text{Al}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{N}$ -Paaren gewachsen. Der Aufbau dieser Struktur ist in Abb. 5.12 (links) dargestellt.

Der Graph in Abb. 5.12 (rechts) beinhaltet das Reflektivitätsspektrum (aufgenommen bei Raumtemperatur) und die $\mu\text{-PL}$ -Ergebnisse (aufgenommen bei 4 K). Das Stopband hat eine Halbwertsbreite von 0,15 eV und weist den kavitätsmodenbezogenen Dip bei 2,5 eV auf. Die maximale Reflektivität liegt bei 92 %, was unterhalb des theoretisch

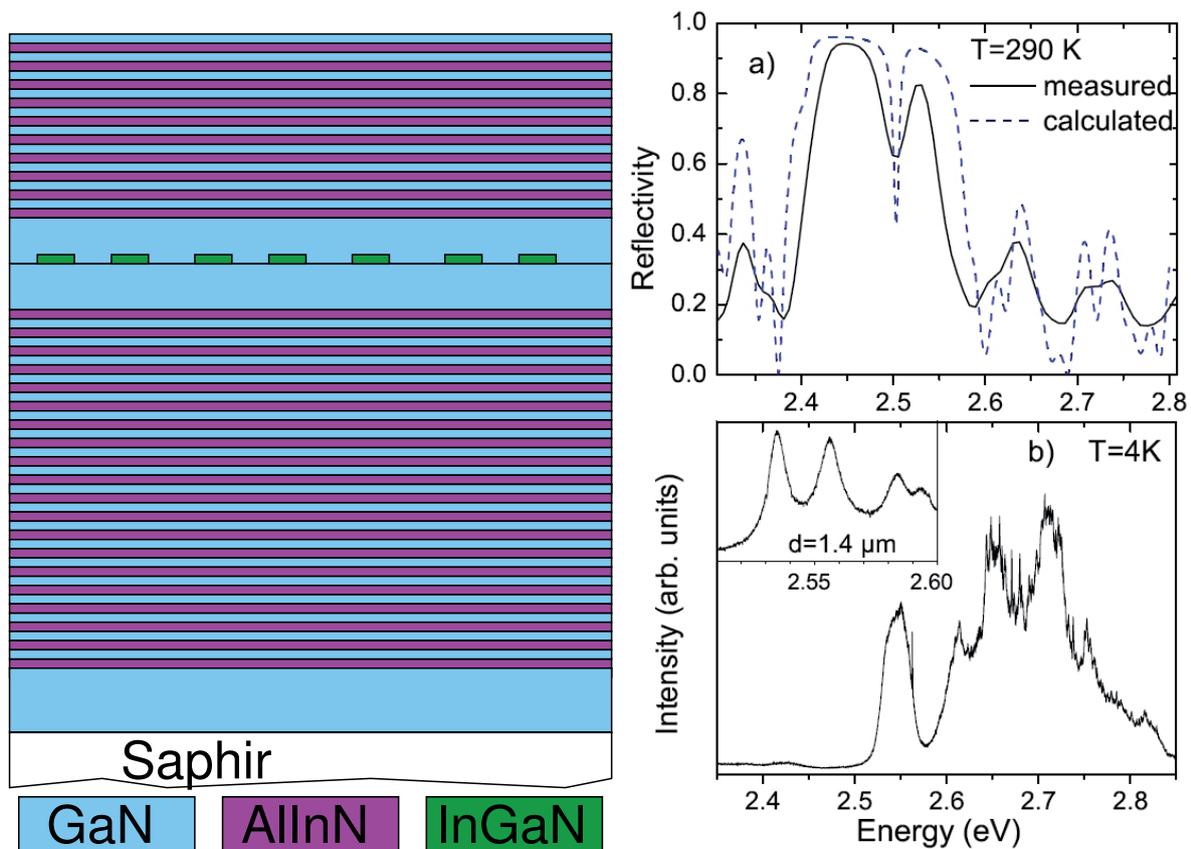


Abbildung 5.12: Links: Probenaufbau der Quantenpunkt-Kavitätsstruktur. Rechts oben: Vergleich zwischen gemessenen und simulierten Reflektionsspektrum. Bei Raumtemperatur liegt die Kavitätsmode bei 2,5 eV. Rechts unten: μ -PL-Messungen zeigen die Kavitätsmode bei 2,55 eV und scharfe Einzellinien im höherenergetischen Bereich. Die Messungen und Berechnungen sind von Moritz Seyfried und Kathrin Sebald durchgeführt worden. Die Graphen sind aus der Veröffentlichung [SSK⁺10] entnommen.

berechneten Wert von 95 % liegt. Mehrere Gründe können hierfür verantwortlich sein. Zum Einen reduzieren Defekte die Reflektivität, da Strahlung absorbiert wird. TEM-Untersuchungen haben gezeigt, dass die Dicken der einzelnen Schichten nicht konstant sind, sondern eine leichte Variation aufweisen [DTA⁺11]. Der GaN-AlInN-Übergang ist scharf, während der AlInN-GaN-Übergang sehr breit ist. Die Ursache liegt wahrscheinlich an der Temperaturrampe von 820-1050 °C, in der kein Wachstum stattfindet. Hierbei desorbiert Indium bzw. InN aus den obersten Schichten, wodurch diese rau wird [ADK⁺10].

Die μ -PL Ergebnisse zeigen, dass die Integration der Quantenpunkte erfolgreich war. Eine breite Quantenpunktbande mit überlagerten spektral scharfen Emissionslinien ist im Bereich von etwa 2,60-2,85 eV detektierbar. Die Kavitätsmode liegt bei 2,55 eV. Die Quantenpunktlumineszenz ist spektral auf der höherenergetischen Seite der Mode gelegen. Grund hierfür ist die Verstärkung einzelner Quantenpunkte und nicht ein ganzes Quantenpunktensemble durch die Kavitätsmode. Es ist die Emission eines einzelnen Quantenpunkts an der hochenergetischen Schulter der Kavitätsmode zu erkennen. Wei-

tere Details finden sich in [SSK⁺10].

Aus wachstumstechnischer Sicht ist das Wachstum der oberen Kavität und der oberen 20 Spiegelpaare bezogen auf die Quantenpunkte kritisch. Dieser Prozess dauert mehr als dreieinhalb Stunden, wobei die Temperaturen von 820-1050 °C variieren. Selbst eine derart lange Hochtemperatur-Behandlung wirkt sich in keiner Weise negativ auf die Quantenpunkte aus. Wie schon bei der Laserstruktur in Abschnitt 5.2 zeigt sich, dass die Quantenpunkte sehr temperaturstabil sind. Die Quantenpunkte sind somit für derartige Strukturen, welche bei hohen Temperaturen hergestellt werden müssen, sehr gut geeignet.

5.3.3 Elektrischer Betrieb von Quantenpunkten in einer Kavität

In diesem Abschnitt soll gezeigt werden, dass es prinzipiell möglich ist, einzelne Quantenpunkte in einer Mikrokavität elektrisch zu betreiben. Problematisch ist hierbei die Tatsache, dass es bisher noch nicht gelungen ist, AlInN im ausreichenden Maße zu dotieren. Dadurch wirken diese Schichten wie ein Isolator, wodurch eine einfache Prozessierung z.B. wie bei einer LED nicht möglich ist. Die Lösung ist hierbei die Anwendung von Intrakavitätskontakten. Dazu wird die Kavität unterhalb der Quantenpunktschicht n-dotiert und oberhalb p-dotiert. Die Prozessierung ist sehr aufwendig, da versucht werden muss, die Metallkontakte an die jeweils nur wenige 100 nm dicken dotierten Schichten heranzuführen.

Um zu zeigen, dass es prinzipiell möglich ist, Elektrolumineszenz eines derartigen Bauelements zu erhalten, wurde zuerst eine "makroskopische" Struktur prozessiert. Eine schematische Darstellung ist in Abb. 5.13 (links) gezeigt. Die Abmessungen des Bauelementes betragen mehrere hundert μm . Die Wachstumsstruktur ist wie folgt gegliedert. Auf einem GaN-Saphir-Substrat wurde ein 40-fach DBR abgeschieden, wie es schon im vorherigen Abschnitt erläutert wurde. Um die Prozesstechnologie zu vereinfachen, wurde eine 5λ -Kavität gewachsen. Dies soll gewährleisten, dass das n- und p-dotierte GaN mit Hilfe des Ionenstrahlätzen leichter offengelegt werden kann, da es beim Ätzen lokal zu unterschiedlichen Ätzraten kommen kann. Die Kavität bestand aus 500 nm n-GaN, einer einzelnen InGaN Quantenpunktschicht und 500 nm p-GaN. Auf dieser Struktur wurden weitere zehn Spiegelpaare abgeschieden. Nach der p-Aktivierung wurde mit Photolithographie und Ionen-Strahl-Ätzen eine 600 μm breite quadratische Mesa präpariert mit einem 200 μm breitem Loch im Zentrum. Vorgesehen war eine Ätztiefe bis ins p-Gebiet des GaN für das Loch im Zentrum und bis ins n-Gebiet außerhalb der Mesa. Es wurde ein Ni/Au-Metallkontakt in das Loch auf das p-GaN und ein Ti/Al-Metallkontakt auf das n-Gebiet außerhalb der Mesa abgeschieden.

Das Elektrolumineszenzspektrum des Bauelementes mit den wesentlichen optischen Eigenschaften ist in Abb. 5.13 (rechts) abgebildet. Die Reflektivität weist einen maximalen Wert von 0,82 und einen kavitätsmodenbezogenen Dip bei 510 nm auf. Das PL-Spektrum wurde vor der Prozessierung der Probe an der untersuchten Stelle durchgeführt und unterscheidet sich leicht vom EL-Spektrum. Die PL ist außerhalb des Stoppbands auf der höherenergetischen Seite am Stärksten ausgeprägt. Die EL zeigt die maximale Intensität bei 510 nm und wird in einem schmalen Bereich um diese Emission aufgrund des Stoppbandes stark unterdrückt. Der elektrische Betrieb des makroskopisch prozessierten Bauelements einer Quantenpunkt-Kavität wurde somit gezeigt.

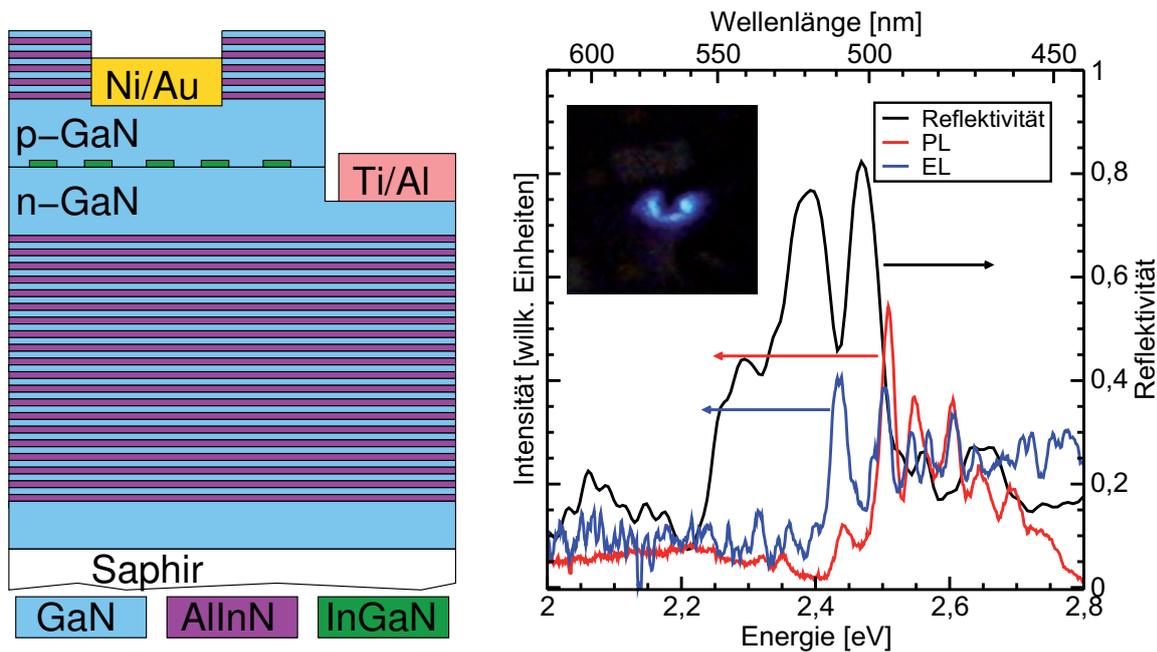


Abbildung 5.13: Links dargestellt ist das Schema der prozessierten Kavität. 40-fach DBR unterhalb und 10-fach DBR oberhalb der 5λ -Kavität. Zentral in der Kavität liegt die Quantenpunktschicht, welche auf einer 500 nm dicken n-dotierten GaN-Schicht aufgewachsen und mit einer 500 nm dicken p-dotierten GaN-Schicht überwachsen ist. Mit Hilfe von Lithographie und Ionenstrahlätzen wird in die p- und in die n-Schicht geätzt. Der Ni/Au-Kontakt befindet sich auf dem p-GaN und hat eine Breite von 200 μm . Der Ti/Al-Kontakt befindet sich auf dem n-GaN und hat ebenso eine Breite von 200 μm . Die Breite der Mesastruktur beträgt 600 μm . Rechts dargestellt ist der Graph mit den optischen Ergebnissen bezüglich Reflektivität, Photolumineszenz (PL) und Elektrolumineszenz (EL). Links oben im Graphen ist eine Photographie eines Bauelements im elektrischen Betrieb eingesetzt. Es ist die Lumineszenz um den Ni/Au-p-Kontakt zu sehen. Die Reflektivitäts- sowie PL- und EL-Messungen wurden von Heiko Dartsch durchgeführt.

Die nächste Aufgabe bestand darin, möglichst einen einzelnen Quantenpunkt in einer Kavität zu betreiben, dessen spontante Emission aufgrund der Kavitätsmode das Bauelement vertikal durch den oberen DBR verlässt. Die angestrebte Struktur ist vom Aufbau der Schichten identisch mit Abb. 5.13 (links), hat jedoch einen Durchmesser von wenigen μm . Die Diplomarbeit von Malte Fandrich [Fan09] behandelt die μ -Prozessierung von derartigen Bauelementen mit der fokussierten Ionenstrahlanlage. Hierbei werden an die freigelegten Seitenfacetten der Mesastruktur Platin-Intrakavitätskontakte gesetzt. Durch eine Isolatorschicht getrennt ist somit die n- und p-dotierte GaN-Schicht kontaktiert. Eine prinzipielle Darstellung ist in Abb. 5.14 gezeigt.

Obwohl die Prozessierung der Bauelemente erfolgreich war und die Strom-Spannungskennlinie (hier nicht gezeigt) im Ansatz eine für einen p-n-Übergang charakteristischen Verlauf zeigte, wurde bisher noch keine Elektrolumineszenz dieser Bauelemente detektiert. Dies kann mehrere Gründe haben. Zum einem wäre möglich, dass die Intensität der Probe zu schwach ist, was mit der Größe des Bauelementes zu erklären wäre. Bei einem typischen Mesadurchmesser von 3 μm und der Annahme, dass eine vergleichbare

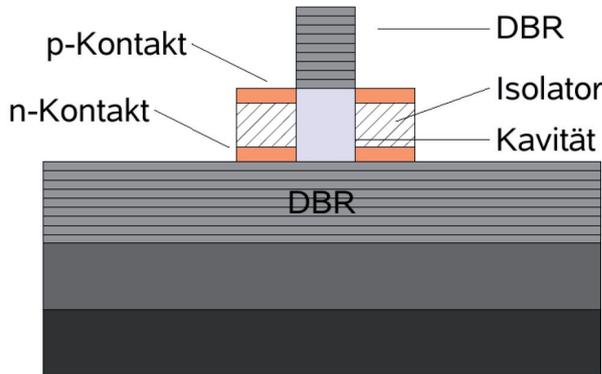


Abbildung 5.14: Probenaufbau einer elektrisch betriebenen Mikrokapazität mit Intrakavitätskontakten, aus [Fan09]. Der schwarze Bereich markiert das Saphirsubstrat, der graue die 2 µm dicke GaN-Schicht. Darauf aufgebracht ist der DBR bestehend aus abwechselnden Spiegelpaaren von AlInN und GaN. Die Kavität, hier nicht dargestellt, ist in der unteren Hälfte n- und in der oberen p-dotiert. Der n- und der p-Kontakt bestehen aus Platin, der Isolator besteht aus amorphem Aluminiumoxid.

LED 100 µW bei einer Fläche von $2 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^2$ abstrahlt, wäre eine Lichtleistung von 3,5 nW zu erwarten. Dies liegt fast zwei Größenordnungen unter der LED, die in Abb. 5.4 (rechts) gezeigt ist. Diese LED war schon sehr schwer mit dem bloßen Auge zu erkennen. Eine nicht mit bloßem Auge zu erkennende Lichtquelle lässt sich nur sehr schwer in einen einfachen optischen Messstand einjustieren, wodurch eine erfolgreiche Messung zufallsbedingt ist. Eine Messung in einem µ-EL-Aufbau wurde bisher nicht durchgeführt.

Ein weiteres Problem könnte in der Schottky-Charakteristik des Platin-Halbleiterübergangs liegen. Es ist nicht zu erwarten, dass der unbehandelte Pt-GaN-Übergang eine ohmsche Charakteristik aufweist wie der bei 500 °C ausgeheizte Au/Ni-GaN-Übergang. Deswegen ist ein optimaler Betrieb des Bauelements wahrscheinlich nicht gewährleistet. Hier gilt es evtl. durch geeignete Ausheizschritte den Pt-GaN-Übergang zu optimieren oder alternative Materialien zu verwenden. Zusätzlich sollte berücksichtigt werden, dass für Metallkontakte auf Flächen senkrecht zur *c*-Ebene des GaN andere Prozessparameter zu einem optimalen Ergebnis führen [BSK⁺10].

5.4 Ausblick: Ansätze zur Steigerung der InGaN Quantenpunktemission

In den vorangegangenen Abschnitten gab es starke Hinweise, dass der zusätzliche Quantenfilm oberhalb der Quantenpunkte, welcher durch die Auflösung der InN-reichen InGaN Inseln entsteht, womöglich einen stark parasitären und damit negativen Einfluss auf den Ladungsträgerfluss in einem Bauelement hat. Die Eliminierung dieses Quantenfilms könnte dazu führen, dass keine Ladungsträger mehr im Quantenfilm strahlend rekombinieren und weniger Ladungsträger an Defekten nicht-strahlend rekombinieren. Dadurch stehen mehr Ladungsträger für die strahlende Rekombination in den Quantenpunkten zur Verfügung. Es lässt sich annehmen, dass in dem Fall ohne Quantenfilm die Stapelung der Quantenpunktschichten zu einem höheren Lumineszenzgewinn führen könnte.

Eine konkrete Möglichkeit zur Eliminierung des Quantenfilmes könnte das Wachstum der zweiten GaN-Deckschicht bei höheren Temperaturen wie z.B. 900-1050 °C sein. In dieser Arbeit fand dies üblicherweise bei 820 °C statt. Durch die höheren Temperaturen kann es zur vollständigen Desorption von Indium von der Oberfläche kommen, welches durch die Auflösung der InN-reichen InGaN-Inseln entstanden ist. Für die Bildung eines InGaN Quantenfilms während des eigentlichen Wachstums der zweiten GaN-Deckschicht ist somit kein Indium mehr vorhanden. Zwei Punkte sind hierbei noch zu berücksichtigen. Erstens muss die Temperatur der ersten GaN-Deckschicht niedrig genug gewählt werden (ca. 700 °C), damit die Auflösung der InN-reichen Inseln nicht schon während des Wachstums der ersten GaN-Deckschicht stattfindet. Zweitens sollte die erste GaN-Deckschicht nicht zu dünn gewählt werden, um eine Desorption der GaN Deckschicht und schließlich der InGaN Quantenpunkte während der Rampe auf hohe Temperaturen zu vermeiden.

Im den folgenden Abschnitten werden weitere vielversprechende Ansätze zur Steigerung der InGaN Quantenpunktintensität aufgezeigt und diskutiert, wie der Einsatz einer AlGaN-Loch-Sperrschicht und der Einfluss des Gradienten der Dotierkonzentration. Die letzten drei Unterabschnitte beschäftigen sich mit dem Wachstum von InGaN Quantenpunkten auf InN-Unterlagen, in AlN-Barrieren und auf unpolaren *a*-Ebenen GaN-Pufferschichten. Ziel der Untersuchungen ist die Modifikation des Bandverlaufs. Energetische Barrieren sollen zur Erhöhung des Ladungsträgereinschlusses führen. InN-Unterlagen oder das Wachstum auf unpolaren *a*-Ebenen GaN sollen den Überlapp der Elektronen- und Lochwellenfunktion erhöhen. Es soll geklärt werden, ob das Wachstum von Quantenpunkten auch auf diesen modifizierten Unterlagen realisierbar ist dies zu einer Reduzierung des QCSE (siehe Abschn. 1.6) führt.

5.4.1 Einsatz einer n-AlGaN-Loch-Sperrschicht

In Abschnitt 5.1.3 wurde anhand einer Probe mit dreifach gestapelter Quantenpunktschicht gezeigt, dass die einzelnen Quantenpunktschichten bei unterschiedlichen Strömen ihr Lichtleistungsmaximum haben. Daraus lässt sich schlussfolgern, dass es zur thermischen Streuung der Ladungsträger aus den Quantenpunktniveaus in das Kontinuum kommt. Elektronen haben mit $0,2 \cdot m_0$ [BLRZ01] (m_0 : Elektronenmasse) eine geringere effektive Masse als Löcher mit $1,4 \cdot m_0$ für ein schweres und $0,3 \cdot m_0$ für ein leichtes Loch [LTS⁺96], was einen Streuprozess wahrscheinlicher macht. Allerdings sind die Löcher aufgrund des Valenzbandversatzes [VM03] näher am Kontinuum, weshalb thermische Streuung beider Ladungsträger im ähnlichen Maße aus den Quantenpunktniveaus zu erwarten ist.

Um ein Überströmen der Elektronen aus der aktiven Region in die p-dotierte GaN-Schicht zu verhindern, hat sich der Einsatz einer Elektronen-Sperrschicht bewährt. Diese Schicht besteht aus einem Material größerer Bandlücke, welche zusätzlich p-dotiert ist. In unserer Arbeitsgruppe hat sich eine 20 nm dicke p-dotierte $\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$ bewährt [Mei06]. Die Dotierung bezweckt einen Bandversatz zu höheren Energien, wodurch die Sperrschicht hauptsächlich im Leitungsband wirkt und den Elektronenfluss ins p-Gebiet verhindert. Die Löcherleitung wird im Wesentlichen nicht behindert.

Auf eine Löcher-Sperrschicht wurde bei GaN-basierten Bauelementen aufgrund der niedrigen Mobilität und der geringen Löcherkonzentration bisher verzichtet. Rechnung-

nen an einer fünffach gestapelten Quantenfilmschicht zeigen, dass die Löcherverteilung sehr inhomogen ist und schon bei der dritten Schicht nur noch eine verschwindend geringe Löcherkonzentration vorhanden ist [KCTY09, KTY⁺09]. Eine Loch-Sperrschicht ist daher nicht als besonders vielversprechend bezüglich einer Bauelementeoptimierung anzusehen.

Es soll im folgenden dennoch der Einsatz und die Auswirkungen einer Loch-Sperrschicht in einem Bauelement diskutiert werden. Drei Proben wurden hergestellt, bestehend aus einer einzelnen Quantenpunktschicht, die bei 600 °C auf einem n-GaN-Saphir-Substrat abgeschieden wurde. Im Anschluss wurde während einer Rampe von 750-900 °C unter N₂-Atmosphäre und 900-1050 °C unter H₂-Atmosphäre eine GaN-Deckschicht gewachsen. Diese alternative GaN-Deckschichtprozedur hatte ursprünglich den Hintergrund, den Wachstumsprozess zu beschleunigen um Zeit zu sparen. Optische Untersuchungen haben darauf hingewiesen, dass auch eine derartige Prozedur möglich ist. Da jedoch die 750 °C ein kritischer Parameter bezüglich der Auflösung der InN-reichen InGaN-Inseln ist und durch die Rampe schnell höhere Temperaturen erreicht werden, ist eine derartige Prozedur nicht mehr zu empfehlen. Es hat sich gezeigt, dass über einen längeren Zeitraum, speziell nach einer neuen Temperatureichung, 750 °C nicht wieder exakt eingestellt werden kann, wodurch die Reproduzierbarkeit nicht mehr eindeutig gegeben ist. Im Anschluss an die GaN-Deckschicht wurde bei 1050 °C die 20 nm p-Al_{0,2}Ga_{0,8}N, die 250 nm p-GaN und die 30 nm p⁺-GaN Abschlusschicht abgeschieden.

Die erste Probe T wurde ohne Loch-Sperrschicht gewachsen. Die zweite Probe U hat eine n-dotierte Al_{0,2}Ga_{0,8}N-Schicht in einem Abstand von 10 nm unterhalb der Quantenpunkte. Bei der dritten Probe V beträgt der Abstand der n-dotierten Al_{0,2}Ga_{0,8}N-Schicht zu den InGaN Quantenpunkten 40 nm. Das Bandschema der Proben ist in Abb. 5.15 (links) abgebildet.

Die Lichtleistungs-Stromstärke-Messungen sind in Abb. 5.15 (rechts) dargestellt. Im linken Teilgraphen sind die Messungen im Dauerstrichbetrieb, im rechten die Messungen im gepulsten Betrieb abgebildet. Im gepulsten sowie im Dauerstrichbetrieb ist Probe V die lichtleistungsstärkste LED gefolgt von Probe T und B. Im gepulsten Betrieb, in dem thermische Effekte eine untergeordnete Rolle spielen, ist Probe T etwa doppelt so hell wie Probe U und Probe V fast doppelt so hell wie Probe T. Keine der Proben zeigt im betrachteten Bereich Sättigung.

Im Dauerstrichbetrieb hat Probe T ihr Leistungsmaximum bei 300 mA noch nicht erreicht. Aufgrund der schon ansetzenden Sättigung lässt sich abschätzen, dass eine maximale Lichtleistung um ca. 150 μW bei etwa 350-400 mA erreicht wird. Für Probe U setzt die Sättigung schon bei relativ niedrigen Stromstärken ein, das Maximum beträgt 50 μW bei 200 mA. Probe V ist mit 185 μW bei 270 mA die leistungsstärkste.

Der Einsatz einer Loch-Sperrschicht weist Vor- sowie Nachteile auf. Eine Loch-Sperrschicht im Abstand von 10 nm zur Quantenpunktschicht führt zu einer Verringerung der Lichtleistung und zu einem frühen Einsätzen der Sättigung. Befindet sich die Loch-Sperrschicht 40 nm unterhalb der Quantenpunktschicht, so ist die Lichtleistung erheblich gesteigert, und die Sättigung tritt erst bei höheren Stromstärken ein.

Eine Erklärung könnte sein, dass der Einsatz einer Loch-Sperrschicht im Abstand von 40 nm die Löcher effektiv davon abhält, über die aktive Region in die n-Schicht vorzudringen. Die Löcherdichte in der aktiven Region ist dadurch erhöht, wodurch die

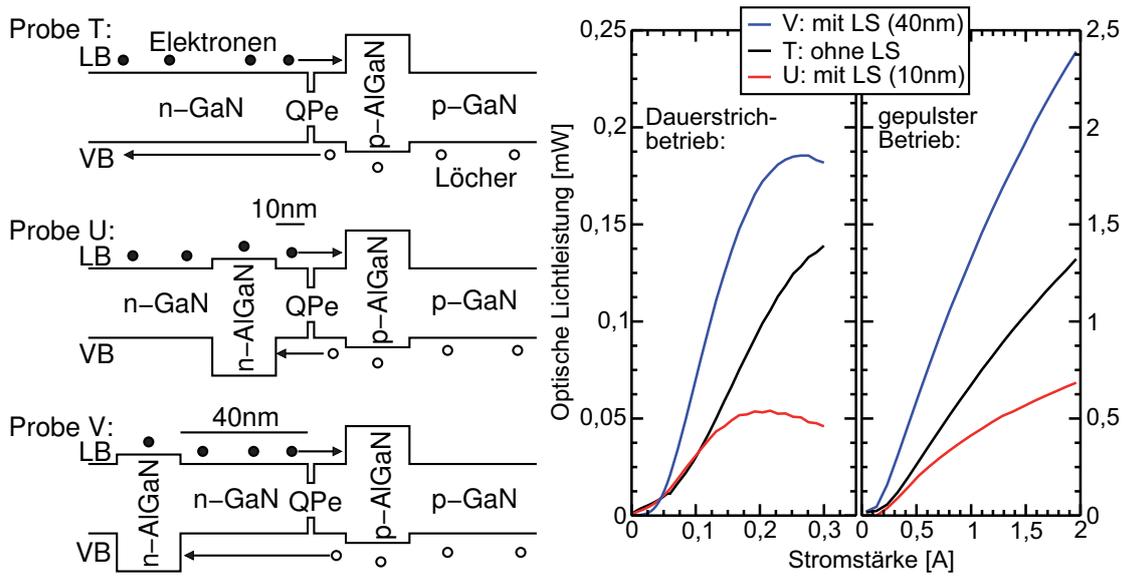


Abbildung 5.15: Links dargestellt ist das Bandschema der Proben T, U und V, welche ohne bzw. mit Loch-Sperrschicht (LS) im unterschiedlichen Abstand zur Quantenpunkt-(QP-)schicht gewachsen wurde. Rechts sind für die einzelnen Proben repräsentative Einzelmessungen zur optischen Lichtleistung in Abhängigkeit von der Stromstärke abgebildet. Im linken Teilbereich sind die Ergebnisse der Messungen im Dauerstrichbetrieb und im rechten Teilbereich im gepulsten Betrieb dargestellt.

Rekombinationsrate ansteigt, was schließlich zum Intensitätsgewinn führt. Jedoch widerspricht sich diese Annahme mit den Ergebnissen aus den Abschnitten 5.1.2 und 5.1.3, wo ein Vordringen der Löcher in die unteren Quantenpunktschichten nicht oder nur bedingt stattfindet.

Warum dieser Effekt bei der im Abstand von 10 nm unterhalb der Quantenpunkte angebrachten Loch-Sperrschicht nicht sichtbar ist und sogar bezogen zur Probe ohne Loch-Sperrschicht zu einer Verringerung der Lichtleistung führt, wird hier nicht eindeutig geklärt. Ein Grund könnte z.B. die Verspannung sein, die die n-AlGaN-Schicht ausübt. Dies könnte sich sowohl während des Wachstums negativ auf die Bildung der Quantenpunkte auswirken (siehe spinodale Kurven in Abhängigkeit vom Verspannungsgrad in Abschnitt 1.4.2) als auch den Verspannungsgrad in den Quantenpunkten in der fertigen Struktur erhöhen. Dies würde den QCSE verstärken. Ein weiterer Grund könnte sein, dass das AlGaN eine niedrige Qualität aufweist, da das Wachstum dieser Schicht nicht optimiert, sondern lediglich unter GaN-Wachstumsparameter abgeschieden wurde. Eine 10 nm dicke GaN-Schicht reicht nicht aus, um diese niedrige Qualität wieder auszugleichen, d.h. das InGaN wird auf einer Oberfläche mit schlechter Kristallqualität abgeschieden, wodurch letztendlich die Intensität des Bauelements leidet. Eine 40 nm dicke GaN-Schicht dagegen könnte ausreichend sein, dass wieder eine qualitativ hochwertige Oberfläche für die InGaN Quantenpunkte vorliegt. Eine Prüfung dieser Annahmen wären mit TEM-Untersuchungen möglich, wurden aber im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt.

5.4.2 Einfluss des Gradienten der Dotierkonzentration

Im Rahmen der Studienarbeit von Tim Grieb [Gri09] wurde festgestellt, dass die InGaN quantenpunkt-basierten Proben eine Kapazität aufweisen. Diese Kapazitäten treten aufgrund von Ladungsträgeransammlungen am Übergang zwischen zwei Schichten auf. Zur Reduzierung dieses Kapazitätsverhaltens wurden im Rahmen der Diplomarbeit von Tim Grieb [Gri10] zwei LED-Proben mit einer einzelnen Quantenpunktschicht hergestellt, bei denen die n-Dotierung nicht direkt unter der Quantenpunktschicht abrupt abbricht, sondern in einer Übergangsschicht linear abnimmt. Bis auf die Übergangsschicht sind die Proben vergleichbar mit der bei 500 nm emittierenden LED aus Abschnitt 5.1.1. Bei der ersten Probe wurde der für die n-Dotierung verantwortliche Silan-Fluss während des Wachstums des GaN-Substrats in einer 50 nm breiten Übergangsschicht von 1 sccm auf 0 sccm linear heruntergeregelt. Bei der zweiten Probe beträgt die Dicke der Übergangsschicht 100 nm. Die maximale n-Dotierkonzentration ist bei der ersten Probe 50 nm und bei der zweiten Probe 100 nm von der Quantenpunktschicht entfernt, d.h. der schwach leitende bzw. intrinsisch leitende Bereich ist bei der zweiten Probe größer als bei der ersten.

Auf die Ergebnisse bezüglich der Kapazität soll an dieser Stelle nicht eingegangen werden. Vielmehr sollen die Bauelemente bezüglich ihrer Lichtleistung diskutiert werden. Die maximal gemessenen Lichtleistungswerte der beiden Proben und der bei 500 nm emittierenden LED aus Abschnitt 5.1.1 sind in Tabelle 5.4 wiedergegeben.

n-Dotierung Übergangsschicht	maximale Ausgangsleistung
keine	140 μ W
50 nm	35 μ W
100 nm	20 μ W

Tabelle 5.4: Maximale Ausgangsleistungswerte für LEDs mit einer linear abnehmenden Si-Dotierung in der Übergangsschicht verglichen mit einer LED ohne Übergangsschicht.

Die Lichtleistung der Bauelemente nimmt stark ab, je weiter die maximale n-Dotierkonzentration von der Quantenpunktschicht entfernt ist. Für ein Bauelement ist es deshalb sinnvoll, die maximale Dotierung möglichst nah an die aktive Region heranzuführen. Eine derartige Schlussfolgerung kann auch für die p-Dotierung angenommen werden. In der Doktorarbeit von Stephan Figge [Fig03] wurde ein Segregationsmodell zum Einbau von Magnesium in GaN für die p-Dotierung vorgeschlagen. Dieses Modell besagt, dass nur ein prozentualer Teil des auf der Oberfläche vorhandenen Mg in das GaN eingebaut wird. Das restliche Mg schwimmt weiter auf der Oberfläche des GaN auf. Wird eine kritische Oberflächenbedeckung des Mg überschritten, so kommt es zur Bildung von V-Defekten. Dabei wird das Mg von der Oberfläche entfernt und in die V-Defekte eingebaut. Bei konstanten Flüssen der Mg- und Ga-Ausgangsstoffe kommt es somit zu einem Verlauf der Konzentration, wie es in Abb. 5.16 dargestellt ist. Oberhalb eines kritischen Mg/Ga-Verhältnisses kommt es nach einer bestimmten GaN-Schichtdicke zur Bildung von V-Defekten, wobei das Mg von der Oberfläche entfernt und in die V-Defekte eingebaut wird. Das Mg auf der Oberfläche muss sich neu ansammeln, bis

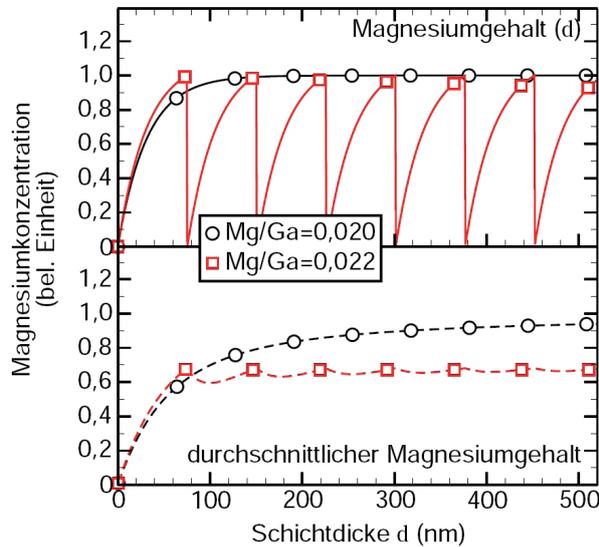


Abbildung 5.16: Verlauf der Magnesiumkonzentration in p-dotierten GaN-Schichten mit einem Mg/Ga-Wert unterhalb (0,020; Kreise) und oberhalb (0,022; Quadrate) des kritischen Wertes für die Generierung von V-Defekten, aus [Fig03]. Im oberen Teilbereich des Graphen ist die Akzeptorkonzentration in der Schicht in Abhängigkeit der Schichtdicke und im unteren Teilgraphen die durchschnittliche Akzeptorkonzentration bezüglich der gewachsenen Schicht dargestellt. Wachstum mit einem Mg/Ga-Verhältnis von 0,022 führt etwa alle 70 nm zur Entfernung des Mg von der Oberfläche; das Mg wird in V-Defekte eingebaut.

wieder die kritische Oberflächenbedeckung erreicht wird und erneut V-Defekte generiert werden. Wird ein Mg/Ga-Verhältnis unterhalb des kritischen Wertes gewählt, so wird die kritische Oberflächenbedeckung von Mg nicht erreicht und es kommt somit nicht zur Mg-Reduzierung und nicht zur Bildung von V-Defekten. Die Mg-Konzentration nähert sich asymptotisch der maximal möglichen Konzentration an, bei der es nicht zur V-Defektbildung kommt.

Ein p-GaN-Wachstumsprozess mit konstanten Flüssen führt in den ersten 50 nm zu einem annähernd linearen Anstieg der p-Dotierung, wie es in Abb. 5.16 zu erkennen ist. Bei 50 nm werden erst 80 % der maximalen Konzentration erreicht, erst ab 100 nm liegt die Konzentration über 95 %. Der Verlauf der Mg-Konzentration unterhalb von 50 nm ähnelt somit dem Verlauf der oben diskutierten Proben, bei der die n-Dotierung unterhalb der Quantenpunkte in einer 50-100 nm dicken Übergangsschicht vom Maximalwert auf null geregelt wird. Es liegt deshalb nahe, dass es zu einer ähnlichen Verbesserung der Lichtleistung eines Bauelements führen könnte, wenn die maximale p-Dotierung möglichst nah an die aktive Region herangezogen wird, ohne dass es zur Bildung von V-Defekten kommt. Negative Auswirkungen durch Mg-Diffusion zurück in die aktive Region, wie es bei quantenfilmbasierten Lichtemittern berichtet wird [KKM⁺08] und was zu einer Verschlechterung der Bauelemente-Eigenschaften führt, ist nicht zu erwarten. Das Mg kann nur über Defektstellen zurück in die aktiven Schichten gelangen. Da quantenpunkt-basierte Bauelemente aufgrund des dreidimensionalen Ladungsträger-einschlusses die Propagation der Ladungsträger in die Defektstellen weitestgehend verhindert spielt es keine Rolle, ob die Defekte mit Mg dekoriert sind oder nicht.

Zwei einfache Wachstumsprozesse wären möglich, um die maximale Mg-Konzentration näher an die aktive Region heranzuführen. Zum einen könnte vor dem Wachstum des GaN die Oberfläche mit Mg bedeckt werden. Vor Erreichen der kritischen Oberflächenbedeckung von Mg wird die TMG-Leitung geöffnet und das Wachstum fortgesetzt. Eine weitere Möglichkeit wäre gleichzeitiges Öffnen beider Gasleitungen zum Reaktor, wobei

ein konstanter Mg-Fluss eingestellt wird während der TMG-Fluss in einer Rampe von null auf Endwert für eine bestimmte Zeit geregelt wird. Die zweite Methode hätte den Vorteil, dass ständig Gallium angeboten wird. Dadurch wird verhindert, dass bei der Wachstumstemperatur von hier üblichen 1050 °C Gallium aus dem bereits abgeschiedenen Material desorbiert und evtl. die Quantenpunkte freigelegt werden.

An dieser Stelle soll darauf hingewiesen werden, dass das Ausgangsmaterial Cp_2Mg wie das TMI in fester Form vorliegt. Die Problematik des nicht konstanten Dampfdrucks aufgrund des Füllstands/der Benutzungsdauer ist in Abb. 2.2 wiedergegeben. Bei der p-Dotierung werden sehr hohe bzw. gerätebedingt maximale Gasflüsse bis zu 500 sccm eingestellt, welche wie Abb. 2.2 zeigt, stark vom erwarteten Wert abweichen können. Günstig wäre auch in diesem Fall der Einsatz eines *Epison* zur Messung der Schallgeschwindigkeit, worüber die Konzentration in der Gasphase bestimmt werden kann. Ansonsten sollte stets über Eichproben die Mg-Konzentration im GaN mit entsprechenden Messungen ständig neu bestimmt werden.

5.4.3 InGaN Quantenpunkte auf InN-Unterlagen

Aufgrund der piezoelektrischen Felder im GaN kommt es zu einer Bandverbiegung wodurch eine räumliche Trennung der Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern auftritt, wie es in Abschnitt 1.6 in Abb. 1.11 dargestellt ist. Dies führt u.a. zu einer geringeren Rekombinationswahrscheinlichkeit. Dieser Effekt wird QCSE genannt.

Ein Ansatz um den QCSE zu reduzieren, ist der Einsatz einer InN-Monolage [CYW⁺09]. Die Lage hat eine sehr geringe Ausdehnung in vertikaler Richtung, so dass sich keine Energieniveaus in dem energetisch tiefen Trog ausbilden können. Die InN-Monolage hat den Effekt, dass die Elektronenwellenfunktion aus dem energetischen Minimum des Quantentrops in dessen Mitte verschoben wird. Resultierend ist ein höherer Überlapp der Wellenfunktionen. Ähnliche Effekte können auch mit aufeinander gestapelten InGaN-Schichten erreicht werden, die einen unterschiedlichen InN-Gehalt haben [AZET08]. In Abb. 5.17 sind Berechnungen der Wellenfunktionen und des Bandverlaufs im Quantentropssystem ohne (links) und mit InN-Monolage (mitte, rechts) dargestellt.

Ausgangspunkt bildet ein 1,8 nm dicker $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{N}$ -Quantentrog. Mit Einsatz einer monolage InN unter dem Quantentrog erhöht sich in diesem vereinfachten Beispiel der Überlapp von 55 % auf 61 %. Zusätzlich zum vergrößerten Wellenfunktionenüberlapp verschiebt die Wellenlänge stark ins Rote von 488 nm auf 537 nm. Die Verschiebung hängt jedoch stark von den gewählten Parametern wie Größe des Quantentrops und InN-Konzentration ab und kann durchaus auch eine Blauverschiebung aufweisen [CYW⁺09]. In Abb. 5.17 (rechts) ist gezeigt, wie weit die Höhe des Quantentrops reduziert werden kann, um die gleiche Emissionswellenlänge von 488 nm (2,54 eV) wie im Fall ohne InN-Monolage zu erreichen. Die Höhe verringert sich in diesem Beispiel von 1,8 nm auf 1,0 nm. Der Überlapp erhöht sich auf 87 %. Der Einsatz von InN-Monolagen unter die Quantenpunktschicht bzw. unter einer Quantenfilmschicht ist also eine vielversprechende Methode, den QCSE zu reduzieren und effiziente langwellige Lichtemitter herzustellen.

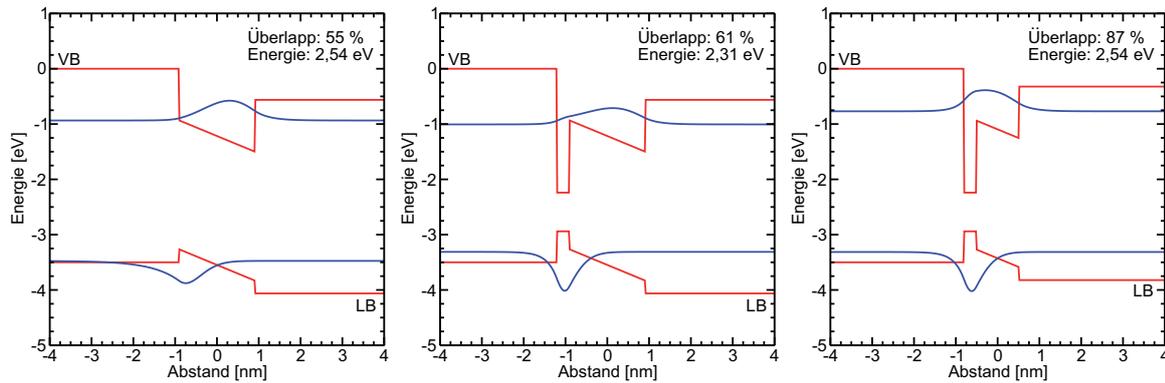


Abbildung 5.17: Wellenfunktionen im Quantentrog ohne und mit InN-Unterlage. Zur Berechnung des Valenz- und Leitungsbandverlaufs wurden die Daten aus Tab. 1.2 sowie Formel (1.2) verwendet. Für den InGaN-Quantentrog ist ein relativer Valenzbandversatz von 0,2 [VM03] und ein piezoelektrisches Feld nach [AMM⁺02] angenommen (siehe auch Abschn. 1.6). In der InN-Monolage wurde aufgrund der geringen Dicke das elektrische Feld vernachlässigt. Effektive Massen der Ladungsträger sind [VM03] entnommen. Zur Berechnung der Wellenfunktion der Elektronen und Löcher wurde die Schrödingergleichung numerisch gelöst. Das *matlab*-Programm hat Heiko Dartsch erstellt und wurde um das elektrische Feld erweitert.

Photolumineszenz von Quantenpunkten auf InN Monolagen

Vier Proben wurden hergestellt, um die Wirkung einer InN Monolage unter den Quantenpunkten experimentell zu untersuchen. Probe W ist die Referenzprobe und besteht lediglich aus einer Quantenpunktschicht ohne InN-Monolage. Bei den Proben X, Y und Z war es beabsichtigt, eine InN-Monolage abzuschneiden. Der MOVPE-Prozess beinhaltete dabei das Einleiten von 263 sccm TMI bei 600 °C für 4 s (Probe X), 8 s (Probe Y) und 16 s (Probe Z), wobei bereits eine Abscheidedauer von 4 s nominell einer InN-Monolage entspricht. Nach dem Abscheiden von InN wurde das Wachstum für 10 s unterbrochen. Hintergrund dieser Wachstumsunterbrechung ist das auf eine Monolage selbstlimitierte Wachstum von InN auf GaN aufgrund der großen Gitterfehlpassung [YCY⁺07]. Für das überschüssige Indium soll die Möglichkeit zur Oberflächendiffusion gegeben werden, wodurch die Ansammlung in Volmer-Weber artigen Inseln ermöglicht wird, ähnlich wie es nach der Phasenseparation von InGaN auftritt (siehe Abschn. 3.2). Damit soll, neben den Inseln, nur eine Monolage InN auf der Oberfläche verbleiben. Anschließend folgte das Wachstum der InGaN Quantenpunkte und das Deckschichtwachstum (Wachstumsdetails siehe Abschn. 4.3).

Die Raumtemperatur-PL-Spektren der vier Proben sind in Abb. 5.18 dargestellt. Die Referenzprobe W strahlt um etwa 490 nm. Der Einsatz von InN führt in Probe X und Y zu einer Rotverschiebung der Wellenlänge um 10 nm. Aufgrund der unterschiedlichen Stärke der gelben, mit Fabry-Perot-Resonanzen überlagerten Störstellenlumineszenz sowie der verglichen dazu relativ schwachen Quantenpunktlumineszenz lassen sich die Intensitäten nur durch einen Fit von zwei Gaußkruven (für gelbe Störstellen- und Quantenpunktlumineszenz) grob abschätzen. Die Quantenpunktintensität der Probe X beträgt 76 % und die der Probe Y 113 %, verglichen mit Probe W. Für Probe Z ist

keine Quantenpunktlumineszenz detektierbar. Nur bei 450 nm ist eine schwache Restlumineszenz erkennbar, die aufgrund der geringen Intensität und der stark verschobenen spektralen Position auf einen Quantenfilm hindeutet.

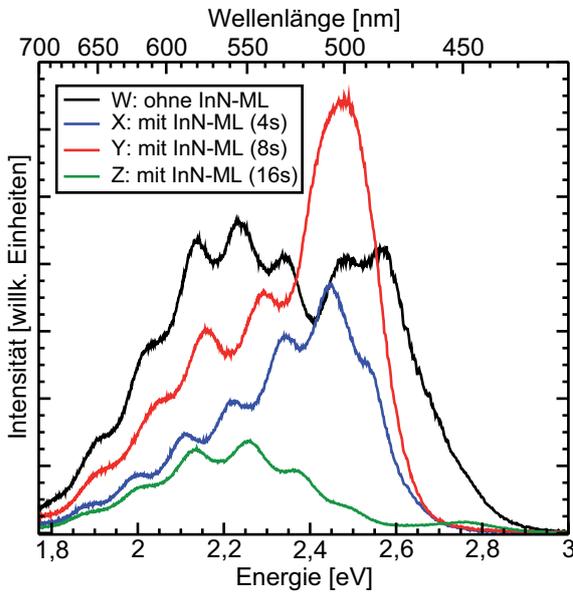


Abbildung 5.18: RT-PL-Spektren der Proben W, X, Y und Z unter Anregung mit einem 325 nm Laser. Probe W ist eine InGaN Quantenpunktprobe ohne InN-Monolage (ML). Bei Probe X wurde beabsichtigt, eine InN-Monolage unterhalb der InGaN Quantenpunkte abzuschneiden. Bei Probe Y wurde die doppelte und bei Probe Z die vierfache Menge an Indium während des Wachstums der ML angeboten. Nur für die Proben W, X und Y ist Quantenpunkt-PL zu sehen, während die Probe Z nur schwache Lumineszenz wahrscheinlich von einem Quantenfilm bei 2,75 eV zeigt. Um 550 nm ist die spektral breite gelbe Störstellenlumineszenz zu sehen.

Die PL-Spektren zeigen, dass das Abscheiden von InN vor dem Wachstum der Quantenpunkte im Falle der Probe Y einen positiven Effekt hat. Der Trend, eine höhere Intensität und eine Verschiebung zu niedrigeren Wellenlängen entspricht den Berechnungen, die in Abb. 5.17 graphisch dargestellt sind, auch wenn die Wellenlängenverschiebung nicht so stark wie berechnet ausfällt.

Inwiefern es tatsächlich zu der Bildung einer InN-Monolage in der Struktur gekommen ist, lässt sich hier nicht aufklären. Möglich wäre auch eine komplette Ansammlung des InN in Inseln, welches beim GaN-Deckschichtwachstums in einen Quantenfilm eingebaut wird. Eine weitere Diskussion der Ergebnisse ist deshalb an dieser Stelle sehr spekulativ. Um gefestigte Aussagen zu treffen sind noch weiterführende Untersuchungen wie TEM von der Struktur notwendig. Weitere Proben, wie z.B. eine Probe mit einer unbedeckten InN-Monolage, können aufklären, ob sich eine InN-Monolage ausbildet oder ob eher Akkumulation stattfindet.

5.4.4 Erhöhung des Ladungsträger einschluss durch AlN-Barrieren

In dieser Arbeitsgruppe wird neben den nitrid-basierten Halbleitern auch Forschung an dem II-VI-Materialsystem vorangetrieben. Es wurde u.a. gezeigt, dass sich der Einsatz von breitlückigen MgS-Barrieren um CdSe Quantenpunkten bewährt hat, um das Einschusspotential der Ladungsträger im Quantenpunkt zu erhöhen [GKH06]. Dadurch ist die thermische Anregung der Ladungsträger aus dem Quantenpunkt erschwert was zu einer höheren Lumineszenzausbeute bei Raumtemperatur führt. Im Gruppe-III-Nitrid-Materialsystem können vergleichbare Barrieren z.B. aus AlN bestehen, da AlN eine wesentlich größere Bandlücke als InN und GaN aufweist (siehe Tab. 1.2). Einen zusätzlichen Effekt haben Barrieren auf Materialien, in denen der QCSE auftritt. Durch die

Barrieren werden die Wellenfunktionen von den Rändern des Quantentrogs ferngehalten, wodurch sich der Überlapp erhöht.

Die Auswirkungen von AlN-Barrieren auf die Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern sind in den Graphen in Abb. 5.19 dargestellt. Beispielhaft ist in a) ein 1,8 nm dicker $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{N}$ Quantentrog ohne AlN-Barrieren gezeigt, dessen Bandkanten durch

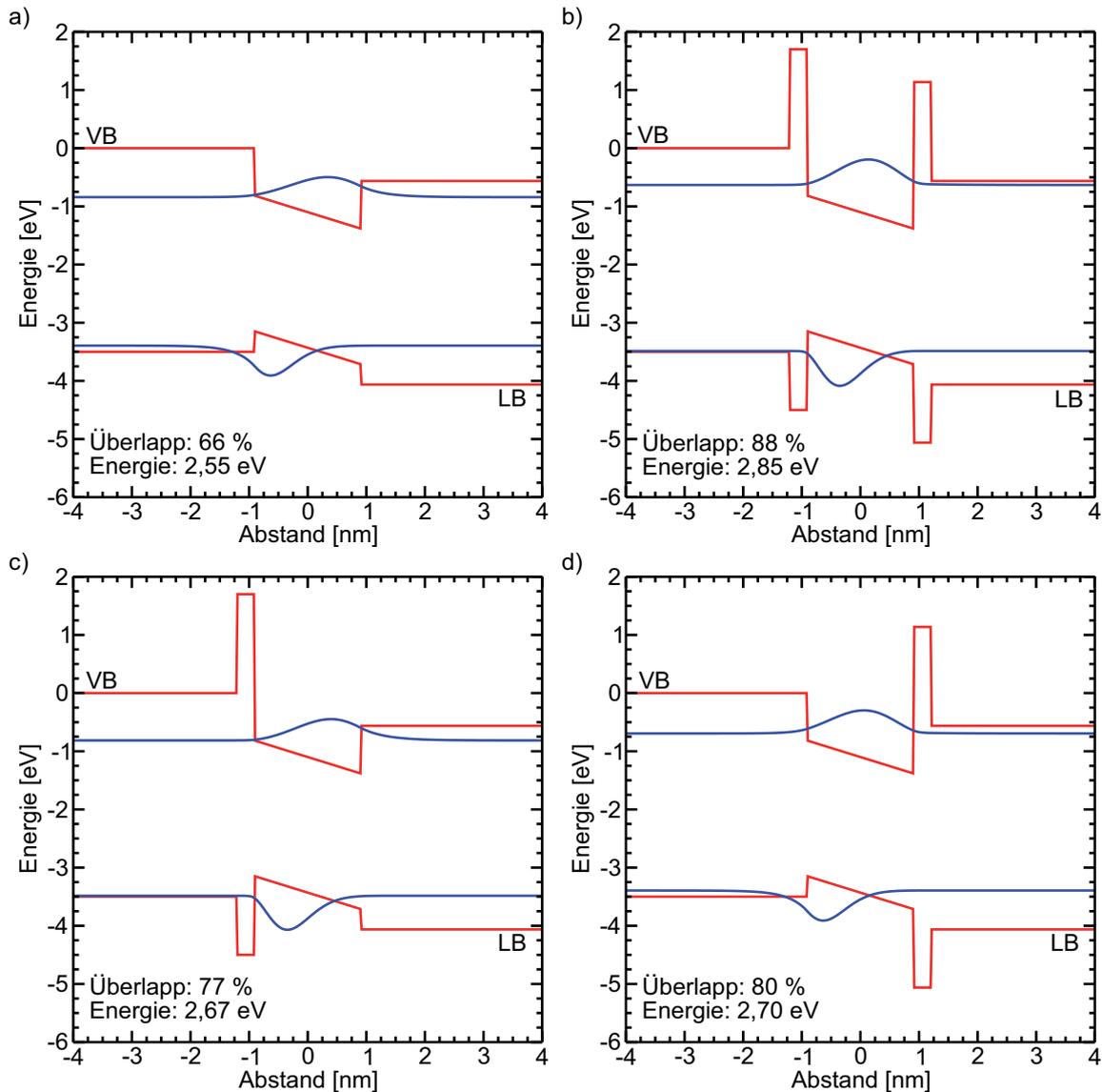


Abbildung 5.19: Es ist der Fall eines Quantentrogs gezeigt, indem die Wellenfunktionen durch die Anwesenheit des QCSE räumlich separiert sind. a) zeigt den Fall von InGaN in GaN ohne AlN-Barrieren, in b) befindet sich der Quantentrog eingeschlossen in AlN-Barrieren, c) betrachtet den Fall mit einer unteren und d) mit einer oberen AlN-Barriere. Durch den Einsatz einer oder zwei Barrierschichten lässt sich der Überlapp der Wellenfunktionen erhöhen. Ein weiterer Effekt ist die Verschiebung der Übergangsenergie zu höheren Werten. Eine obere AlN-Barriere wirkt sich stärker auf Überlapp und Energieverschiebung aus als eine untere AlN-Barriere. Zur Berechnung der Graphen siehe Erläuterungen in Abb. 5.17. Das *matlab*-Programm wurde von Heiko Dartsch erstellt.

das piezoelektrische Feld verkippt sind. Ohne Barrieren liegt die Übergangsenergie bei 2,55 eV und der Überlapp bei 66 %. Mit AlN-Barrieren, wie in b) dargestellt, die eine Dicke von einer Monolage haben, ist die Übergangsenergie auf 2,85 eV und der Überlapp auf 88 % erhöht. Um die gleiche Emissionsenergie von 2,55 eV beim Einsatz von AlN-Barrieren zu erhalten wäre ein 2,46 nm breiter $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{N}$ oder ein 1,8 nm breiter $\text{In}_{0,318}\text{Ga}_{0,682}\text{N}$ Quantentrog nötig (nicht in den Graphen in Abb. 5.19 gezeigt). Der Überlapp wäre dann jeweils 70 % oder sogar 85 %. Der Einsatz von AlN-Barrieren führt theoretisch zu einer Erhöhung der Rekombinationsrate.

Im Fall einer unteren AlN-Barriere (keine obere Barriere), wie in Abb. 5.19 c) dargestellt erhöht sich der Überlapp auf 77 % und die Energie schiebt auf 2,67 eV. Eine obere Barriere (keine untere Barriere) (siehe d)) führt zu einem Überlapp von 80 % und einer Bandlückenenergie des Troges von 2,70 eV. Diese beiden Beispiele werden im experimentellen Teil näher untersucht. Das Fazit dieser theoretischen Betrachtungen ist die positive Auswirkung von AlN-Barrieren auf die Intensitätsausbeute, unabhängig davon, ob nur obere, untere oder beide Barrieren den Quantentrog umgeben. Zusätzlich führt der Einsatz von AlN-Barrieren stets zu einer Verschiebung zu höheren Energien bzw. kleineren Wellenlängen.

Es ist jedoch zu berücksichtigen, dass die AlN-Schichten aufgrund ihrer großen Bandlücke wie eine Widerstandsschicht dem Ladungsträgerfluss entgegenwirkt. Die Ladungsträger können die AlN-Barrieren nur durch einen Tunnelprozess überwinden und sollten deshalb nicht zu dick sein, da sonst die Ladungsträger daran gehindert werden, in die Quantenpunkte einzudringen. Die AlN-Barriere kann jedoch auch einen positiven Effekt auf den Stromfluss haben, indem sie die Ladungsträgergeschwindigkeit verringert, so dass die Ladungsträger nicht mehr über die aktive Region hinausströmen und in die Quantenniveaus relaxieren können. Dieser Effekt wird bei dem Einsatz von AlInN-Barrieren unter InGaN Quantenpunkten angenommen [ZBB10].

Photolumineszenz von Quantenpunkten mit AlN Barrieren

Es soll gezeigt werden, welche Auswirkung eine obere und eine untere AlN-Barriere auf die Quantenpunktlumineszenz hat. Dazu wurden zwei Proben hergestellt. Bei Probe Φ wurden die InGaN Quantenpunkte direkt auf einer nominellen Monolage AlN abgeschieden. Das AlN wurde bei 1050 °C auf einem GaN/Saphir-Substrat abgeschieden. Bei Probe Ψ wurden die Quantenpunkte mit einer AlN-Monolage bei 750 °C überwachsen. Der beabsichtigte Bandverlauf ist in Abb. 5.19 c) für Probe Φ und in d) für Probe Ψ dargestellt. Problematisch bei Probe Ψ ist die Wachstumstemperatur der oberen AlN-Schicht bei 750 °C. Es ist nicht klar, in welcher Qualität das AlN aufgebracht wird und ob die auf der Oberfläche befindlichen Quantenpunkte komplett bedeckt werden. Aluminium besitzt bei einer derart geringen Temperatur aufgrund der hohen Bindungsenergie zum Stickstoff kaum Mobilität auf der Oberfläche. Zusätzlich sollte berücksichtigt werden, dass 750 °C eine kritische Temperatur bezüglich der Auflösung der InN-reichen InGaN-Inseln ist, d.h. es wird sich In bzw. InN auf der Oberfläche verteilt haben. Es könnte zur Bildung eines dünnen AlInN-Films anstelle einer AlN-Monolage gekommen sein.

Die Photolumineszenzergebnisse der Proben verglichen mit der Referenzprobe W ohne AlN-Barrieren sind in Abb. 5.20 dargestellt. Probe W weist Quantenpunktlumineszenz-

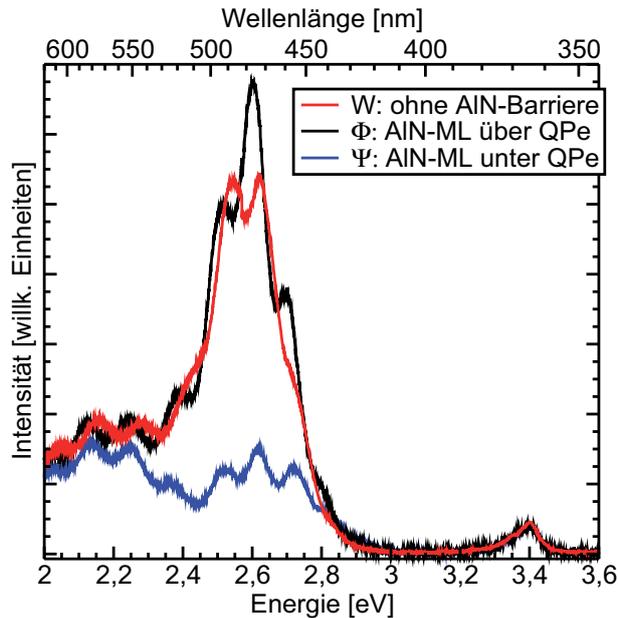


Abbildung 5.20: PL-Spektren aufgenommen bei Raumtemperatur unter Anregung mit einem 325 nm Laser. Die Referenzprobe W beinhaltet keine AlN-Bariere. Bei Probe Φ sind die Quantenpunkte (QPe) auf einer AlN-Schicht abgeschieden, bei Probe Ψ ist die AlN-Schicht auf den Quantenpunkten aufgebracht. Bei niedrigen Energien ist die gelbe Störstellenlumineszenz und bei hohen Energien die bandkantenennahe Emission von GaN sichtbar.

aktivität um 480 nm auf. Probe Ψ strahlt spektral bei der gleichen Wellenlänge, die Intensität hat sich nur geringfügig verbessert. Das Wachstum von AlN auf die Quantenpunkte scheint keine wesentlichen Auswirkungen auf die Quantenpunktlumineszenz zu haben. Die Lumineszenz bei Probe Φ ist dagegen massiv eingebrochen. Das Lumineszenzmaximum ist leicht um 10 nm zu kürzeren Wellenlängen verschoben. Auch, wenn in Abb. 5.19 c) die Berechnungen eine Blauverschiebung vorhersagen, ist hier wohl eher der Wachstumsprozess für die Verschiebung und zusätzlich auch für den Intensitätseinbruch verantwortlich. Es ist denkbar, dass die von der AlN-Schicht verursachte Verspannung das Spinodale Phasendiagramm verändert, wodurch die Bildung von Quantenpunkten nicht mehr unter idealen Bedingungen stattfindet. Auch ist vorstellbar, dass die AlN-Schicht unter einer schlechten Qualität leidet, wodurch auch das Wachstum der Quantenpunkte beeinträchtigt wird. Hier gilt wie bei der Diskussion der InN-Monolage, dass noch weitere Untersuchungen wie z.B. TEM an diesen Proben oder AFM an unbedeckten AlN-Monolagen durchgeführt werden müssen um mehr Informationen über die Qualität der AlN-Schicht zu erhalten.

Eine weitere Möglichkeit zur Erzeugung von energetischen Barrieren ist der Einsatz einer $\text{Al}_{0,18}\text{In}_{0,82}\text{N}$ -Schicht, welche bezogen auf das GaN gitterangepasst ist und das Auftreten von Verspannungen vermeidet [BCF⁺07]. Zusätzlich könnte diese Schicht z.B. mit einer monolage GaN bedeckt werden, da nicht klar ist, inwiefern der InGaN-Phasenseparationsprozess auf einer AlInN-Oberfläche abläuft.

Die größtmögliche Reduzierung des QCSE könnte mit einer Kombination aus breitlückigen Barrieren und einer InN-Monolage einhergehen. Eine komplette Unterdrückung der resultierenden piezoelektrischen Felder lässt sich jedoch nur im unpolaren Material, wie z.B. dem a -Ebenen GaN erreichen.

5.4.5 InGaN auf unpolarem GaN

Wie in den vorangegangenen Abschnitten gezeigt, lässt sich prinzipiell der Überlapp der Elektronen- und Lochwellenfunktion durch Einfügen von breitlückigen AlN-Barrieren und einer InN-Monolage erhöhen. Einen nahezu vollständigen Überlapp lässt sich aber nur erreichen, indem die resultierenden piezoelektrischen Felder eliminiert werden. In Abb. 5.21 ist die Stärke der piezoelektrischen Polarisation gegen den Winkel dargestellt. $\vartheta = 0^\circ$ entspricht dabei der c -Ebene und $\vartheta = 90^\circ$ einer Ebene senkrecht zur c -Ebene, wie z.B. der m -Ebene oder der a -Ebene (Ebenendefinition siehe Abb. 1.1 (rechts)). Die resultierenden piezoelektrischen Felder verschwinden für Ebenen im Winkel von $\vartheta = 45^\circ$ und $\vartheta = 90^\circ$.

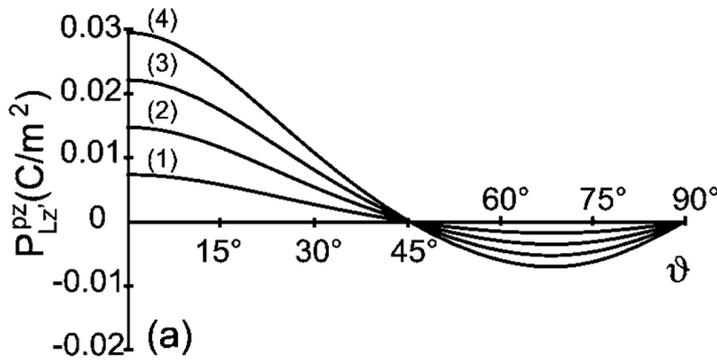


Abbildung 5.21: Die piezoelektrische Polarisation P_{Lz}^{pz} in Abhängigkeit des Winkels bezogen auf die $\{0001\}$ -/ c -Ebene. Die einzelnen Kurven sind berechnet für $\text{In}_{0,05}\text{Ga}_{0,95}\text{N}$ (1), $\text{In}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$ (2), $\text{In}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{N}$ (3), und $\text{In}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$ (4). Aus [RBNS06].

Das Wachstum von a -planarem GaN findet auf r -planarem Saphir statt [CLW⁺02]. In der Arbeitsgruppe von Prof. Hommel hat sich Timo Aschenbrenner mit dem Wachstum von a -Ebenen GaN beschäftigt [Asc10]. Bei diesem Wachstum handelt es sich um einen drei-Stufen Wachstumsprozess, welcher aus Nitridierung der Oberfläche, Wachstum von GaN zuerst unter hohem (1350:1) und dann unter niedrigerem V/III-Verhältnis (150:1) besteht [AGK⁺08b]. Es wurde u.a. das Wachstum von InGaN Quantenfilmen auf a -planarem GaN gezeigt [AFS⁺08]. Für das Wachstum von InGaN Quantenpunkten aufgrund eines spinodalen Phasenseparationsprozesses muss zuerst geklärt werden, ob für diese Kristallrichtung auch eine Mischungslücke existiert. Es wäre der erste Bericht von unpolaren InGaN Quantenpunkten.

In [Kar98] wird die Berechnung für spinodale Kurven auf Ebenen senkrecht zur c -Ebene vorgeführt. Da diese Veröffentlichung nicht in einer Zeitschrift gedruckt wurde und nicht mehr online verfügbar ist, werden die Formeln zur Berechnung hier nochmal im Detail hingeschrieben. Die Formeln für die chemischen Potentiale μ_{GaN} und μ_{InN} für c -Ebenen GaN und InN sind in Abschnitt 1.4.2 wiedergegeben und müssen für senkrechte Ebenen modifiziert werden. Sie lauten:

$$\begin{aligned} \mu_{\text{GaN}} = & \mu_{\text{GaN}}^0 + \frac{\sqrt{3}}{4} N_A c_s \{ B_{xx} \Delta_{\text{GaN}}^2 + B_{xz} \zeta \Delta_{\text{GaN}} \tilde{\Delta}_{\text{GaN}} + B_{zz} \zeta^2 \tilde{\Delta}_{\text{InN}}^2 \\ & - [\Delta B_{xx} (\Delta a)^2 + \Delta B_{xz} \zeta \Delta a \Delta c + \Delta B_{zz} \zeta^2 (\Delta c)^2] x \} \\ & + RT \cdot \ln(1-x) + [W - \frac{\sqrt{3}}{4} N_A c_s (B_{xx} \Delta^2 + B_{xz} \zeta \Delta \tilde{\Delta} + B_{zz} \zeta^2 \tilde{\Delta}^2)] x^2 \end{aligned} \quad (5.1)$$

und

$$\begin{aligned} \mu_{\text{InN}} = & \mu_{\text{InN}}^0 + \frac{\sqrt{3}}{4} N_A c_s \{ B_{xx} \Delta_{\text{InN}}^2 + B_{xz} \zeta \Delta_{\text{InN}} \tilde{\Delta}_{\text{InN}} + B_{zz} \zeta^2 \tilde{\Delta}_{\text{InN}}^2 \\ & + [\Delta B_{xx} (\Delta a)^2 + \Delta B_{xz} \zeta \Delta a \Delta c + \Delta B_{zz} \zeta^2 (\Delta c)^2] (1-x) \} \\ & + RT \cdot \ln(x) + [W - \frac{\sqrt{3}}{4} N_A c_s (B_{xx} \Delta^2 + B_{xz} \zeta \Delta \tilde{\Delta} + B_{zz} \zeta^2 \tilde{\Delta}^2)] (1-x)^2. \end{aligned} \quad (5.2)$$

Hierbei gilt:

$$\tilde{\Delta}_{\text{InN/GaN}} = c_{\text{InN/GaN}} - c_s \quad , \quad \tilde{\Delta} = c_{\text{InN}} - c_{\text{GaN}} \quad , \quad \zeta = a_s/c_s, \quad (5.3)$$

$$\Delta c = c - c_s \quad \text{mit} \quad c = c_{\text{InN}} x + c_{\text{GaN}} (1-x), \quad (5.4)$$

und

$$\Delta B_{xx/xz/zz} = B_{xx/xz/zz, \text{InN}} - B_{xx/xz/zz, \text{GaN}}, \quad (5.5)$$

$$B_{xx/xz/zz} = x B_{xx/xz/zz, \text{InN}} - (1-x) B_{xx/xz/zz, \text{GaN}} \quad (5.6)$$

mit den effektiven elastischen Konstanten

$$B_{xx, \text{InN/GaN}} = \frac{1}{2} (C_{11, \text{InN/GaN}} - \frac{C_{12, \text{InN/GaN}}^2}{C_{11, \text{InN/GaN}}}) \quad (5.7)$$

$$B_{xz, \text{InN/GaN}} = C_{13, \text{InN/GaN}} - \frac{C_{12, \text{InN/GaN}} C_{13, \text{InN/GaN}}}{C_{11, \text{InN/GaN}}} \quad (5.8)$$

$$B_{zz, \text{InN/GaN}} = \frac{1}{2} (C_{33, \text{InN/GaN}} - \frac{C_{13, \text{InN/GaN}}^2}{C_{11, \text{InN/GaN}}}). \quad (5.9)$$

Es gelten weiterhin die Formeln (1.19) und (1.20). μ_{GaN}^0 und μ_{InN}^0 sind die chemischen Potentiale der binären Materialien GaN und InN, N_A ist die Avodadro-Konstante, R die allgemeine Gaskonstante, T die Temperatur, W der Interaktionsparameter und C_{ij} ($i, j=1..6$) sind die jeweiligen elastischen Konstanten. x beschreibt die Konzentration in $\text{In}_x \text{Ga}_{1-x} \text{N}$.

Für die Spinodale gilt die Beziehung:

$$\frac{\partial \mu_{\text{InN}}}{\partial x} = \frac{\partial \mu_{\text{GaN}}}{\partial x} = 0 \quad (5.10)$$

Die spinodale Kurve für Ebenen senkrecht zur c -Ebene, wie z.B. die a - oder m -Ebene, ist in Abb. 5.22 dargestellt und verglichen mit der Spinodalen für voll relaxiertes und verspanntes c -Ebenen InGaN. Gegenüber der Spinodalen für relaxiertes InGaN ist der instabile Bereich unterhalb der Spinodalen aufgrund der Verspannung in der InGaN-Schicht reduziert. Der Vergleich mit der Spinodalen für verspanntes InGaN auf einer c -Ebene zeigt jedoch, dass der instabile Bereich größer ist. Die kritische Temperatur liegt bei $x = 0,76$ und beträgt 1021°C . Somit sollte der InGaN Phasenseparationsprozess zur Quantenpunktbildung prinzipiell auch auf a -planarem GaN stattfinden. Aufgrund der breiteren Mischungslücke sollte dieser Prozess wesentlich stabiler gegenüber nicht beabsichtigten Gasflußveränderungen sein, wie sie für die TMI-Linie ohne *Epi*-*son*-Regelung vorkommen können (siehe Abschn. 2.2).

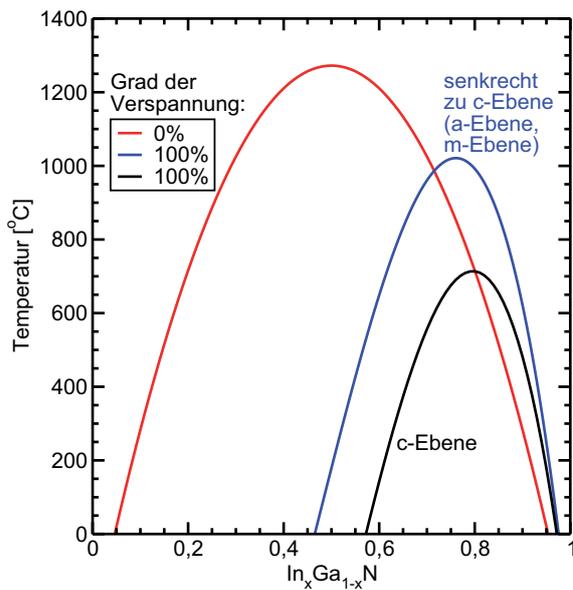


Abbildung 5.22: Spinodale von InGaN auf Ebenen senkrecht zur c -Richtung (blau) verglichen mit der Spinodalen für voll relaxiertes InGaN (rot) und voll verspanntes InGaN auf c -Ebenen GaN (schwarz).

Wachstum auf unpolaren a -Ebenen GaN

Es wurden zwei Proben in der MOVPE hergestellt, jeweils mit einer InGaN-Schicht auf a -planarem GaN. Das Wachstum von a -planarem GaN auf einem r -Ebenen Saphir-Substrat ist von Timo Aschenbrenner optimiert worden [Asc10] und beinhaltet folgende Schritte: 10 min Nitridierung bei 1050 °C unter einem NH_3 -Fluss von 5000 sccm; Abscheidung von a -GaN für 5 min bei 1070 °C und einem NH_3 -/TMG-Fluss von 6500 sccm/100 sccm; Wachstum einer n -dotierten a -GaN-Schicht bei einem NH_3 -Fluss von 750 sccm und einem Silanfluss von 2,5 sccm. Die Dicke der undotierten Schicht beträgt etwa 300 nm, die der dotierten Schicht 600 nm. Auf diese Schichten wurde bei 600 °C eine $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht gewachsen. Die Wachstumszeit betrug 10 s, was einer Schichtdicke von $\sim 1,5$ nm entspricht. Die erste Probe wurde im Anschluss an das Wachstum während einer vierminütigen Temperaturrampe auf 700 °C aufgeheizt und anschließend abgekühlt. Bei der zweiten Probe ist die InGaN-Schicht mit Standardparametern bei 700 °C unter N_2 -Atmosphäre mit einer nominellen 6 nm-GaN-Schicht und anschließend bei 820-1050 °C unter H_2 -Atmosphäre mit nominell 15 nm GaN überwachsen.

Zwei Rasterelektronenmikroskop-Bilder der nicht überwachsenen Probe sind in Abb. 5.23 gezeigt. Die linke Abbildung zeigt, dass die Oberfläche an einigen Stellen nicht komplett koalesziert ist. Es gibt längliche Gräben, welche senkrecht zur c -Richtung ausgerichtet sind. Die übrige Oberfläche scheint in der Vergrößerung sehr homogen zu sein. Einige Inseln sind auf der Oberfläche verteilt, erkennbar als weiße Punkte. Diese Inseln haben eine Dichte von $2 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$, einen Durchmesser von etwa 50 nm (bestimmt aus den REM-Bildern) und eine Höhe von 20-30 nm (bestimmt aus AFM-Messungen, hier nicht gezeigt). Die Ausmaße sind in guter Übereinstimmung mit den InN-reichen InGaN-Inseln, welche sich auf c -planarem GaN gebildet haben. Jedoch ist die Dichte um eine Größenordnung niedriger. Ein Blick in die Gräben zeigt, dass sich die Inseln vermehrt an den Seitenwänden gebildet haben. Aufgrund der hohen Mobilität des InN bzw. des In könnte es von der Oberfläche in die offenen Stellen wandern, um sich dort vermehrt anzulagern. Dies würde die niedrige Inseldichte erklären.

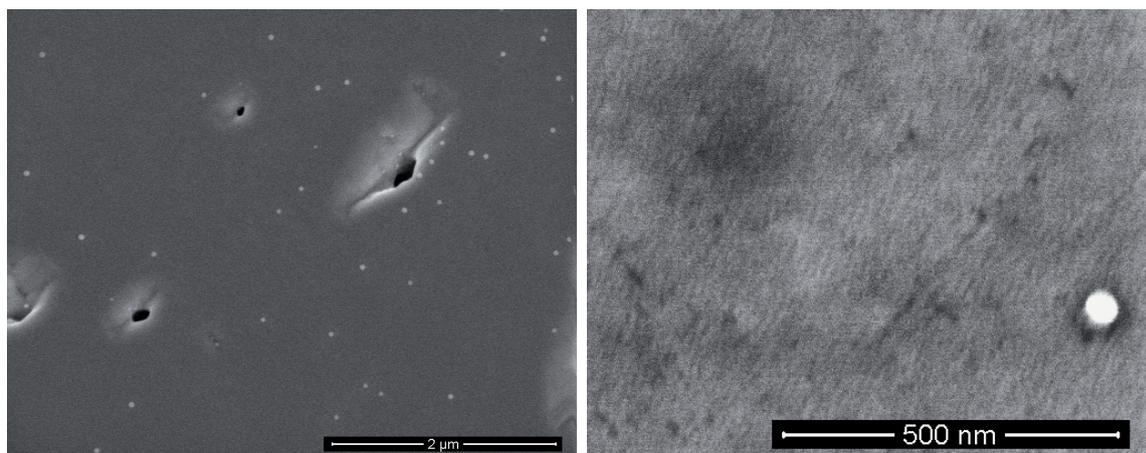


Abbildung 5.23: REM der α -Ebenen GaN-Probe, auf der $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ abgeschieden und anschließend nicht überwachsen wurde. Die Aufnahmen wurden von Torben Rohbeck erstellt.

Die detaillierte Aufnahme in Abb. 5.23 (rechts) zeigt, dass neben Defekten (dunkle Punkte) auf der Oberfläche eine feine Struktur zu erkennen ist, welche an eine langgezogene meanderartige Struktur erinnert. Dies könnte an der Anisotropie des α -planarem GaN liegen. Die REM-Aufnahme zeigt ein ähnliches Bild, wie die REM-Abbildungen des phasenseparierten InGaN der Proben aus Abb. 3.1. Die REM-Untersuchungen geben erste Hinweise, dass Phasenseparation und InGaN Quantenpunktbildung auch auf α -planarem GaN möglich ist.

Röntgenmessungen an α -planarem GaN geben nur bedingt Informationen über die Probe. In Abb. 5.24 sind die 2θ - ω -Scans der beiden Proben um den symmetrischen reziproken (11-20)-Reflex dargestellt. Der α -Ebenen GaN-Reflex beider Proben liegt bei $57,7^\circ$ und zeigt, dass die GaN-Schichten leicht verspannt auf dem Saphir-Substrat aufwachsen, da der relaxierte GaN-(11-20)-Reflex theoretisch bei $57,8^\circ$ liegt. Der GaN-Reflex der überwachsenen Probe ist leicht verbreitert, was der Vergleich beider Graphen bei 56° - 57° und bei $58,2^\circ$ - $58,6^\circ$ zeigt. Es ist nicht eindeutig, ob diese sehr schwache Schichtdickenoszillationen von einer InGaN Quantenpunktschicht herrührt, oder ob es lediglich eine Verbreiterung aufgrund einer qualitativ schlechteren GaN-Schicht, eventuell von der GaN-Deckschicht, ist.

Die Bildung eines InGaN-Quantenfilmes kann bei der überwachsenen Probe im Wesentlichen ausgeschlossen werden, da die Voraussetzung für die Bildung eines InGaN-Quantenfilmes wie bei den c -Ebenen Proben nicht mehr ausreichend gegeben ist. Es ist nur eine sehr geringe Dichte der offenbar InN-reichen InGaN-Inseln auf der Oberfläche vorhanden. Zusätzlich könnte das Indium nach der Auflösung der Inseln bei höheren Temperaturen in die Gräben wandern. Zur Bildung eines InGaN-Filmes wäre somit kein Indium mehr vorhanden. XRD- und Tieftemperatur PL-Messungen stützen die Aussage, dass in der überwachsenen Struktur kein zusätzlicher Quantenfilm vorhanden ist. Ein mehrere Nanometer dicker Quantenfilm sollte Schichtdickenoszillationen im Röntgenspektrum zeigen, die hier aber nur Ansatzweise zu erahnen sind und eher von der Quantenpunktschicht herrühren könnten. Im Tieftemperatur PL-Spektrum ist im

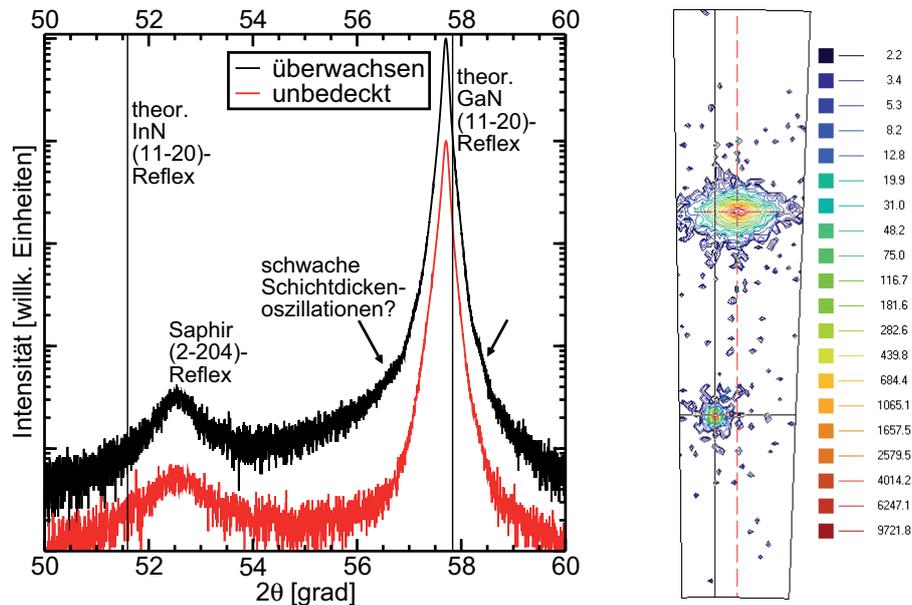


Abbildung 5.24: XRD 2θ - ω -Messungen der unbedeckten und überwachsenen a -Ebenen InGaN/GaN Proben (links). Rechts ist die reziproke Gitterkarte um den (11-20)-Reflex dargestellt. Das a -Ebenen GaN wächst leicht verkippt auf dem r -Ebenen Saphirsubstrat auf. Die reziproke Gitterkarte wurde von Dr. Stephan Figge aufgenommen.

entsprechenden spektralen Bereich von 2,8-3,2 eV keine Quantenfilmlumineszenz sichtbar (das Spektrum wird hier nicht gezeigt).

Aufgrund des Saphir-(2-204)-Reflexes bei $52,542^\circ$ ist es nicht möglich, ein Signal von den offenbar InN-reichen InGaN Inseln zu detektieren. Die reziproke Gitterkarte in Abb. 5.24 (rechts) zeigt, dass das a -GaN leicht verkippt auf dem Saphirsubstrat aufwächst, weshalb in den 2θ - ω -Scans nur ein schwacher Ausläufer des Saphir-Peaks zu sehen ist, der aber dennoch ausreicht, um ein üblicherweise schwaches InN-Signal zu überstrahlen.

Das μ -PL-Spektrum der überwachsenen Probe und die Raumtemperatur-PL-Spektren beider Proben sind jeweils in Abb. 5.25 dargestellt. Die μ -PL-Messung zeigt Lumineszenz von InGaN bei 510 nm neben der breiten gelben Störstellenlumineszenz um 560 nm. Da es sich um eine unstrukturierte Probe handelt und deshalb eine Vielzahl von Quantenpunkten angeregt wird, sind keine spektral scharfen Emissionslinien detektierbar. Zur Reduzierung der Menge der optisch angeregten Quantenpunkte wäre die Präparation von Mesostrukturen bzw. geeigneten Maskenmaterialien notwendig. Der Nachweis von scharfen Einzellinien steht deshalb noch aus.

Obwohl die μ -PL der Quantenpunkte bezogen auf die gelbe Störstellenlumineszenz nur recht schwach ausgeprägt ist, zeigen die RT-PL-Spektren optische Aktivität der InGaN Strukturen, sowohl von der offenen Struktur bei 510 nm, als auch von der überwachsenen Struktur um 525 nm. Dies ist insgesamt etwas langwelliger als bei den um 490 nm strahlenden c -planaren Vergleichsproben (siehe Abb. 3.9). Die optische Aktivität bei RT weist auf den Quantenpunktcharakter der Strukturen hin.

Insgesamt ist die Lumineszenzaktivität beider Proben gering im Vergleich mit auf c -Ebenen basierten Proben wahrscheinlich aufgrund des defektreichen a -planarem GaN.

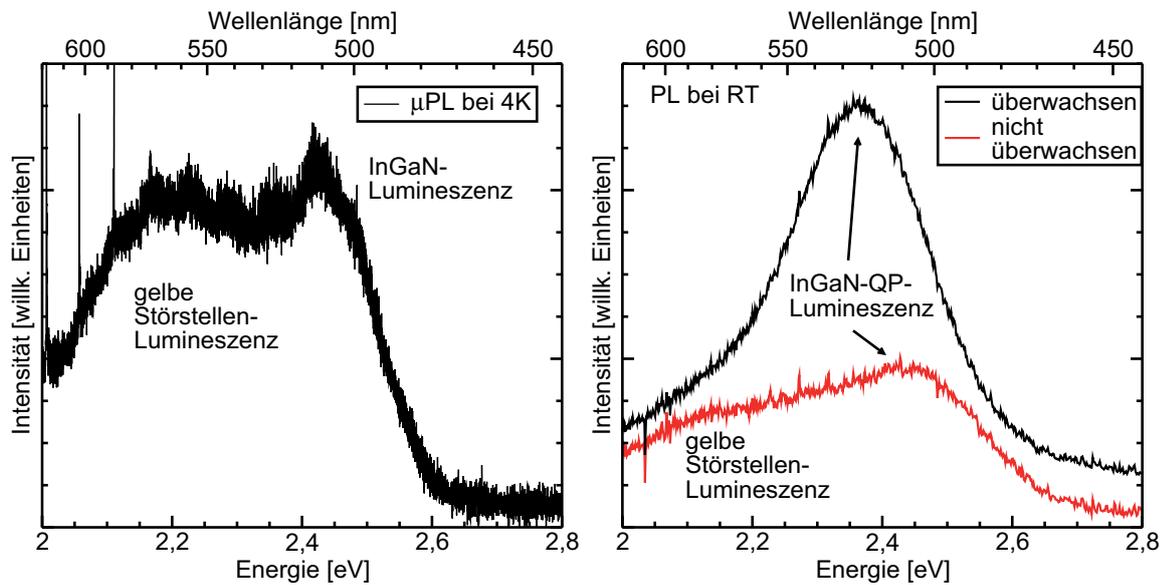


Abbildung 5.25: μ -PL- (links) bei 4 K und RT-PL-Untersuchungen (rechts) von a -Ebenen InGaN/GaN. Im linken Graphen ist InGaN-Lumineszenz bei 510 nm neben der breiten gelben Störstellenlumineszenz zu erkennen. Im rechten Graphen strahlt die überwachsene Probe bei 525 nm, die unbedeckte Probe zeigt Lumineszenz bei etwa 505 nm. Neben der im Spektrum dominierenden InGaN-Lumineszenz ist auch die gelbe Störstellenlumineszenz zu sehen. Die beiden Peaks im niederenergetischen Bereich des μ -PL-Spektrums um 2,05 eV und 2,1 eV sind Messartefakte. Das μ -PL-Spektrum wurde von Moritz Seyfried gemessen.

Nicht klar ist, inwieweit sich InGaN in den Gräben angelagert hat und ob es dort zur Lumineszenz beiträgt. Auch hier gilt, dass stichhaltige Aussagen erst durch zusätzliche Experimente wie TEM gemacht werden können. Außerdem bedarf es weiterer Probenreihen, um einen optimalen Parametersatz für InGaN Quantenpunkte zu erhalten. Zuerst muss hierbei natürlich die a -planare GaN-Schicht qualitativ verbessert werden. Aufgrund der schlechten Kristallqualität des a -planarem GaN kommt der Vorteil des eliminierten QCSE nicht zum Tragen. Als Alternative bietet sich das Wachstum auf a -planarem oder m -planarem GaN-Substraten an. Mit dem ammonothermalen Wachstum [DDG⁺08] werden GaN-Einkristalle von hoher Qualität hergestellt, die in die entsprechenden Richtungen geschnitten und dann geschliffen werden können [KRZ⁺09]. Die Substrate sind derzeit jedoch noch sehr teuer.

Zusammenfassung des Kapitels

Das Kapitel hat sich im Wesentlichen mit der Anwendung von InGaN Quantenpunkten in Licht emittierenden Bauelementen beschäftigt. Es wurde gezeigt, dass die Emissionswellenlänge in einem Bereich von 100 nm vom tiefblau bis grün alleine über die Schichtdicke eingestellt werden kann. Die Stapelanzahl der Quantenpunktschichten ist in Bauelementen auf etwa drei beschränkt, was vermutlich mit dem zusätzlichen parasitär wirkenden Quantenfilm zusammenhängt. Eine mehrfarbige LED wurde präsen-

tiert, dessen Emission im blauen und grünen Spektralbereich liegt. InGaN Quantenpunkte lassen sich auf hochwertigen Substraten abscheiden und in Laserstrukturen einbetten. Das 45 minütige Wachstum der nachfolgenden GaN-Schichten bei hohen Temperaturen von 1050 °C hat keinen schädlichen Einfluss auf die Quantenpunkte. Sie bleiben erhalten und sind damit sehr temperaturstabil. Der Nachweis des elektrischen Betriebs von einzelnen InGaN Quantenpunkten ist gelungen. InGaN Quantenpunkte wurden erfolgreich in Kavitäten integriert und eine makroskopische Kavitätsstruktur wurde prozessiert und elektrisch betrieben. Zur Bauelementeoptimierung wurden diverse Ansätze vorgestellt, wie z.B. der Einsatz einer n-AlGaIn-Loch-Sperrschicht zur Erhöhung der Intensität. InGaN Quantenpunkte auf InN-Monolagen und umgeben von AlN-Monolagen können den QCSE reduzieren. Erste Ergebnisse von InGaN Quantenpunkten auf unpolaren *a*-Flächen GaN wurden präsentiert. Ähnliche Strukturen wie bei dem Wachstum auf *c*-Flächen zeigen sich auf der Oberfläche: meanderartige Strukturen sowie größere Inseln geben Hinweis auf einen spinodalen Entmischungsprozess.

6 Lichtabsorbierende InGaN Strukturen - Photovoltaik

In dem letzten Kapitel dieser Arbeit geht es nicht um die Fähigkeit der Strukturen, Licht zu emittieren, sondern Licht zu absorbieren, wobei Ladungsträger angeregt werden. Diese Eigenschaft kann genutzt werden, um photovoltaische Bauelemente herzustellen, die in der Solarzellentechnologie genutzt werden können.

Das Prinzip einer Solarzelle ist in Abb. 6.1 gezeigt. Eingestrahlicht mit ausreichender Energie regt Elektronen aus dem Valenzband (VB) ins Leitungsband (LB) bzw. Löcher aus dem LB ins VB an, die im elektrischen Feld des p-n-Übergangs getrennt werden. An den n- und p-Kontaktstellen kann eine Spannung abgegriffen werden, die der Potentialdifferenz der Quasi-Ferminiveaus an den Kontaktstellen entspricht (siehe Abb. 6.1 rechts).

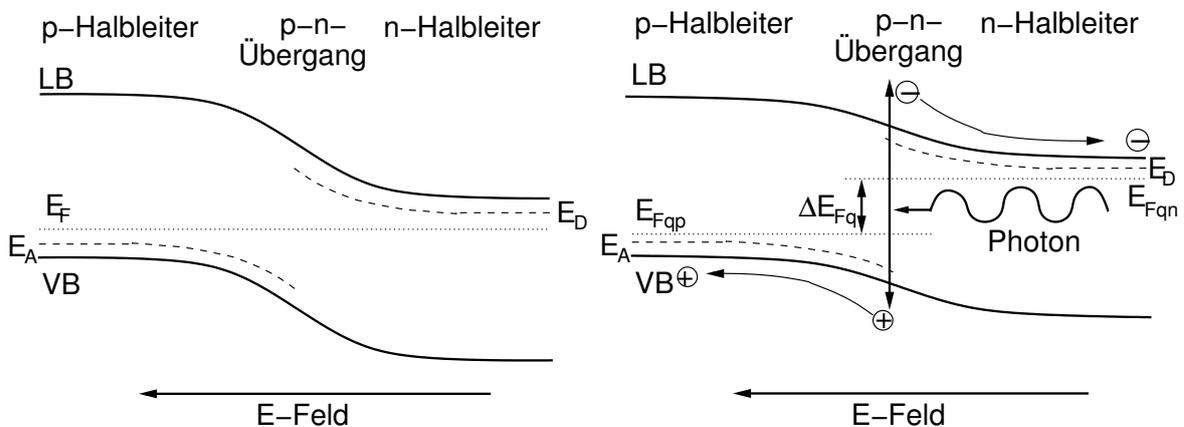


Abbildung 6.1: Links dargestellt ist der Bandverlauf eines p-n-Übergangs. Im p-/n-Halbleiter erzeugen die Dotieratome Akzeptor-/Donatorkniveaus (E_A/E_D) in der Bandlücke nahe der Valenzband-(VB)/Leitungsband-(LB)kante. Das Zusammenfügen eines p- und n-Halbleiters führt zur Anpassung der Fermienergie E_F , wodurch ein Diffusionsstrom der Ladungsträger erzeugt wird. Übrig bleiben negative Raumladungszonen im p-Halbleiter und positive im n-Halbleiter, jeweils im Kontaktgebiet. Die Raumladungszonen erzeugen ein elektrisches Feld, welches vom n-Halbleiter in Richtung p-Halbleiter zeigt. Rechts: Wird Licht ausreichender Energie eingestrahlt, kann dieses unter Anregung eines Elektrons aus dem VB ins LB absorbiert werden. Das elektrische Feld trennt die Ladungsträger und führt sie zu den Randbereichen. Die Ladungstrennung erzeugt eine Bandverbiegung, es entstehen Quasi-Ferminiveaus $E_{Fq,p}$ im p-Halbleiter und $E_{Fq,n}$ im n-Halbleiter. An den Randbereichen kann eine Spannung abgegriffen werden, die der Differenz der Quasi-Ferminiveaus entspricht.

Es wird nur die Strahlung optimal genutzt, dessen Energie mit der Bandlücke übereinstimmt. Niedrigere Strahlungsenergien werden nicht verwertet, da die Energie nicht ausreicht, Ladungsträger über die Bandlücke zu heben. Höhere Strahlungsenergien werden nur anteilig genutzt, da die Ladungsträger weit über die Bandkante hinaus in das Band angeregt werden. Die zusätzliche Energie geht durch ultraschnelle Relaxationsprozesse (Phononenerzeugung) der Elektronen zur LB-Unterkante bzw. der Löcher zur VB-Oberkante verloren.

Der nutzbare Spektralanteil für eine Silizium-Solarzelle ist in Abb. 6.2 a) dargestellt und sollte nicht mit der maximalen thermodynamischen Effizienz für die Umwandlung von unkonzentrierter Sonnenstrahlung in elektrischer Energie für einen einzelnen Absorber verwechselt werden, welche nach Shockley und Queisser 31 % beträgt [SQ61]. Die Strahlungsleistungsdichte $u(\lambda, T)$ des schwarzen Körpers ist mit der Planckschen Strahlungsformel berechnet, wobei eine Sonnenoberflächentemperatur von 5800 K angenommen wurde. Die Strahlungsformel lautet:

$$u(\lambda, T) = \frac{8\pi hc}{\lambda^5} \frac{1}{e^{hc/\lambda kT} - 1} \quad (6.1)$$

wobei λ die Wellenlänge, T die Temperatur, h das Plancksche Wirkungsquantum, c die Lichtgeschwindigkeit und k die Boltzmann-Konstante ist. Absorption von der Sonne und vor allem von der Erdatmosphäre wurde nicht berücksichtigt, weshalb die Berechnungen eher Weltraumbedingungen entsprechen.

Silizium hat eine Bandlücke von 1,107 eV, was einer Wellenlänge von 1120 nm entspricht. Ein eingestrahlt Photon kann nur genutzt werden, wenn die Photonenenergie höher als die Bandlückenenergie ist. Im Fall von Silizium kann demnach nur der Spektralteil von 0-1120 nm absorbiert werden. Optimal wird die Photonenenergie in elektrische Energie umgewandelt, wenn die Photonenenergie gleich der Bandlückenenergie ist, für höhere Photonenenergien reduziert sich die genutzte Energie um den Faktor $\lambda_{\text{BL,Si}}/\lambda$. Das nutzbare Spektrum einer Siliziumzelle ist demnach:

$$S_{\text{nutz}} = \int_0^{1120 \text{ nm}} \frac{u(\lambda, T)}{\lambda_{\text{BL,Si}}/\lambda} d\lambda \quad (6.2)$$

Die gesamte eingestrahlte Photonenenergie ist das Integral der Schwarzkörperstrahlung über alle Wellenlängen:

$$S_{\text{gesamt}} = \int_0^{\infty} u(\lambda, T) d\lambda \quad (6.3)$$

Der prinzipiell nutzbare Anteil des Spektrums A_{nutz} ist der Quotient aus S_{nutz} und S_{gesamt} :

$$A_{\text{nutz, Si}} = \frac{\int_0^{1120 \text{ nm}} \frac{u(\lambda, T)}{\lambda_{\text{BL,Si}}/\lambda} d\lambda}{\int_0^{\infty} u(\lambda, T) d\lambda} \quad (6.4)$$

wobei $\lambda_{\text{BL,Si}}$ die entsprechende Wellenlänge der Silizium-Bandlücke ist. Für Silizium-Solarzellen beträgt der maximal nutzbare Anteil am emittierten Sonnenspektrum in

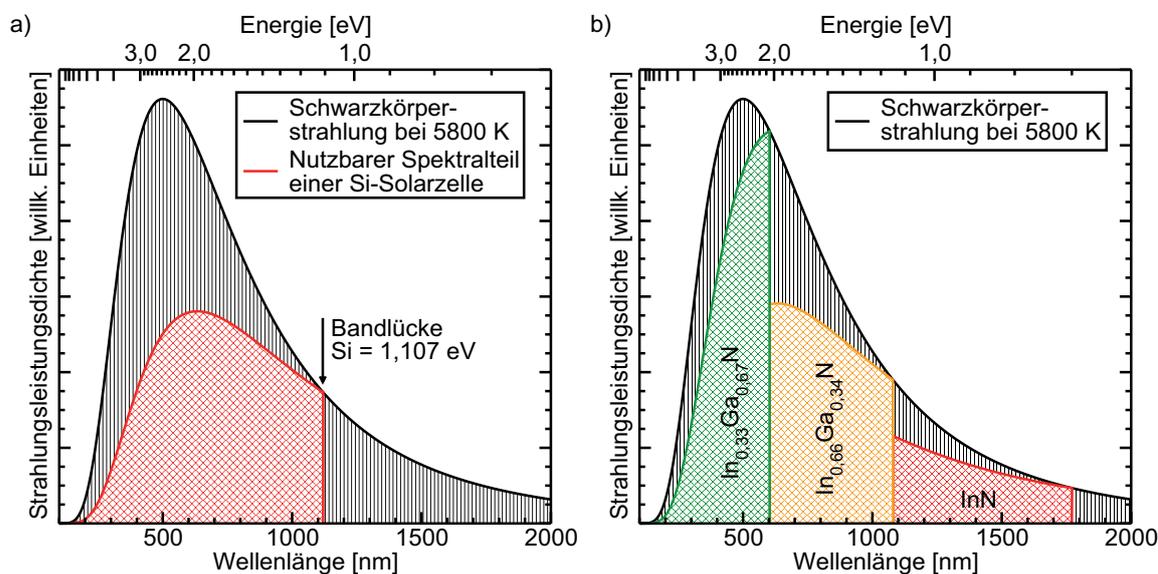
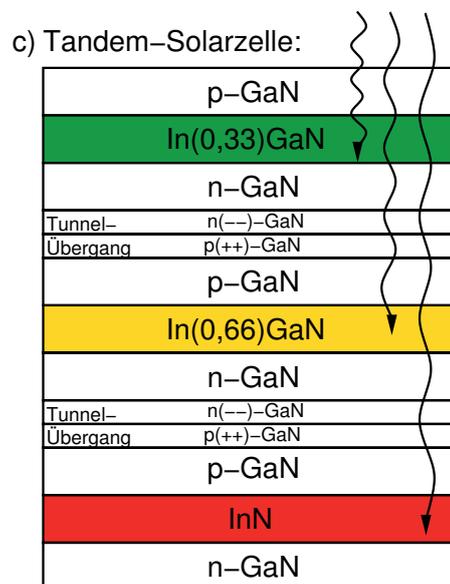
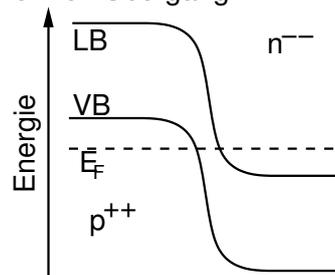


Abbildung 6.2: Schematische Darstellung des nutzbaren Spektralanteils einer Silizium-Solarzelle in a) und einer InGaN-basierten Tandem-Solarzelle in b). Die Schwarzkörperstrahlung wurde mit Hilfe der Planckschen Strahlungsformel für einen 5800 K heißen Körper berechnet. Es wurde jegliche Absorption der Sonne und der Erdatmosphäre nicht berücksichtigt. Eine Si-Solarzelle kann demnach maximal 43% der Strahlungsenergie nutzen. Die InGaN-Tandem-Solarzelle dagegen nutzt 68%. c) schematischer Aufbau einer InGaN-Tandem-Solarzelle, angelehnt an eine GaAs/InGaP-Tandem-Solarzelle [OKKF89]. In jedem p-n-Übergang befindet sich eine InGaN bzw. InN-Schicht. Die oberste $\text{In}_{0,33}\text{Ga}_{0,67}\text{N}$ -Schicht ist aufgrund der großen Bandlücke für Photonen größerer Wellenlängen transparent. Diese können von den unteren Schichten absorbiert werden. Die p-n-Übergänge sind mit Tunnel-Übergängen untereinander verbunden. Das Prinzip eines Tunnel-Übergangs ist in d) dargestellt. Die Schichten sind derart hochdotiert, dass das Fermineveau im p^{++} -Gebiet im Valenzband und im n^{--} -Gebiet im Leitungsband liegt. Die Elektronen können ohne energetischen Verlust aus dem p^{++} -Gebiet ins n^{--} -Gebiet tunneln.



d) Tunnel-Übergang:



diesem Beispiel 43 %. Dieser Wert entspricht nicht dem Wirkungsgrad einer Solarzelle, da noch andere Faktoren berücksichtigt werden müssen, wie z.B. Verluste durch strahlende Rekombination oder Rekombination an Defekten und Verluste an den Metall-Halbleiter-Übergängen.

Eine Erhöhung des nutzbaren Spektralanteils kann erzielt werden, indem Schichten unterschiedlicher Bandlückenenergien übereinandergestapelt werden. Man spricht hierbei von einer Tandem-Solarzelle [OKKF89]. Der nutzbare Spektralanteil einer Dreifach-Tandem-Solarzelle aus hier beispielhaft gewählten $\text{In}_{0,33}\text{Ga}_{0,67}\text{N}$, $\text{In}_{0,66}\text{Ga}_{0,34}\text{N}$ und InN berechnet sich zu:

$$A_{\text{nutz, InGaN}} = \frac{\int_0^{603 \text{ nm}} \frac{u(\lambda, T)}{\lambda_{\text{BL, In}_{0,33}\text{Ga}_{0,67}\text{N}}/\lambda} d\lambda + \int_{603 \text{ nm}}^{1080 \text{ nm}} \frac{u(\lambda, T)}{\lambda_{\text{BL, In}_{0,66}\text{Ga}_{0,34}\text{N}}/\lambda} d\lambda + \int_{1080 \text{ nm}}^{1771 \text{ nm}} \frac{u(\lambda, T)}{\lambda_{\text{BL, InN}}/\lambda} d\lambda}{\int_0^{\infty} u(\lambda, T) d\lambda} \quad (6.5)$$

und beträgt in diesem Fall 68 %. Der nutzbare Spektralanteil ist graphisch neben dem schematischen Aufbau einer InGaN-Tandem-Solarzelle mit Tunnel-Übergängen in Abb. 6.2 b) - d) dargestellt. Prinzipiell ist eine Vielzahl von Schichten auf Basis von AlInGaN möglich, wodurch theoretisch als Grenzwert ein nutzbarer Spektralanteil von 92 % erzielt werden kann. Das bedeutet, dass sich das AlInGaN und besonders das InGaN aufgrund der Bandlückenenergie von 0,7 eV bis 3,4 eV sehr gut für photovoltaische Anwendungen eignet.

Da die einzelnen Schichten einer Tandemsolarzelle wie in Reihe geschaltete Spannungsquellen agieren, addieren sich die einzelnen Teilspannungen. Bezüglich des Gesamtstroms sollte jede Schicht die gleich Stromstärke liefern, da ansonsten der Gesamtstrom die Stromstärke der Schicht mit dem geringsten Elektronenfluss annimmt. Dies ist bei der Wahl des hier gewählten Beispiels der InGaN-Tandem-Solarzelle mit $x = 0,33$, $x = 0,66$ und $x = 1$ der Einfachheit halber nicht berücksichtigt.

Bei erdgebundenen Anwendungen sollte berücksichtigt werden, dass ein Großteil der UV-Strahlung absorbiert wird. Desweiteren gibt es mehrere breite Absorptionsbanden im infraroten Spektralbereich. Aufgrund der großen Bandlücke ist AlInGaN für Anwendungen im Weltraum geeignet, da dort der hochenergetische Teil der Sonnenstrahlung nicht durch die Erdatmosphäre absorbiert wird.

Silizium hat sich als günstiges Solarzellenmaterial bewährt, jedoch ist der Wirkungsgrad von Si-basierten Solarzellen mit derzeit bis zu 20 % recht gering. Bei der Nutzung von InGaN könnten die Herstellungskosten durch Lichtkonzentration [JM75] mit Hilfe von Linsen oder Spiegeln reduziert werden. Die dabei entstehenden höheren Temperaturen im Solarzellenbauelement sollten die Gruppe-III-Nitride aufgrund der hohen Bindungsenergie weniger beeinträchtigen als z.B. InGaAs-, II-VI-basierte oder organische Solarzellen.

Die Schichtdicke einer Silizium-basierten Solarzelle liegt im 100 μm Bereich. Die aktive Region im p-n-Übergang einer Dünnschichtsolarzelle basierend auf dem InGaAs- oder II-VI-Materialsystem ist in der Regel mehrere hundert nm dick. Es gibt Ansätze, multiple Quantenfilme als aktive Zone zu nutzen [DPL⁺09]. Der Einsatz von Quantenpunkten als aktives Material scheint auf dem ersten Blick nicht sinnvoll, da das zur Verfügung stehende Material im Vergleich zum Volumenmaterial gering ist. Jedoch

gilt auch hier wie bei den lichtemittierenden Bauelementen, dass die Ladungsträger in der aktiven Schicht in ihrer lateralen Beweglichkeit eingeschränkt sind und somit das Erreichen von Defekten, die üblicherweise vermehrt in InGaN-Schichten auftreten, erschwert wird.

Ein weiterer Effekt, welcher mit Hilfe von Quantenpunkt-Strukturen nutzbar wäre, ist die Erzeugung von sogenannten “heißen Elektronen”, welche über einen Stoßprozess einen inversen Auger-Prozess initiieren können [Noz02]. Das Prinzip der Stoßionisation ist in dem Diagramm in Abb. 6.3 dargestellt. Bei der Anregung mit Photonenenergien

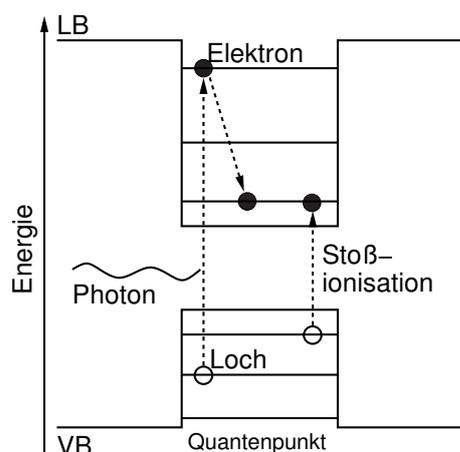


Abbildung 6.3: Prinzip der Stoßionisation, nach [Noz02]. Ein Photon mit größerer Energie als die energetischen Abstände der Elektron-Loch-Zustände des Quantenpunkts regt ein Elektron auf ein höheres Quantenpunktniveau an. Es entsteht ein Elektron-Loch-Paar. Durch Stoßionisation wird ein zweites Elektron-Loch-Paar angeregt, indem das erste Elektron Energie abgibt. Aus einem Photon sind somit zwei Ladungsträger im Leitungsband erzeugt worden.

größer als die energetischen Abstände der Elektron-Loch-Zustände des Quantenpunkts (kurz Quantenpunktenergie) werden Elektronen auf höhere Quantenpunktniveaus angeregt (dies gilt auch entsprechend für Löcher; im Folgenden werden aber nur Elektronen betrachtet). Die überschüssige Energie verursacht eine effektive Temperatur der Elektronen, welche höher als die Gittertemperatur ist, weshalb sie “heiße Elektronen” genannt werden. In der Regel wird die überschüssige Energie der “heißen Elektronen” durch Elektron-Phonon-Streuung schnell in weniger als 100 fs [Noz01] abgebaut, wobei Elektronen bis zur Leitungsbandunterkante relaxieren. Besonders in Quantenpunktstrukturen laufen diese Prozesse jedoch wesentlich langsamer im einstelligen ps-Bereich ab [KMM⁺00, GSSMH99]. Sobald die Rate der Elektron-Phonon-Streuung in der Größenordnung oder geringer als die Elektron-Elektron-Stoßionisationsrate ist, kann die überschüssige Energie genutzt werden, um ein weiteres Elektron durch Stoßionisation aus einem Valenzniveau des Quantenpunktes in das Leitungsbandniveau anzuregen. Somit werden letztendlich aus einem Photon zwei Leitungselektronen erzeugt, d.h. der Strom einer Solarzelle würde sich verdoppeln. Das Prinzip der Stoßionisation ist nur möglich, wenn die Quantenpunktenergie kleiner als die Differenz zwischen Leitungsband und Quantenpunktgrundzustand ist.

Unterschiedliche Mechanismen können genutzt werden, um die angeregten Elektronen aus den Quantenpunktniveaus in das umgebende Leitungsbandniveau anzuregen. Elektronen können durch thermische Energie aus dem Quantenpunkt gestreut werden. Strahlungsenergien unterhalb der Quantenpunktenergie, die sonst nicht nutzbar sind, können von den Elektronen absorbiert werden, welche dadurch den Quantenpunkt verlassen können. Eine weitere Möglichkeit hängt von der Bandverbiegung des p-n-Übergangsgebiets ab. Ist diese sehr stark, so können die Ladungsträger aus dem

Quantenpunktniveau ohne Anregung durch die Energiebarriere direkt ins Leitungsband tunneln.

Der Effekt einer quantenpunkt-basierten Solarzelle ist gleichbedeutend mit dem einer zweifachen Tandem-Solarzelle, wenn die Bandlücke der ersten Absorberschicht der Quantenpunktenergie und die Bandlücke der zweiten Absorberschicht der zweifachen Quantenpunktenergie entspricht. Während eine Tandem-Solarzelle eine höhere Spannung ausgeben würde, wäre bei einer quantenpunkt-basierten Solarzelle der Strom entsprechend höher. Mit Hilfe von Quantenpunktabsorberstrukturen ließe sich die Anzahl der p-n-Übergänge in einer Tandem-Solarzelle reduzieren, was zu Kosteneinsparungen bei der Herstellung derartiger Strukturen führen könnte.

6.1 InGaN Quantenpunkt-basierte Solarzelle

Es hat sich herausgestellt, dass die LED-Proben aus Abschnitt 5.1.1 messbare photovoltaische Eigenschaften unter Halogenlampenbeleuchtung aufweisen. Die aktive Region dieser Proben besteht jeweils aus einer einzelnen InGaN Quantenpunktschicht, abgeschieden bei 600 °C und bedeckt bei 750 °C, d.h. es hat sich ein zusätzlicher Quantenfilm mit einer Dicke von etwa 7 nm direkt über den Quantenpunkten gebildet (siehe Abschn. 4.3). Weitere Informationen zu den Proben finden sich in Abschnitt 5.1.1.

Stromstärke-Spannungs-(I-V-)Messungen wurden an der zur LED prozessierten 22 s-Probe durchgeführt. Als Strahlungsquelle diente dabei eine 20 W-Halogenlampe. Das Licht wurde über eine Plastikfaser auf die Probe gestrahlt. Die Faser hatte eine 5 mm-Öffnung und wurde etwa 1 cm über die Probe aufgestellt. Die Probe befand sich auf weißem Papier. Da die Metallkontaktstellen das direkt auf die Probe gestrahlte Licht absorbieren, diente das weiße Papier zur besseren Streuung des Lichtes von der Unterseite in die aktive Region. Die Anordnung der Bauelemente ist in Abb. 6.4 schematisch dargestellt. Die untersuchten Bauelemente umspannen ein Gebiet von etwa 1,6 mm Breite und 1,6 mm Länge und sind damit kleiner als der Lichtfleck, welcher aus der Faser auf die Probe trifft. Die Bauelemente werden somit homogen ausgeleuchtet.

Die I-V-Messungen sind in Abb. 6.5 (links) dargestellt. Dabei wurde jeweils eine Dunkelmessung und eine Messung unter Beleuchtung für ein, zwei und drei parallel kontaktierte Bauelemente durchgeführt. Die Dunkelmessung zeigt, dass sich die I-V-Charakteristik mit zunehmender aktiver Fläche verbessert. Ursache ist der insgesamt höhere Strom, welcher bei einer festen Spannung parallel durch die Bauelemente fließen kann.

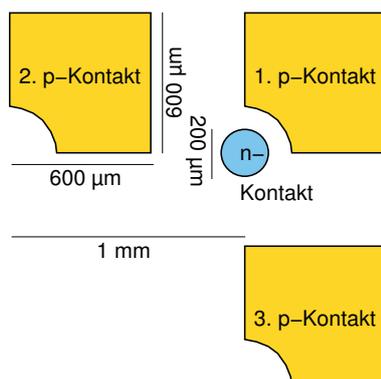


Abbildung 6.4: Anordnung der bestrahlten Bauelemente. Die aktive Region mit den InGaN Quantenpunkten befindet sich nur unterhalb der p-Kontakte. Für die p-Kontaktierung (gold) wurde Ni/Au und für den n-Kontakt (blau) Ti/Al verwendet.

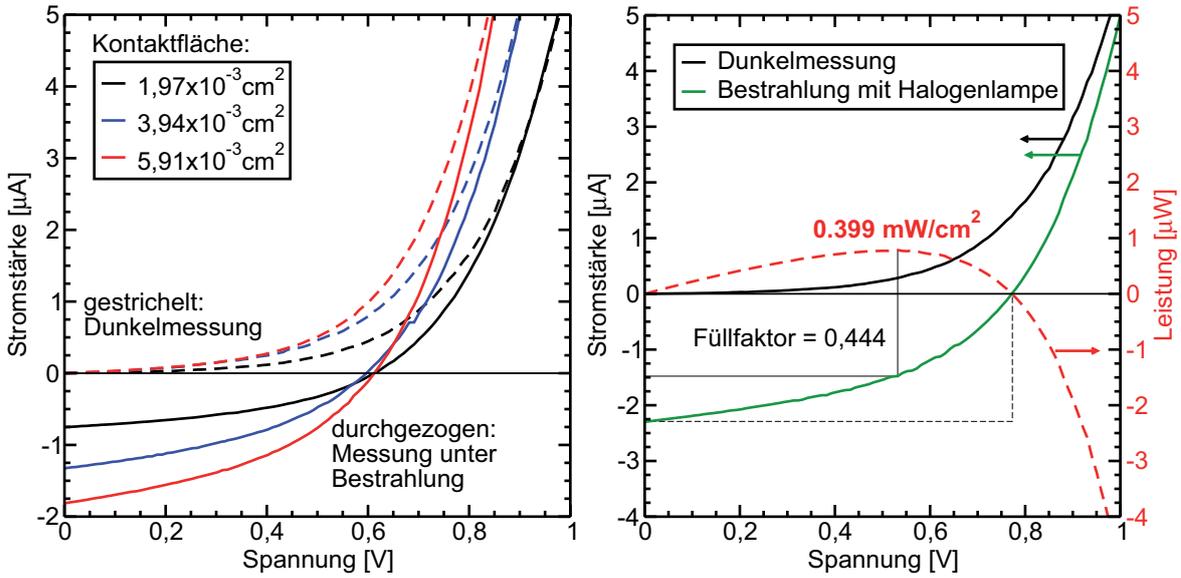


Abbildung 6.5: I-V-Kennlinien der 22 s-Probe. Links: I-V-Kennlinien für eine, zwei und drei parallel kontaktierte Bauelemente unter nicht optimaler Beleuchtung von oben (Abschattung der aktiven Region durch den p-seitigen Metallkontakt). Rechts: I-V-Kennlinie eines Bauelements unter verbesserten Beleuchtungsbedingungen von unten durch das transparente Substrat. Zusätzlich ist die Leistungskurve (rote gestrichelte Linie) dargestellt. Das maximale Leistung von $0,78 \mu\text{W}$ liegt bei 532 mV und entspricht bezogen auf die bestrahlte Kontaktfläche einer Leistungsdichte von $0,399 \text{ mW/cm}^2$.

Unter Beleuchtung der Bauelemente lassen sich Leerlaufspannung (Schnittpunkt mit der Spannungsachse bei 0 A) und Kurzschlussstrom (Schnittpunkt mit der Stromstärkeachse bei 0 V) ablesen. Die Leerlaufspannung variiert bei den drei Messungen mit Beleuchtung in einem Bereich zwischen 597 mV und 612 mV , weist aber keinen klaren Trend auf.

Der Kurzschlussstrom nimmt wie erwartet mit der aktiven Fläche zu, jedoch nicht ganz linear: $0,76 \mu\text{A}$ bei einem, $1,33 \mu\text{A}$ bei zwei und $1,81 \mu\text{A}$ bei drei kontaktierten Bauelementen. Dies liegt an der unterschiedlichen Entfernung der p-Kontaktflächen zum einzigen n-Kontakt, welcher für das erste Bauelement $100 \mu\text{m}$ und für die weiteren $300 \mu\text{m}$ beträgt. Durch den längeren Weg der Elektronen durch das n-Gebiet erhöht sich der Widerstand, wodurch sich der Stromfluss reduziert.

Um eine bessere Beleuchtung der aktiven Fläche zu gewährleisten und somit eine bessere Reproduzierbarkeit und Vergleichbarkeit der Ergebnisse, wurde der experimentelle Aufbau leicht modifiziert. Aufgrund der im wesentlichen transparenten Unterseite der Bauelemente wurde das Ende der Plastikfaser, aus dem das Halogenlampenlicht ausgekoppelt wird, in einem Abstand von 5 mm unterhalb der Probe platziert. Zwischen Probe und Faser befand sich ein 5 mm dicker Metallblock mit einer 5 mm Öffnung, damit das Licht ungehindert zur Probenunterseite strahlen konnte. Die I-V-Messungen eines einzelnen kontaktierten Bauelements sind in Abb. 6.5 (rechts) dargestellt. Durch die verbesserte Einstrahlung hat sich die Leerlaufspannung auf 771 mV und der Kurzschlussstrom auf $2,29 \mu\text{A}$ erhöht. Eine Übersicht einiger ausgewählter LEDs und deren photovoltaische Eigenschaften ist in Tab. 6.1 gegeben.

	Kurzschlussstromdichte	Leerlaufspannung
einfachstapel:		
$t_{\text{InGaN}}=10\text{ s}$	nicht bestimmt	160 mV
$t_{\text{InGaN}}=14\text{ s}$	nicht bestimmt	510 mV
$t_{\text{InGaN}}=18\text{ s}$	nicht bestimmt	320 mV
$t_{\text{InGaN}}=22\text{ s}$	1,16 mA/cm ²	771 mV
siebenfachstapel:		
$t_{\text{InGaN}}=12\text{ s}$	0,29 mA/cm ²	779 mV

Tabelle 6.1: Übersicht einiger ausgewählter LEDs bezüglich der photovoltaischen Eigenschaften.

Für die 22 s-Probe kann ein Leistungsmaximum bei 532 mV und 1,48 μA mit einer Leistungsdichte von 0,399 mW/cm² und einem Füllfaktor von 0,444 bestimmt werden.

Das Leistungsmaximum ist nichtssagend, wenn die Anregungsdichte nicht bekannt ist. Dazu kann hier nur eine Abschätzung gemacht werden. Es wird angenommen, dass die 20 W Betriebsleistung der Halogenlampe komplett in Strahlung umgesetzt wird, welche dem Schwarzkörperspektrum entspricht, und dass die Strahlung komplett in die Plastikfaser ein- und ausgekoppelt wird. Bei einem Durchmesser der Faser von 5 mm beträgt die Anregungsdichte 101,8 W/cm². Der Wirkungsgrad der Probe liegt demnach bei $\sim 1/250000$.

Dies ist verglichen mit dem bisherigen Rekord für einen Wirkungsgrad von $>41\%$ bei GaInP/GaInAs/Ge-basierten Solarzellen [DGS⁺09] sehr gering. Es müssen aber noch einige Aspekte berücksichtigt werden. Bei der Probe handelt es sich um einen Emitter um 540 nm (siehe Abb. 5.4), d.h. Photonenenergien unterhalb von 2,30 eV können von dem Bauelement nicht genutzt werden. Ein Blick auf das Schwarzkörperspektrum einer Halogenlampe (angenommen ist eine Betriebstemperatur von 3000 K), welches in Abb. 6.6 (links) dargestellt ist, zeigt, dass nur ein Bruchteil von $\sim 1/47$ des gesamten Spektrums von dem Bauelement genutzt werden kann. Desweiteren ist die Absorberschicht des Bauelements, welche aus Quantenpunkten und Quantenfilm besteht, höchstens 10 nm dick. Wird berücksichtigt, dass der InN-Gehalt im Quantenfilm unterhalb von 10% liegt, lässt sich annehmen, dass nur die Quantenpunkte mit einer Höhe von $\sim 2\text{-}3\text{ nm}$ zur Absorption und zu den photovoltaischen Eigenschaften des Bauelements beitragen. Eine dickere Absorberschicht würde zu einer weiteren Erhöhung des Wirkungsgrades führen. In Abb. 6.6 (rechts) sind photographische Aufnahmen von einer 80 nm dicken In_{0,82}Ga_{0,18}N-Schicht neben der 22 s-Probe dargestellt. Während die 22 s-Probe teilweise transparent ist, viel Licht streut und einen gräulichen Eindruck macht, wirkt die InGaN-Probe sehr dunkel, da die Absorption aufgrund der dickeren Schicht und des hohen InN-Gehalts höher ist. Transmissionsmessungen mit einer Leuchtröhre als Lichtquelle zeigen, dass die 22 s Probe 64% des Lichtes durchlässt, während die Probe mit der 80 nm In_{0,82}Ga_{0,18}N-Schicht nur für 31% des Lichtes transparent ist, d.h. das restliche Licht wird absorbiert, gestreut oder reflektiert. Dies zeigt, dass das Potenzial von InGaN-Schichten wie bei der 22 s-Probe bei Weitem nicht ausgereizt ist und noch wesentlich höhere Wirkungsgrade als hier gezeigt erzielt werden können.

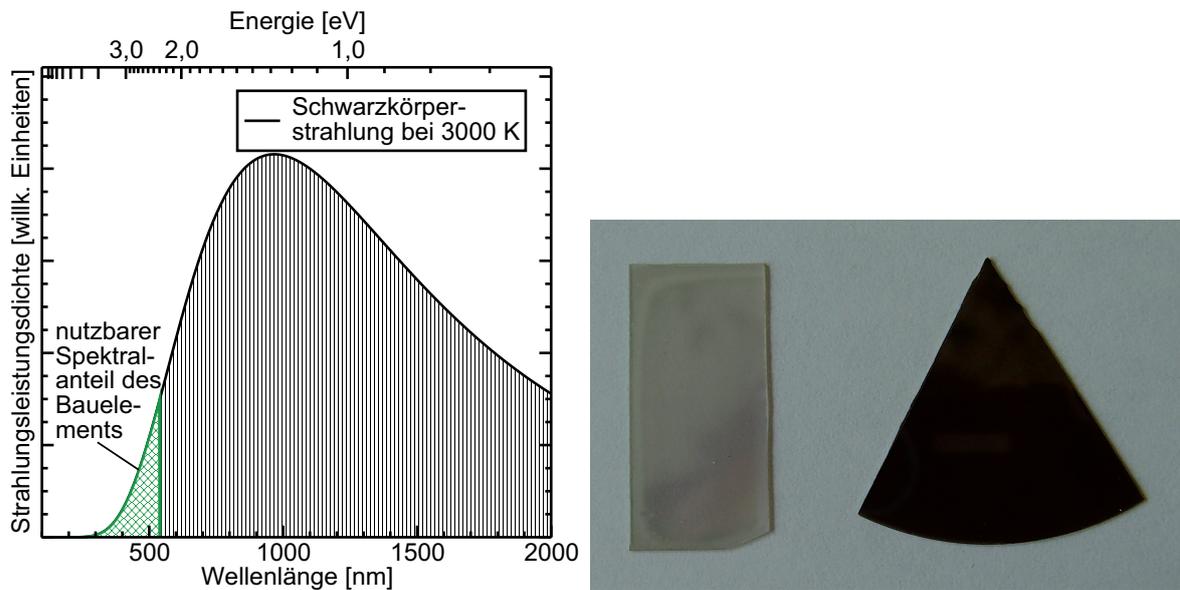


Abbildung 6.6: Links: Schwarzkörperstrahlung einer Halogenlampe mit einer Betriebstemperatur von 3000 K. Zusätzlich ist der nutzbare Spektralanteil des Bauelements eingezeichnet, welcher nur $\sim 1/47$ bezogen auf das komplette Halogenlampenspektrum beträgt. Da das Bauelement aus Quantenpunkten und einem Quantenfilm mit weniger InN-Gehalt besteht, ist nicht berücksichtigt, dass höhere Energien nur anteilig genutzt werden können (siehe Abb. 6.2). Rechts: Vergleich der unprozessierten 22 s-Probe (links) mit einer 80 nm $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht abgeschieden bei 600 °C (rechts). Die Absorption der rechten Probe ist erheblich gesteigert.

Zusammenfassung des Kapitels

Das Konzept einer Tandem-Solarzelle und einer Quantenpunktsolarzelle wurde vorgestellt. Mit Hilfe von InGaN können höhere Wirkungsgrade als bei Silizium erzielt werden. Eine InGaN Quantenpunkt basierte LED wurde auf ihre photovoltaischen Eigenschaften untersucht. Unter Halogenlampenbeleuchtung wurde eine Leerlaufspannung von über 770 mV und ein signifikanter Kurzschlussstrom gemessen. Der Vergleich der untersuchten Probe mit einer dicken InGaN-Schicht zeigt, dass das Potential noch bei Weitem nicht ausgeschöpft ist.

7 Zusammenfassung

Diese Arbeit beschäftigte sich mit dem Wachstum von InGaN Quantenpunkten in der metallorganischen Gasphasenepitaxie und deren Anwendung in Licht emittierenden und absorbierenden Strukturen. Ziel war es, einen stabilen und reproduzierbaren Prozess zur Quantenpunktbildung zu entwickeln und das Verständnis beim Wachstum von InGaN zu erweitern.

Zu Beginn der Arbeit wurden die wesentlichen Grundlagen zur Phasenseparation von InGaN aufgrund von spinodaler und binodaler Entmischung eingeführt. Demnach existiert im Temperaturbereich zwischen 600 °C und 900 °C, welches typische Wachstumstemperaturen für InGaN sind, eine sehr breite Mischungslücke. Diese Mischungslücke lässt sich stark reduzieren, wenn das InGaN die Gitterkonstante des Substrates GaN annimmt. Dennoch sollte noch ein instabiler Bereich bis zu einer Temperatur von etwa 700 °C existieren, in denen es zur spinodalen und binodalen Entmischung kommen kann. Es wurden Anordnungen der entmischten Phasen berechnet, die für einen Konzentrationswert im mittleren Bereich unterhalb der spinodalen zu einer meanderartigen Anordnung der phasenseparierten Materialien zeigen.

Im experimentellen Teil befasste sich die Arbeit zuerst mit der Abscheidung von dünnen unbedeckten InGaN Schichten. Es wurde bewusst eine niedrige InGaN-Wachstumstemperatur von 600 °C gewählt um sicherzustellen, dass das Gasphasenverhältnis der Metallorganika Trimethylgallium und -indium aus thermodynamischen Gesichtspunkten direkt auf den Festkörper, in diesem Falle die dünne InGaN Schicht, übertragen werden sollte. Desweiteren lässt die niedrige Temperatur die Möglichkeit offen, durch geeignete Wahl der Konzentration der InGaN-Schicht eine Phasenseparation zu erzwingen. Das Gasphasenverhältnis von $\text{In}/(\text{In}+\text{Ga}) = 82\%$ sollte zu einer $\text{In}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{N}$ -Schicht führen, die nach dem spinodalen Phasendiagramm instabil ist. Untersuchungen mit der Rasterelektronenmikroskopie zeigten eine meanderartige Struktur coexistierend neben inselartigen Strukturen. Während in Photolumineszenzmessungen Emission von InGaN mit einem niedrigen InN-Gehalt detektiert werden konnte, wurde in der Röntgendiffraktometrie eine Phase mit hohem InN-Gehalt festgestellt. In der Transmissionselektronenmikroskopie konnten diese Befunde bestätigt und den Oberflächenstrukturen zugeordnet werden: die meanderartigen Strukturen bestehen aus InGaN mit einem niedrigen InN-Gehalt von schätzungsweise 20-30 %, während die Inseln einen hohen InN-Gehalt über 90 % haben. Diese Ergebnisse zeigen, dass Phasenseparation einer InGaN-Schicht stattgefunden hat.

Anhand der charakteristischen Photolumineszenz dieser meanderartigen Strukturen, die selbst bei Raumtemperatur noch leicht detektierbar ist und damit ein deutliches Indiz für die Bildung von Quantenpunkten ist, konnte der Konzentrationsbereich in weiteren Experimenten eingegrenzt werden. Demnach tritt Phasenseparation und Quantenpunktbildung nur in einem Konzentrationsbereich zwischen 78 % und 87 % auf.

Dieses Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit der theoretisch berechneten Mischungslücke, welche zwischen 74 % und 85 % liegt.

Ein weiterer wichtiger Teil dieser Arbeit war die Entwicklung einer Deckschichtprozedur, die zerstörungsfrei für die InGaN Quantenpunkte ohne Qualitätseinbußen in der Schichtqualität ist. Es hat sich gezeigt, dass es essentiell ist, die meanderartigen InGaN-Strukturen mit einer GaN-Schicht unterhalb von 750 °C in einer Stickstoffatmosphäre zu überwachsen. Danach können für das folgende Wachstum wieder optimale Wachstumsbedingungen für GaN, 1050 °C und H₂-Atmosphäre, eingestellt werden. Während die meanderartigen Strukturen mit dem niedrigen InN-Gehalt von der Prozedur nicht beeinträchtigt werden lösen sich die Inseln mit dem hohen InN-Gehalt auf und bilden einen Quantenfilm.

Transmissionselektronenmikroskopie- und μ -Photolumineszenzuntersuchungen zeigen eindeutig, dass die spinodale Entmischung der InGaN-Schicht zur Bildung von InGaN Quantenpunkten führt.

Experimente, in denen die Wachstumstemperatur der InGaN-Schicht variiert wurde, zeigten, dass dadurch die Quantenpunktdichte über drei Größenordnungen eingestellt werden konnte. Es ist somit möglich, Strukturen mit einer geringen Dichte für die Einzelphotonenemission sowie mit einer hohen Dichte für LED- oder Laseranwendungen herzustellen. Eine weitere Erhöhung der Anzahl der Quantenpunkte in einer Struktur wurde durch das Stapeln von Quantenpunktschichten erhalten.

Es wurde gezeigt, dass die InGaN Quantenpunkte in einer LED-Struktur mit p-n-Übergang eingebettet und elektrisch betrieben werden konnten. Der elektrische Betrieb eines einzelnen Quantenpunktes wurde nachgewiesen. Alleine über die Höhe der Quantenpunkte, was über die Wachstumsdauer eingestellt wird, lässt sich die Emissionswellenlänge in einem Bereich von 100 nm von violett bis grün variieren. Mehrere Quantenpunktschichten mit unterschiedlichen Emissionswellenlängen wurden übereinandergestapelt und ergaben eine mehrfarbige blau-grüne LED mit einer breiten spektralen Halbwertsbreite. Dieses Ergebnis ist der Grundstein hin zu einer weiß emittierende LED auf Basis von InGaN Quantenpunkten.

Die Integration von Quantenpunkten in eine Laserstruktur ist nur bedingt als erfolgreich zu werten. Positiv ist, dass die InGaN Quantenpunkte selbst nach dem langen Wachstum bei hohen Temperaturen, die für die p-dotierten oberen Wellenleiter und Mantelschicht benötigt werden, noch erhalten bleiben und sich nicht auflösen. Negativ ist, dass bisher noch keine stimulierte Emission bei den Bauelementen aufgetreten ist. Ein Grund könnte die parasitäre Wirkung des Quantenfilms sein, der sich durch die Auflösung der InN-reichen Inseln oberhalb der Quantenpunktschicht bildet.

Fortschritte wurden auf dem Gebiet der Einzelphotonenemission erzielt. Das Wachstum von InGaN Quantenpunkten in eine Kavitätsstruktur war erfolgreich und spektrale Einzellinien nahe der Kavitätsmode konnten gemessen werden. Zusätzlich wurde der elektrische Betrieb eines Quantenpunktensembles in einer großflächigen Struktur gezeigt. Aufgrund der nichtleitenden AlInN-Schichten mussten Intrakavitätskontakte prozessiert werden. Auch wenn die Prozessierung noch einiger Optimierung bedarf, ist mit der Elektrolumineszenz des Bauelements ein weiterer Schritt hin zum elektrisch betriebenen Einzelphotonenemitter.

Es wurden mehrere Ansätze gegeben, welche das Ziel einer Intensitätssteigerung der

Strukturen verfolgten. Eine n-dotierte AlGa_N-Loch-Sperrschicht, das Gegenstück zu einer p-dotierten Elektronen-Sperrschicht, eingebaut 40 nm unterhalb der InGa_N Quantenpunkte, führte zu einer Steigerung der Elektrolumineszenz. Erste Experimente mit dem Versuch der Abscheidung von InGa_N Quantenpunkten auf unpolaren *a*-Ebenen Ga_N wurden präsentiert. Auch wenn nicht eindeutig geklärt werden konnte, ob es wirklich zur Bildung von Quantenpunkten gekommen ist, weisen die Ergebnisse mehrere Parallelen zu Wachstum auf *c*-Flächen Ga_N auf. Dies wäre eine effektive Methode zur Reduzierung des “Quantum-Confined Stark Effect” und sollte zu einer Effizienzsteigerung bei langwelligen Emittern führen.

Schließlich wurde die Anwendbarkeit von InGa_N Quantenpunkten für die Photovoltaik gezeigt. Halogenlampenbeleuchtung eines LED-Bauelements ergab eine Leerlaufspannung von über 770 mV und einen signifikanten Kurzschlussstrom von mehreren μ A.

Abkürzungsverzeichnis

AFM	Rasterkraftmikroskopie (engl.: atomic force microscopy)
D ⁰ X	am neutralen Donator gebundenes Exziton
DAP	Donator-Akzeptor-Paarrekombination
DBR	wellenlängenselektiver Bragg-Spiegel (engl.: distributed Bragg reflector)
EL	Elektrolumineszenz
ES	Elektronen-Sperrschicht
HRSTEM	Hochauflösendes STEM (engl.: high resolution STEM)
LB	Leitungsband
LD	Laserdiode
LED	Licht emittierende Diode
LO	longitudinal-optisch
LS	Loch-Sperrschicht
MBE	Molekularstrahlepitaxie (engl.: molecular beam epitaxy)
ML	Monolage
MOVPE	metallorganische Gasphasenepitaxie (engl.: metal organic vapour phase epitaxy)
μ-PL	micro-Photolumineszenz
OLED	organische Licht emittierende Diode
PL	Photolumineszenz
QCSE	Stark-Effekt unter quantenmechanischen Einfluss (engl.: quantum confined Stark effect)
QP	Quantenpunkt
REM	Rasterelektronenmikroskopie
RT	Raumtemperatur
S-K	Stranski-Krastanov
STEM	Rastertransmissionselektronenmikroskopie
STM	Rastertunnelmikroskopie
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
TMI/-G/-A	Trimethylindium/-gallium/-alluminium
TT	Tieftemperatur
VB	Valenzband
XRD	Röntgenstrahlendifraktometrie (engl.: x-ray diffraction)

Literaturverzeichnis

- [ADK⁺10] T. Aschenbrenner, H. Dartsch, C. Kruse, M. Anastasescu, M. Stoica, M. Gartner, A. Pretorius, A. Rosenauer, T. Wagner, and D. Hommel. Optical and structural characterization of AlInN layers for optoelectronic applications. *J. Appl. Phys.*, 108:063533, 2010.
- [AFS⁺08] T. Aschenbrenner, S. Figge, M. Schowalter, A. Rosenauer, and D. Hommel. Photoluminescence and structural analysis of a-plane InGaN layers. *J. Cryst. Growth*, 310(23):4992, 2008.
- [AGK⁺08a] R. Arians, A. Gust, T. Kümmel, C. Kruse, S. Zaitsev, G. Bacher, and D. Hommel. Electrically driven single quantum dot emitter operating at room temperature. *Appl. Phys. Lett.*, 93:173506, 2008.
- [AGK⁺08b] T. Aschenbrenner, K. Goepel, C. Kruse, S. Figge, and D. Hommel. Direct MOVPE- and MBE-growth of a-plane GaN on r-plane sapphire. *phys. stat. sol. (c)*, 5(6):1836, 2008.
- [AK96] A.N. Alexeev and S.Y. Karpov. Conditions of excess liquid phase formation during molecular beam epitaxy of III-V ternary compounds. *J. Cryst. Growth*, 162:15, 1996.
- [ALM⁺09] A. Avramescu, T. Lermer, J. Müller, S. Tautz, D. Queren, S. Lutgen, and U. Strauß. InGaN laser diodes with 50 mW output power emitting at 515 nm. *Appl. Phys. Lett.*, 95:071103, 2009.
- [AMM⁺02] O. Ambacher, J. Majewski, C. Miskys, A. Link, M. Hermann, M. Eickhoff, M. Stutzmann, F. Bernardini, V. Fiorentini, V. Tilak, B. Schaff, and L.F. Eastman. Pyroelectric properties of Al(In)Ga_N/Ga_N hetero- and quantum well structures. *J. Phys.: Condens. Matter*, 14:3399, 2002.
- [AMS96] M. Asada, Y. Miyamoto, and Y. Suematsu. Gain and the threshold of three-dimensional quantum-box lasers. *IEEE J. Quant. Electr.*, 11:554, 1996.
- [Ara01] Y. Arakawa. Progress in Growth and Physics in Nitrid-Based Quantum Dots. *phys. stat. sol. (a)*, 188(1):37–45, 2001.
- [AS82] Y. Arakawa and H. Sakaki. Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current. *Appl. Phys. Lett.*, 40(11):939, 1982.

- [AS96] L.V. Asryan and R.A. Suris. Inhomogeneous line broadening and the threshold current density of a semiconductor quantum dot laser. *Semicond. Sci. Technol.*, 11:554, 1996.
- [Asc10] T. Aschenbrenner. *Wachstum und Charakterisierung von nitrid-basierten Halbleiterstrukturen für optoelektronische Anwendungen: Nanosäulen, Bragg-Reflektoren und Laserdioden*. November 2010. Dissertation, Universität Bremen.
- [AZET08] R.A. Arif, H. Zhao, Y.K. Ee, and N. Tansu. Spontaneous Emission and Characteristics of Staggered InGaN Quantum-Well Light-Emitting Diodes. *IEEE J. Quantum Electronics*, 44(6):573, 2008.
- [Ban72] V.S. Ban. Mass Spectrometric Studies of Vapor-Phase Crystal Growth: II. GaN. *J. Electrochem. Soc.: SOLID-STATE SCIENCE AND TECHNOLOGY*, 119(6):761–765, 1972.
- [BCF⁺07] R. Butte, J.F. Carlin, E. Feltin, M. Gonschorek, S. Nicolay, G. Christmann, D. Simeonov, A. Castiglia, J. Dorsaz, H.J. Buehlmann, S. Christopoulos, G. Baldassarri Höger von Högersthal, A.J.D. Grundy, M. Mosca, C. Pinquier, M.A. Py, F. Demangeot, J. Frandon, P.G. Lagoudakis, J.J. Baumberg, and N. Grandjean. Current status of AlInN layers lattice-matched to GaN for photonics and electronics. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 40(20):6328, 2007.
- [Bin83] K. Binder. Collective diffusion, nucleation, and spinodal decomposition in polymer mixtures. *J. Chem. Phys.*, 79(12):6387, 1983.
- [Ble10] S. Bley. *Optimierung der Präparation von GaN-basierten Proben mittels Niedrigenergie-Ionendünnung für (S)TEM-Untersuchungen*. 2010. Diplomarbeit, Universität Bremen.
- [BLRZ01] V. Bougrov, M. E. Levinshtein, S. L. Rumyantsev, and A. Zubrilov. Chapter 1 (Gallium Nitride). In M. E. Levinshtein, S. L. Rumyantsev, and M. S. Shur, editors, *Properties of Advanced Semiconductor Materials: GaN, AlN, InN, BN, SiC, SiGe*, pages 1–30, New York, 2001. John Wiley & Sons, Inc.
- [BSK⁺10] K.H. Baik, Y.G. Seo, J. Kim, S.M. Hwang, W. Lim, C.Y. Chang, S.J. Pearton, F. Ren, and S. Jang. Ohmic contact properties of non-polar a-plane GaN films on r-plane sapphire substrates. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 43:295102, 2010.
- [BWW⁺09] J. Bai, Q. Wang, T. Wang, A.G. Cullis, and P.J. Parbrook. Optical and microstructural study of a single layer of InGaN quantum dots. *J. Appl. Phys.*, 105:05305, 2009.
- [Bö02] T. Böttcher. *Heteroepitaxy of Group-III-Nitrides for the Application in Laser Diodes*. Februar 2002. Dissertation, Universität Bremen.

- [Cah64] J.W. Cahn. Phase separation by Spinodal Decomposition in Isotropic Systems. *J. Chem. Phys.*, 42(1):93–99, 1964.
- [CCC⁺05] M.K. Chen, Y.C. Cheng, J.Y. Chen, C.M. Wu, C.C. Yang, K.J. Ma, J.R. Yang, and A. Rosenauer. Effects of silicon doping on the nanostructures of InGaN/GaN quantum wells. *J. Cryst. Growth*, 279:55–64, 2005.
- [CH58] J.W. Cahn and J.E. Hilliard. Free Energy of a Nonuniform System. I. Interfacial Free Energy. *J. Chem. Phys.*, 28(2):258, 1958.
- [Che00] D. Cherns. The structure and optoelectronic properties of dislocations in GaN. *J. Phys.: Condens. Matter*, 12:10205, 2000.
- [CJH⁺03] H.J. Choi, J.C. Johnson, R. He, S.K. Lee, F. Kim, P. Pauzauskie, J. Goldberger, R.J. Saykally, and P. Yang. Self-Organized GaN Quantum Wire UV Lasers. *J. Phys. Chem. B*, 107:8721, 2003.
- [CKY⁺08] W.H. Chang, W.C. Ke, S.H. Yu, L. Lee, C.Y. Chen, W.C. Tsai, H. Lin, W.C. Chou, M.C. Lee, and W.K. Chen. Effects of growth temperature on InN/GaN nanodots grown by metal organic chemical vapor deposition. *J. Appl. Phys.*, 103:104306, 2008.
- [CLW⁺02] M.D. Craven, S.H. Lim, F. Wu, J.S. Speck, and S.P. DenBaars. Structural characterization of nonpolar (11-20) a-plane GaN thin films grown on (1-102) r-plane sapphire. *Appl. Phys. Lett.*, 81:469, 2002.
- [CLY02] H.K. Cho, J.Y. Lee, and G.M. Yang. Characterization of pit formation in III-nitrides grown by metalorganic chemical vapor deposition. *Appl. Phys. Lett.*, 80:1370, 2002.
- [CSC⁺04] C.A. Chang, C.F. Shih, N.C. Chen, T.Y. Lin, and K.S. Liu. In-rich In_{1-x}Ga_xN films by metalorganic vapor phase epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 85(25):6131, 2004.
- [CSL⁺08] S.J. Chua, C.B. Soh, W. Liu, J.H. Teng, S.S. Ang, and S.L. Teo. Quantum dots excited InGaN/GaN phosphor-free white LEDs. *phys. stat. sol. (c)*, 5(6):2189, 2008.
- [CVB⁺08] A. Chahboun, M.I. Vasilevskiy, N.V. Baidus, A. Cavaco, N.A. Sobolev, M.C. Carmo, E. Alves, and B.N. Zvonkov. Further insight into the temperature quenching of photoluminescence from InAs/GaAs self-assembled quantum dots. *J. Appl. Phys.*, 103:083548, 2008.
- [CYW⁺09] S. Che, A. Yuki, H. Watanabe, Y. Ishitani, and A. Yoshikawa. Fabrication of Asymmetric GaN/InN/InGaN/GaN Quantum-Well Light Emitting Diodes for Reducing the Quantum-Confined Stark Effect in the Blue-Green Region. *Appl. Phys. Express*, 2:021001, 2009.
- [Dar07] H. Dartsch. *Herstellung von AlGaIn/GaN-Bragg-Reflektoren mittels MOVPE*. Dezember 2007. Diplomarbeit, Universität Bremen.

- [DBLM98] D. Doppalapudi, S.N. Basu, K.F. Ludwig, and T.D. Moustakas. Phase separation and ordering in InGaN alloys grown by molecular beam epitaxy. *J. Appl. Phys.*, 84(3):1389, 1998.
- [DDG⁺08] R. Dwilinski, R. Doradzinski, J. Garczynski, L.P. Sierzputowski, A. Puchalski, Y. Kanbara, K. Yagi, H. Minakuchi, and H. Hayashi. Excellent crystallinity of truly bulk ammonothermal GaN. *J. Cryst. Growth*, 310:3911, 2008.
- [Den08] J. Dennemarck. *Technologie und Charakterisierung von GaN-Laserdioden*. April 2008. Dissertation, Universität Bremen.
- [DGS⁺09] F. Dimroth, W. Guter, J. Schöne, E. Welser, M. Steiner, E. Oliva, A. Wekkeli, G. Siefert, S.P. Philipps, and A.W. Bett. Metamorphic GaInP/GaInAs/Ge Triple-Junction Solar Cells with >41% Efficiency. *IEEE Photovoltaic Specialists Conference*, 1-3:1933, 2009.
- [DKS⁺02] V.Y. Davydov, A.A. Klochikhin, R.P. Seisyan, V.V. Emtsev, S.V. Ivanov, F. Bechstedt, J. Furthmüller, H. Harima, A.V. Mudryi, J. Aderhold, O. Semchinova, and J. Graul. Absorption and Emission of Hexagonal InN. Evidence of Narrow Fundamental Band Gap. *phys. stat. sol. (b)*, 229(3):R1, 2002.
- [DOM⁺00] T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, J. Cibert, and D. Ferrand. Zener Model Description of Ferromagnetism in Zinc-Blende Magnetic Semiconductors. *Science*, 287:5455, 2000.
- [Dow] Broschüre “Chemical Vapor Deposition Sources” der Firma DOW Electronic materials (www.rohmhaas.com).
- [DPL⁺09] R. Dahal, B. Pantha, J. Li, J.Y. Lin, and H.X. Jiang. InGaN/GaN multiple quantum well solar cells with long operating wavelengths. *Appl. Phys. Lett.*, 94:063505, 2009.
- [dSDdA⁺05] A. Ferreira da Silva, N. Souza Dantas, J.S. de Almeida, R. Ahuja, and C. Persson. Electronic and optical properties of wurtzite and zinc-blende TiN and AlN. *J. Cryst. Growth*, 281(1):151–160, 2005.
- [DTA⁺11] H. Dartsch, C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge, C. Kruse, M. Schowalter, A. Rosenauer, and D. Hommel. Electroluminescence from InGaN quantum dots in a fully monolithic GaN/AlInN cavity. *Journal of Crystal Growth*, 320:28, 2011.
- [DV05] V.G. Deibuk and A.V. Voznyi. Thermodynamic Stability and Redistribution of Charges in Ternary AlGa_{1-x}In_xN, InGa_{1-x}Al_xN, and InAl_{1-x}In_xN Alloys. *Semiconductors*, 39(6):623, 2005.
- [Ebe10] J. Ebeling. *Prozessierung von nitrid-basierten Laserdioden*. 2010. Diplomarbeit, Universität Bremen.

- [EC90] D.J. Eaglesham and M. Cerullo. Dislocation-free Stranksi-Krastanov growth of Ge on Si(100). *Phys. Rev. Lett.*, 64(16):1943, 1990.
- [EHKH01] S. Einfeldt, H. Heinke, V. Kirchner, and D. Hommel. Strain relaxation in AlGa_N/Ga_N superlattices grown on Ga_N. *J. Appl. Phys.*, 89:2160, 2001.
- [EKH⁺00] S. Einfeldt, V. Kirchner, H. Heinke, M. Diebelberg, S. Figge, K. Vogeler, and D. Hommel. Strain relaxation in AlGa_N under tensile plane stress. *J. Appl. Phys.*, 88:7029, 2000.
- [EMPL98] N.A. El-Masry, E.L. Piner, and S.X. Liu. Phase separation in InGa_N grown by metalorganic chemical vapor deposition. *Appl. Phys. Lett.*, 72(1):40, 1998.
- [EYK⁺09] Y. Enya, Y. Yoshizumi, T. Kyono, K. Akita, M. Ueno, M. Adachi, T. Sumitomo, S. Tokuyama, K. Katayama, and T. Nakamura. 531 nm Green Lasing of InGa_N Based Laser Diodes on Semi-Polar {20-21} Free-Standing Ga_N Substrates. *Appl. Phys. Express*, 2:082101, 2009.
- [Eyr98] D. Eyre. *MRS Symp. Proc.*, 529:39, 1998.
- [EYSB⁺01] A. El-Yadouni, A. Soltani, A. Boudrioua, P. Thevenin, A. Bath, and J.C. Loulergue. Investigation of the optical and electro-optical properties of hexagonal boron nitride thin films deposited by PECVD technique. *Opt. Mat.*, 17(1):319–322, 2001.
- [Fan09] M. Fandrich. *Prozessierung von nitridbasierten Oberflächenemittern*. 2009. Diplomarbeit, Universität Bremen.
- [FB02] M. Ferchat and F. Bechstedt. First-principles calculations of gap bowing in In_xGa_{1-x}N and In_xAl_{1-x}N alloys: Relation to structural and thermodynamic properties. *Phys. Rev. B*, 65:075213, 2002.
- [Fig03] S. Figge. *GaN-basierte Laserdioden - Epitaxie und Simulation*. Juni 2003. Dissertation, Universität Bremen.
- [FNS⁺08] C.T. Foxon, S.V. Novikov, N.M. Stanton, R.P. Champion, and A.J. Kent. Free-standing zinc-blende (cubic) Ga_N substrates grown by a molecular beam epitaxy process. *phys. stat. sol. (b)*, 245(5):890–892, 2008.
- [FTR⁺03] D.I. Florescu, S.M. Ting, J.C. Ramer, D.S. Lee, V.N. Merai, A. Parkeh, D. Lu, E.A. Armour, and L. Chernyak. Investigation of V-Defects and embedded inclusions in InGa_N/Ga_N multiple quantum wells grown by metalorganic chemical vapor deposition on (0001) sapphire. *Appl. Phys. Lett.*, 83(1):33, 2003.
- [FWL⁺09] S.F. Fu, S.M. Wang, L. Lee, C.Y. Chen, W.C. Tsai, W.C. Chou, M.C. Lee, W.H. Chang, and W.K. Chen. The structural and optical properties of In_N nanodots grown with various V/III ratios by metal-organic chemical vapor deposition. *Nanotechnology*, 20:295702, 2009.

- [GHN⁺03] D. Gerthsen, E. Hahn, B. Neubauer, V. Potin, A. Rosenauer, and M. Schowalter. Indium distribution in epitaxially grown InGaN layers analysed by transmission electron microscopy. *phys. stat. sol. (c)*, 0(6):1668, 2003.
- [GJW⁺96] W. Götz, N.M. Johnson, J. Walker, D.P. Bour, and R.A. Street. Activation of acceptors in Mg-doped GaN grown by metalorganic chemical vapor deposition. *Appl. Phys. Lett.*, 68:667, 1996.
- [GKH06] A. Gust, C. Kruse, and D. Hommel. Investigation of CdSe quantum dots in MgS barriers as active region in light emitting diodes. *J. Cryst. Growth*, 301-302:789, 2006.
- [GKO⁺09] A. Gust, C. Kruse, K. Otte, J. Kalden, T. Meeser, K. Sebald, J. Gutowski, and D. Hommel. A CdSe quantum dot based resonant cavity light-emitting diode showing single line emission up to 90 K. *Nanotechnology*, 20:015401, 2009.
- [GKS⁺07] H. Groiss, E. Kaufmann, G. Springholz, T. Schwarzl, G. Hesser, F. Schäffler, W. Heiss, K. Koike, T. Itakura, T. Hotei, M. Yano, and T. Wojtowicz. Size control and midinfrared emission of epitaxial PbTe/CdTe quantum dot precipitates grown by molecular beam epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 91:222106, 2007.
- [GLS⁺10] Y. Guo, X.L. Liu, H.P. Song, A.L. Yang, X.Q. Xu, G.L. Zheng, H.Y. Wei, S.Y. Yang, Q.S. Zhu, and Z.G. Wang. A study of indium incorporation in In-rich InGaN grown by MOVPE. *Appl. Surface Science*, 256:3352, 2010.
- [Gri09] T. Grieb. *Erzeugung kurzer elektrischer Pulse zum Hochfrequenzbetrieb Quantenpunkt-basierter Leuchtdioden*. 2009. Studienarbeit, Universität Bremen.
- [Gri10] T. Grieb. *Prozessierung und Optimierung von Quantenpunkt-basierten LED-Strukturen für Einzelphotonenemission*. Mai 2010. Diplomarbeit, Universität Bremen.
- [GSE⁺06a] S. Gangopadhyay, T. Schmidt, S. Einfeldt, T. Yamaguchi, D. Hommel, and J. Falta. Growth and formation of InGaN and GaN nano-structures studied by STM. *e-J. Surf. Sci. Nanotech.*, 4:90, 2006.
- [GSE⁺06b] S. Gangopadhyay, T. Schmidt, S. Einfeldt, T. Yamaguchi, D. Hommel, and J. Falta. Growth and morphology of MOVPE grown InGaN/GaN islands. *phys. stat. sol. (c)*, 3:1557, 2006.
- [GSE⁺06c] S. Gangopadhyay, T. Schmidt, S. Einfeldt, T. Yamaguchi, D. Hommel, and J. Falta. Surface Morphology and Island Shape of MOVPE Grown InGaN Nano-Island Ensembles Studied by STM. *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, 892, 2006.

- [GSE⁺07] S. Gangopadhyay, T. Schmidt, S. Einfeldt, T. Yamaguchi, D. Hommel, and J. Falta. Formation and morphology of InGaN nanoislands on GaN(0001). *J. Vac. Sci. Technol. B*, 25(3):1071, 2007.
- [GSSMH99] P. Guyot-Sionnest, M. Shim, C. Matranga, and M. Hines. Intraband relaxation in CdSe quantum dots. *Phys. Rev. B*, 60:2181, 1999.
- [HBK07] G. Harbers, S.J. Bierhuizen, and M.R. Krames. Performance of High Power Light Emitting Diodes in Display Illumination Application. *J. Display Technology*, 3(2):98–109, 2007.
- [HCC⁺07] L.L. Huang, H.J. Chang, Y.Y. Chou, C.H. Wang, T.T. Chen, Y.F. Chen, J.Y. Tsai, S.C. Wang, and H.C. Kuo. Optical properties of InGaN quantum dots grown by SiN_x nanomasks. *J. Appl. Phys.*, 101:083501, 2007.
- [HGK⁺07] W. Heiss, H. Groiss, E. Kaufmann, G. Hesser, M. Böberl, G. Springholz, F. Schäffler, R. Leitsmann, F. Bechstedt, K. Koike, H. Harada, and M. Yano. Quantum dots with coherent interfaces between rocksalt-PbTe and zinblend-CdTe. *J. Appl. Phys.*, 101:081723, 2007.
- [HKS⁺95] D.M. Hofmann, D. Kovalev, G. Steude, B.K. Meyer, A. Hoffmann, L. Eckey, R. Heitz, T. Detchprom, H. Amano, and I. Akasaki. Properties of the yellow luminescence in undoped GaN epitaxial layers. *Phys. Rev. B*, 52:16702, 1995.
- [HNDS07] B.A. Haskell, S. Nakamura, S.P. DenBaars, and J.S. Speck. Progress in the growth of nonpolar gallium nitride. *phys. stat. sol. (b)*, 244(8):2847, 2007.
- [HS96] I. Ho and G. B. Stringfellow. Solid phase immiscibility in GaInN. *Appl. Phys. Lett.*, 69(18):2701–2703, Oktober 1996.
- [IIT98] K. Ikuta, Y. Inoue, and O. Takai. Optical and electrical properties of InN thin films grown on ZnO/ α -Al₂O₃ by RF reactive magnetron sputtering. *Thin Solid Films*, 334:49, 1998.
- [JM75] L.W. James and R.L. Moon. GaAs concentrator solar cell. *Appl. Phys. Lett.*, 26(8):467, 1975.
- [JOT09] A.F. Jarjour, R.A. Oliver, and R.A. Taylor. Nitride-based quantum dots for single photon source applications. *phys. stat. sol. (a)*, 206(11):2510, 2009.
- [JTO⁺08] A.F. Jarjour, R.A. Taylor, R.A. Oliver, M.J. Kappers, C.J. Humphreys, and A. Tahraoui. Electrically driven single InGaN/GaN quantum dot emission. *Appl. Phys. Lett.*, 93:233103, 2008.
- [Kal10] J. Kalden. *Optische und optoelektronische Eigenschaften von Nanostrukturen auf Basis breitlückiger Halbleiter*. Juni 2010. Dissertation, Universität Bremen.

- [Kar98] S. Y. Karpov. Suppression of phase separation in InGaN due to elastic strain. *MRS Internet J. Nitride Semicon. Res.*, 3(16):1–5, June 1998.
- [KCL07] C.S. Ku, W.C. Chou, and M.C. Lee. Optical investigations of InN nanodots capped by GaN at different temperatures. *Appl. Phys. Lett.*, 90:132116, 2007.
- [KCTY09] Y.K. Kuo, J.Y. Chang, M.C. Tsai, and S.H. Yen. Advantages of blue InGaN multiple-quantum well light-emitting diode with InGaN barriers. *Appl. Phys. Lett.*, 95:011116, 2009.
- [Kea66] P.N. Keating. Effect of Invariance Requirements on the Elastic Strain Energy of Crystals with Application to the Diamond Structure. *Phys. Rev.*, 145:637, 1966.
- [KHTO04] K. Kusakabe, A. Hirako, S. Tanake, and K. Ohkawa. Computational fluid dynamics on gaseous and surface chemistry of GaN-MOVPE system for various pressures. *phys. stat. sol. (c)*, 1(10):2569–2572, 2004.
- [Kir00] V. Kirchner. *Strukturelle Charakterisierung von Gruppe-III-Nitriden mit Hilfe der hochauflösenden Röntgenbeugung*. Juni 2000. Dissertation, Universität Bremen.
- [Kit99] Ch. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. R. Oldenbourg Verlag München Wien, 12. edition, 1999.
- [KKM⁺08] L. Kirste, K. Köhler, M. Maier, M. Kunzer, M. Maier, and Joachim Wagner. SIMS depth profiling of Mg back-diffusion in (AlGaIn)N light-emitting diodes. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 19:176, 2008.
- [KKS00] A. Koukitu, Y. Kumagai, and H. Seki. Thermodynamic analysis of the MOVPE growth of AlInGaN quaternary alloy. *J. Cryst. Growth*, 221:743–750, 2000.
- [KLS96] K. Kim, W. R. L. Lambrecht, and B. Segall. Elastic constants and related properties of tetrahedrally bonded BN, AlN, GaN and InN. *Phys. Rev. B*, 53(24):16310–16326, January 1996.
- [KMM⁺00] V.I. Klimov, A.A. Mikhailovsky, D.W. McBranch, C.A. Leatherdale, and M. G. Bawendi. Mechanisms for intraband energy relaxation in semiconductor quantum dots: The role of electron-hole interactions. *Phys. Rev. B*, 61:13349, 2000.
- [KP04] J.S. Kwak and Y. Park. InGaN-Based Light-Emitting Diodes with Ni/Au Transparent Contacts Annealed in Different Ambient Gases. *Journal of the Korean Physical Society*, 45(4):988, 2004.

- [KPB⁺00] A.K. Kandalam, R. Pandey, M.A. Blanco, A. Costales, J.M. Recio, and J.M. Newsam. First principles study of polyatomic clusters of AlN, GaN, and InN. 1. Structure, stability, vibrations, and ionization. *J. Phys. Chem. B*, 104:4361, 2000.
- [KPKH01] M. Klude, T. Passow, R. Kröger, and D. Hommel. Electrically pumped lasing from CdSe quantum dots. *Electron. Lett.*, 37:1119, 2001.
- [KRZ⁺09] R. Kucharski, M. Rudzinski, M. Zajac, R. Doradzinski, J. Garczynski, L. Sierzputowski, R. Kudrawiec, J. Serafinczuk, W. Strupinski, and R. Dwilinski. Nonpolar GaN substrates grown by ammonothermal method. *Appl. Phys. Lett.*, 95:131119, 2009.
- [KSMM⁺07] M.R. Krames, O.B Shchekin, R. Mueller-Mach, G.O. Mueller, L. Zhou, G. Harbers, and M.G. Craford. Status and Future of High-Power Light-Emitting Diodes for Solid-State Lighting. *J. Display Technol.*, 3(2):160, 2007.
- [KSY⁺98] Y. Kawaguchi, M. Shimizu, M. Yamaguchi, K. Hiramatsu, N. Sawaki, W. Taki, H. Tsuda, N. Kuwano, K. Oki, T. Zheleva, and R.F. Davis. The formation of crystalline defects and crystal growth mechanism in In_xGa_{1-x}N/GaN heterostructure grown by metalorganic vapor phase epitaxy. *J. Cryst. Growth*, 189/190:24, 1998.
- [KTS97] A. Koukitu, N. Takahashi, and H. Seki. Thermodynamic Study on Metalorganic Vapor-Phase Epitaxial Growth of Group III Nitrides. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 36:L1136, 1997.
- [KTS⁺10a] J. Kalden, C. Tessarek, K. Sebald, S. Figge, C. Kruse, D. Hommel, and J. Gutowski. Electroluminescence from a single InGaN quantum dot in the green spectral region up to 150 K. *Nanotechnology*, 21:015204, 2010.
- [KTS⁺10b] J. Kalden, C. Tessarek, K. Sebald, S. Figge, C. Kruse, D. Hommel, and J. Gutowski. Electroluminescence from isolated single indium gallium nitride quantum dots up to 150 K. *phys. stat. sol.*, 207:1428, 2010.
- [KTY⁺09] Y.K. Kuo, M.C. Tsai, S.H. Yen, T.C. Hsu, and Y.J. Shen. Enhancement of Light Power for Blue InGaN LEDs by Using Low-Indium-Content InGaN Barriers. *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.*, 15(4):1115, 2009.
- [KUAY07] T. Kuykendall, P. Ulrich, S. Aloni, and P. Yang. Complete composition tunability of InGaN nanowires using a combinatorial approach. *Nature Materials*, 6(12):951, 2007.
- [Kuh02] B. Kuhn. *AlGaIn/GaN-Heterostrukturen: Epitaxie und elektrische Eigenschaften*. September 2002. Dissertation, Universität Stuttgart.

- [LB03] N.N. Ledentsov and D. Bimberg. Growth of self-organized quantum dots for optoelectronic applications: nanostructures, nanoepitaxy, defect engineering. *J. Cryst. Growth*, 255:68, 2003.
- [LCL⁺06] H.Y. Lin, Y.F. Chen, T.Y. Lin, C.F. Shih, K.S. Liu, and N.C. Chen. Direct evidence of compositional pulling effect in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ epilayers. *J. Cryst. Growth*, 290:225, 2006.
- [LCS⁺03] Y.C. Lin, S.J. Chang, Y.K. Su, T.Y. Tsai, C.S. Chang, S.C. Shei, C.W. Kuo, and S.C. Chen. InGaN/GaN light emitting diodes with Ni/Au, Ni/ITO and ITO p-type contacts. *Solid-State Electronics*, 47(5):849, 2003.
- [LJdW10] J.L. Lyons, A. Janotti, and C.G. Van de Walle. Carbon impurities and the yellow luminescence in GaN. *Appl. Phys. Lett.*, 97:152108, 2010.
- [LJNK07] S.P. Lee, H.W. Jang, D.Y. Noh, and H.C. Kang. Connected Au network in annealed Ni/Au thin films on p-GaN. *Appl. Phys. Lett.*, 91:201905, November 2007.
- [LKH⁺00] J.M. Lee, D.H. Kim, H. Hong, J.C. Woo, and S.J. Park. Growth of InAs nanocrystals on GaAs(100) by droplet epitaxy. *J. Cryst. Growth*, 212(1-2):67, 2000.
- [LKR⁺93] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C.M. Reaves, S.P. Denbaars, and P.M. Petroff. Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces. *Appl. Phys. Lett.*, 63(23):3203–3205, 1993.
- [LKS⁺06] H. Lohmeyer, C. Kruse, K. Sebald, J. Gutowski, and D. Hommel. Enhanced spontaneous emission of CdSe quantum dots in monolithic II-VI pillar microcavities. *Appl. Phys. Lett.*, 89(9):091107, 2006.
- [LS78] S.S. Liu and D.A. Stevenson. Growth Kinetics and Catalytic Effects in the Vapor Epitaxy of Gallium Nitride. *J. Electrochem. Soc.: SOLID-STATE SCIENCE AND TECHNOLOGY*, 125(7):1161–1169, 1978.
- [LSG⁺05] H. Lohmeyer, K. Sebald, J. Gutowski, R. Kröger, C. Kruse, D. Hommel, J. Wiersig, and F. Jahnke. Resonant modes in monolithic nitride pillar microcavities. *Eur. Phys. J. B - Condensed Matter and Complex Systems*, 48:291, 2005.
- [LTS⁺96] M. Leszczynski, H. Teisseyre, T. Suski, I. Grzegory, M. Bockowski, J. Jun, S. Porowski, K. Pakula, J.M. Baranowski, C.T. Foxon, and T.S. Cheng. Lattice parameters of gallium nitride. *Appl. Phys. Lett.*, 69(1):73, 1996.
- [LUS⁺97] N.N. Ledentsov, V.M. Usitnov, V.A. Shchukin, P.S. Kopev, Zh.I. Alferov, and D. Bimberg. Quantum dot heterostructures: fabrication, properties, lasers (review). *Semiconductors*, 32(4):343, 1997.

- [LWBW⁺01] Z. Liliental-Weber, M. Benamara, J. Washburn, J.Z. Domagala, J. Bak-Misiuk, E.L. Piner, J.C. Roberts, and S.M. Bedair. Relaxation of InGaN Thin Layers Observed by X-ray and Transmission Electron Microscopy Studies. *J. Electron. Mater.*, 30(4):439, 2001.
- [LWP⁺09] N. Li, S.J. Wang, E.H. Park, Z.C. Feng, H.L. Tsai, J.R. Yang, and I. Ferguson. Suppression of phase separation in InGaN layers grown on lattice-matched ZnO substrates. *J. Cryst. Growth*, 311:4628, 2009.
- [LYH⁺10] Y.D. Lin, S. Yamamoto, C.Y. Huang, C.L. Hsiung, F. Wu, K. Fujito, H. Ohta, J.S. Speck, S.P. DenBaars, and S. Nakamura. High Quality InGaN/AlGaIn Multiple Quantum Wells for Semipolar InGaN Green Laser Diodes. *Appl. Phys. Express*, 3:082001, 2010.
- [MA96] G. Mazzone and M. Vittori Antisari. Structural and magnetic properties of metastable fcc Cu-Fe alloys. *Phys. Rev. B*, 54:441, 1996.
- [Mar05] H. Mariette. Formation of self-assembled quantum dots induced by the Stranski-Krastanow transition: a comparison of various semiconductor systems. *Comptes Rendus Physique*, 6(1):23, 2005.
- [MBR04] B. Maleyre, O. Briot, and S. Ruffenach. MOVPE growth of InN films and quantum dots. *J. Cryst. Growth*, 269:15, 2004.
- [Meh09] T. Mehrrens. *Bestimmung von Segregationsprofilen in $In_xGa_{1-x}As$ -Quantentrögen mittels konventioneller Rastertransmissionselektronenmikroskopie*. Mai 2009. Diplomarbeit, Universität Bremen.
- [Mei06] C. Meißner. *Vom Quantentrop zum p-Kontakt - Wachstumsübergang in GaN-Lichtemittern*. 2006. Diplomarbeit, Universität Bremen.
- [MFSI92] K. Muraki, S. Fukatsu, Y. Shiraki, and R. Ito. Surface segregation of In atoms during molecular beam epitaxy and its influence on the energy levels in InGaAs/GaAs quantum wells. *Appl. Phys. Lett.*, 61(5):557, 1992.
- [Mil] B. Miljevic. Characterization of growth and real structure of nitride based semiconductor devices by use of synchrotron radiation. Universität Karlsruhe, KIT.
- [MKT⁺] B. Miljevic, B. Krause, C. Tessarek, M. Barchuk, R. Hildebrand, S. Figge, V. Holy, D. Hommel, and T. Baumbach. Evolution of InGaN quantum dots during capping. In Präparation.
- [MKT⁺10] B. Miljevic, B. Krause, C. Tessarek, M. Barchuk, R. Hildebrand, S. Figge, V. Holy, D. Hommel, and T. Baumbach. Evolution of InGaN quantum dots during capping. Vortrag, 10. Februar 2010.

- [MMM⁺05] R. Mueller-Mach, G. Mueller, M.R. Krames, H.A. Höpfe, F. Stadler, W. Schnick, T. Juestel, and P. Schmidt. Highly efficient all-nitride phosphor-converted white light emitting diode. *phys. stat. sol. (a)*, 202(9):1727, 2005.
- [MPL⁺09] C. Meissner, S. Ploch, M. Leyer, M. Pristovsek, and M. Kneissel. Indium nitride quantum dot growth in metalorganic vapour phase epitaxy. *J. Cryst. Growth*, 310:4959–4963, 2009.
- [MPPK09] C. Meissner, S. Ploch, M. Pristovsek, and M. Kneissel. Volmer-Weber growth mode of InN quantum dots on GaN by MOVPE. *phys. stat. sol. (c)*, 6:S545, 2009.
- [MTV⁺00] M.V. Maximov, A.F. Tsatsul'nikov, B.V. Volovik, D.A. Bedarev, A.E. Zhukov, A.R. Kovosh, N.A. Maleev, V.M. Usitnov, P.S. Kop'ev, Z.I. Alferov, R. Heitz, N.N. Ledentsov, and D. Bimberg. Quantum dots formed by activated spinodal decomposition of InGa(Al)As alloy on InAs stressors. *Phys. E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 7:326, 2000.
- [MWT⁺00] T. Mano, K. Watanabe, S. Tsukamoto, H. Fujioka, M. Oshima, and N. Koguchi. Fabrication of InGaAs quantum dots on GaAs(001) by droplet epitaxy. *J. Cryst. Growth*, 209(2-3):504, 2000.
- [NdW96] J. Neugebauer and C.G. Van de Walle. Gallium vacancies and the yellow luminescence in GaN. *Appl. Phys. Lett.*, 69:503, 1996.
- [NIS⁺10] Y. Narukawa, M. Ichikawa, D. Sanga, M. Sano, and T. Mukai. White light emitting diodes with super-high luminous efficacy. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 43(35):354002, 2010.
- [Noz01] A.J. Nozik. Spectroscopy and Hot Electron Relaxation Dynamics in Semiconductor Quantum Wells and Quantum Dots. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 52:193, 2001.
- [Noz02] A.J. Nozik. Quantum dot solar cells. *Physica E*, 14:115, 2002.
- [Nye69] J.F. Nye. *Physical Properties of Crystals*. Oxford University Press, London, 1969.
- [OA01] T. Okumura and Y. Akagi. Diffusion coefficient of the order parameter in the early stages of the time evolution of InGaN phase separation. *J. Appl. Phys.*, 90(11):5515, 2001.
- [OBK⁺03] R.A. Oliver, G.A.D. Briggs, M.J. Kappers, C.J. Humphreys, S. Yasin, J.H. Rice, J.D. Smith, and R.A. Taylor. InGaN quantum dots grown by metalorganic vapor phase epitaxy employing a post-growth nitrogen anneal. *Appl. Phys. Lett.*, 83:755, 2003.

- [OBZ⁺10] R.A. Oliver, S.E. Bennett, T. Zhu, D.J. Beesley, M.J. Kappers, D.W. Saxey, A. Cerezo, and C.J. Humphreys. Microstructural origins of localization in InGaN quantum wells. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 43:354003, 2010.
- [OIK00] T. Okumura, M. Isida, and T. Kamikawa. Numerical Study of InGaN Pattern Formation Caused by Phase Separation. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39(3A):1044–1050, March 2000.
- [OKKF89] J.M. Olson, S.R. Kurtz, A.E. Kibbler, and P. Faine. A 27.3% efficient Ga_{0.5}In_{0.5}P/GaAs tandem solar cell. *Appl. Phys. Lett.*, 56(7):623, 1989.
- [ONM72] K. Osamura, K. Nakajima, and Y. Murakami. Fundamental absorption edge in GaN, InN and their alloys. *Solid State Commun.*, 11:617, 1972.
- [ORC⁺03] J.P. O’Neill, I.M. Ross, A.G. Cullis, T. Wang, and P.J. Parbrook. Electron-beam-induced segregation in InGaN/GaN multiple-quantum wells. *Appl. Phys. Lett.*, 83:1965, 2003.
- [Pas02] T. Passow. *Untersuchungen zur Bildung selbstorganisierter Cd/Zn(S)Se-Quantenpunkte*. Mai 2002. Dissertation, Universität Bremen.
- [PCP⁺01] S. Pereira, M.R. Correia, E. Pereira, K.P. O’Donnel, C. Trager-Cowan, F. Sweeney, and E. Alves. Compositional pulling effects in In_xGa_{1-x}N/GaN layers: A combined depth-resolved cathodoluminescence and Rutherford backscattering/channeling study. *Phys. Rev. B*, 64:205311, 2001.
- [PHR⁺04] V. Potin, E. Hahn, A. Rosenauer, D. Gerthsen, B. Kuhn, F. Scholz, A. Dussaigne, B. Damilano, and N. Grandjean. Comparison of the In distribution in InGaN/GaN quantum well structures grown by molecular beam epitaxy and metalorganic vapor phase epitaxy. *J. Cryst. Growth*, 262:145, 2004.
- [PKS⁺07] I.K. Park, M.K. Kwon, S.B. Seo, J.Y. Kim, J.H. Lim, and S.J. Park. Ultraviolet light-emitting diodes with self-assembled InGaN quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, 90:111116, 2007.
- [PLH⁺02] T. Passow, K. Leonardi, H. Heinke, D. Hommel, D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen, J. Seufert, G. Bacher, and A. Forchel. Quantum dot formation by segregation enhanced CdSe reorganization. *J. Appl. Phys.*, 92:6546, 2002.
- [PLLJ10] B.N. Pantha, J. Li, J.Y. Lin, and H.X. Jiang. Evolution of phase separation in In-rich InGaN alloys. *Appl. Phys. Lett.*, 96:232105, 2010.
- [PPC10] I.K. Park, S.J. Park, and C.J. Choi. Growth of height-controlled InGaN quantum dots on GaN. *J. Cryst. Growth*, 312:2065, 2010.

- [Pre06] A. Pretorius. *Transmission electron microscopy of GaN based, doped semiconductor heterostructures*. 2006. Dissertation, Universität Bremen.
- [Pur46] E.M. Purcell. Spontaneous emission probabilities at radio frequencies. *Phys. Rev.*, 69:681, 1946.
- [PW97] J. P. Perdew and Y. Wang. Pair-distribution function and its coupling-constant average for the spin-polarized electron gas. *Phys. Rev. B*, 56(11):7018–7021, September 1997.
- [PYK⁺06] A. Pretorius, T. Yamaguchi, C. Kübel, R. Kröger, D. Hommel, and A. Rosenauer. TEM analyses of wurtzite InGaN islands grown by MOVPE and MBE. *phys. stat. sol. (c)*, 3(6):1679–1682, June 2006.
- [PYK⁺08] A. Pretorius, T. Yamaguchi, C. Kübel, R. Kröger, D. Hommel, and A. Rosenauer. Structural investigation of growth and dissolution of In_xGa_{1-x}N nano-islands grown by molecular beam epitaxy. *J. Cryst. Growth*, 310:748–756, 2008.
- [QAB⁺09] D. Queren, A. Avramescu, G. Bruederl, A. Breidenassel, M. Schillgalies, S. Lutgen, and U. Strauss. 500 nm electrically driven InGaN based laser diodes. *Appl. Phys. Lett.*, 94:081119, 2009.
- [RBNS06] A.E. Romanov, T.J. Baker, S. Nakamura, and J.S. Speck. Strain-induced polarization in wurtzite III-nitride semipolar layers. *J. Appl. Phys.*, 100:023522, 2006.
- [RGGJ10] S. Ritter, P. Gartner, C. Grieb, and F. Jahnke. Emission properties and photon statistics of a single quantum dot laser. *Optics Express*, 18(10):9909, 2010.
- [RK04] T. J. Rinke and C. Koch. *MicroChemicals - Lithographie Processes*, 2004.
- [RM05] M.A. Reshchikov and H. Morkoc. Luminescence properties of defects in GaN. *J. Appl. Phys.*, 97:061301, 2005.
- [RMM⁺11] A. Rosenauer, T. Mehrkens, K. Müller, K. Gries, M. Schowalter, P.V. Satyam, S. Bley, C. Tessarek, D. Hommel, K. Sebald, M. Seyfried, J. Gutowski, A. Avramescu, K. Engl, and S. Lutgen. Composition mapping in InGaN by Scanning Transmission Electron Microscopy. *Ultramicroscopy*, (in press), 2011.
- [Rod07] C. Roder. *Analyse struktureller Eigenschaften von GaN mittels hochauflösender Röntgenbeugung bei variabler Meßtemperatur*. Februar 2007. Dissertation, Universität Bremen.
- [ROR⁺04] J.H. Rice, R.A. Oliver, J.W. Robinson, J.D. Smith, R.A. Taylor, G.A.D. Briggs, M.J. Kappers, C.J. Humphreys, and S. Yasin. InGaN quantum

- dots grown by MOVPE via a droplet epitaxy route. *Physica E*, 21:546–550, 2004.
- [RRN⁺00] P. Ramvall, P. Riblet, S. Nomura, Y. Aoyagi, and S. Tanaka. Optical properties of GaN quantum dots. *J. Appl. Phys.*, 87(8):3883, 2000.
- [RTGM⁺05] M.d.P. Rodriguez-Torres, A.Y. Gorbachev, V.A. Mishurnyi, F.d. Anda, V.H. Mendez-Garcia, R. Asomoza, Y. Kudriavtsev, and I.C. Hernandez. Investigation of the “composition-pulling of lattice-latching” effect in LPE. *J. Cryst. Growth*, 277:138, 2005.
- [SA99] T. Saito and Y. Arakawa. Atomic structure and phase stability of In(x)Ga(1-x)N random alloys calculated using a valence-force-field method. *Phys. Rev. B*, 60:1701, 1999.
- [SAW⁺10] S. Schwaiger, I. Argut, T. Wunderer, R. Rösch, F. Lipski, J. Biskupek, U. Kaiser, and F. Scholz. Planar semipolar (10-10) GaN on (11-23) sapphire. *Appl. Phys. Lett.*, 96:231905, 2010.
- [SDMR96] R. Singh, D. Doppalapudi, T.D. Moustakas, and L.T. Romano. Phase separation in InGaN thick films and formation of InGaN/GaN double heterostructures in the entire alloy composition. *Appl. Phys. Lett.*, 70:1089, 1996.
- [SK39] I.N. Stranski and V.L. Krastanov. Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander. *Akad. Wiss. Lit. Mainz Abh. Math. Naturwiss. Kl.*, 146:797, 1939.
- [SKB⁺03] T.M. Smeeton, M.J. Kappers, J.S. Barnard, M.E. Vickers, and C. J. Humphreys. Electron-beam-induced strain within InGaN quantum wells: False indium “cluster” detection in the transmission electron microscope. *Appl. Phys. Lett.*, 83:5419, 2003.
- [SLG⁺06] K. Sebald, H. Lohmeyer, J. Gutowski, T. Yamaguchi, and D. Hommel. Micro-photoluminescence studies of InGaN/GaN quantum dots up to 150 K. *phys. stat. sol. (b)*, 243(7):1661–1664, June 2006.
- [SLG⁺08] K. Sebald, H. Lohmeyer, J. Gutowski, C. Kruse, T. Yamaguchi, A. Gust, D. Hommel, J. Wiersig, N. Baer, and F. Jahnke. Wide-Bandgap Quantum Dot Based Microcavity VCSEL Structures. *Advances in Solid State Physics*, 47:29, 2008.
- [SLT⁺08] C.B. Soh, W. Liu, J.H. Teng, S.Y. Chow, S.S. Ang, and S.J. Chua. Cool white III-nitride light emitting diodes based on phosphor-free indium-rich InGaN nanostructures. *Appl. Phys. Lett.*, 92:261909, 2008.
- [SQ61] W. Shockley and H.J. Queisser. Detailed Balance Limit of Efficiency of p-n Junction Solar Cells. *J. Appl. Phys.*, 32(3):510, 1961.

- [SSK⁺10] K. Sebald, M. Seyfried, J. Kalden, J. Gutowski, H. Dartsch, C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge, C. Kruse, and D. Hommel. Optical properties of InGaN quantum dots in monolithic pillar microcavities. *Appl. Phys. Lett.*, 96(25):251906, 2010.
- [Str72] G. B. Stringfellow. The importance of lattice mismatch in the growth of Ga_xIn_{1-x}P epitaxial growth. *J. Appl. Phys.*, 43:3455, 1972.
- [Str99] G.B. Stringfellow. *Organometallic Vapor Phase Epitaxy: Theory and Practice, 2nd Edition*. Academic Press, Bosten, 1999.
- [Str10] G.B. Stringfellow. Microstructures produced during the epitaxial growth of InGaN alloys. *J. Cryst. Growth*, 312:735–749, 2010.
- [SvSCC87] A. Sher, M. van Schilfgaarde, A.B. Chen, and W. Chen. Quasichemical approximation in binary alloys. *Phys. Rev. B*, 36:4279, 1987.
- [Tes06] C. Tessarek. *Prozessoptimierung zur Herstellung von Injektionsstreifen einer Galliumnitrid-basierten Ridge-Waveguide-Laserdiode mittels chemisch unterstütztem Ionenstrahlätzen*. Januar 2006. Studienarbeit, Universität Bremen.
- [Tes07] C. Tessarek. *Metallorganische Gasphasenepitaxie von InGaN Quantenpunkt Lichtemitter-Strukturen*. Januar 2007. Diplomarbeit, Universität Bremen.
- [TFA⁺11] C. Tessarek, S. Figge, T. Aschenbrenner, S. Bley, A. Rosenauer, M. Seyfried, J. Kalden, K. Sebald, J. Gutowski, and D. Hommel. Strong phase separation of strained In_xGa_{1-x}N layers due to spinodal and binodal decomposition: Formation of stable quantum dots. *Physical Review B*, 83:115316, 2011.
- [TFS⁺00] L.K. Teles, J. Furthmüller, L.M. Scolfaro, J.R. Leite, and F. Bechstedt. First-principles calculations of the thermodynamic and structural properties of strained In_xGa_{1-x}N and Al_xGa_{1-x}N alloys. *Phys. Rev. B*, 62(4):2475, 2000.
- [The00] ThermoMicroscopes. User's Guide to AutoProbe CP - Part I-III, 2000.
- [Tho46] G.W. Thomson. The Antoine Equation for Vapor-Pressure Data. *Chemical Reviews*, 38(1):1–39, 1946.
- [TJC⁺10] R.A. Taylor, A.F. Jarjour, D.P. Collins, M.J. Holmes, R.A. Oliver, M.J. Kappers, and C.J. Humphreys. Cavity Enhancement of Single Quantum Dot Emission in the Blue. *Nanoscale Res. Lett.*, 5(3):608, 2010.
- [TLS⁺10] A.F. Tsatsulnikov, W.V. Lundin, A.V. Sakharov, E.E. Zavarin, S.O. Usov, A.E. Nikolaev, N.V. Kryzhanovskaya, M.A. Synitsin, V.S. Sizov, A.L. Zakgeim, and M.N. Mizerov. A Monolithic White LED with an

- Active REgion Based on InGaN QWs Separated by Short-Period InGaN/GaN Superlattices. *Semiconductors*, 44(6):837, 2010.
- [TSA99] K. Tachibana, T. Someya, and Y. Arakawa. Nanometer-scale InGaN self-assembled quantum dots grown by metalorganic chemical vapor deposition. *Appl. Phys. Lett.*, 74:383, 1999.
- [TTC⁺04] R.C. Tu, C.J. Tun, C.C. Chuo, B.C. Lee, C.E. Tsai, T.C. Wang, J. Chi, C.P. Lee, and G.C. Chi. Ultra-high-density InGaN quantum dots grown by metalorganic chemical vapor deposition. *Jap. J. Appl. Phys.*, 43(2B):L264, 2004.
- [TTS⁺02] A. Tabata, L.K. Teles, L.M.R. Scolfaro, J.R. Leite, A. Kharchenko, T. Frey, D.J. As, D. Schikora, and K. Lischka. Phase separation suppression in InGaN epitaxial layers due to biaxial strain. *Appl. Phys. Lett.*, 80(5):769, 2002.
- [TYFH09] C. Tessarek, T. Yamaguchi, S. Figge, and D. Hommel. Improved capping layer growth towards increased stability of InGaN quantum dots. *Phys. Status Solidi C*, 6(S2):S561, 2009.
- [TYIH01] T. Takayama, M. Yuri, K. Itoh, and J.S. Harris. Theoretical predictions of unstable two-phase regions in wurtzite group-III-nitride-based ternary and quaternary material systems using modified valence force field model. *J. Appl. Phys.*, 90(5):2358, 2001.
- [Veg21] L. Vegard. Die Konstitution der Mischkristalle und die Raumfüllung der Atome. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei*, 5(1):17–26, Januar 1921.
- [VM03] I. Vurgaftman and J.R. Meyer. Band parameters for nitrogen-containing semiconductors. *J. Appl. Phys.*, 94(6):3675–3696, 2003.
- [Vog99] H. Vogel. *Gerthsen Physik*. Springer Verlag Berlin Heidelberg, 1999.
- [WDF⁺98] F. Widmann, B. Daudin, G. Feuillet, Y. Samson, J.L. Rouviere, and N. Pelekanos. Growth kinetics and optical properties of self-organized GaN quantum dots. *J. Appl. Phys.*, 83(12):7618–7624, 1998.
- [WEA⁺98] X.H. Wu, C.R. Elsass, A. Abare, M. Mack, S. Keller, P.M. Petroff, S.P. DenBaars, J.S. Speck, and S.J. Rosner. Structural origin of V-defects and correlation with localized excitonic centers in InGaN/GaN multiple quantum wells. *Appl. Phys. Lett.*, 72:692, 1998.
- [Wri97] A. F. Wright. Elastic properties of zinc-blende and wurtzite AlN, GaN and InN. *J. appl. Phys.*, 82(6):2833–2839, September 1997.
- [WSF⁺06] R.V. Wang, G.B. Stephenson, D.D. Fong, F. Jiang, P.H. Fuoss, J.A. Eastman, S.K. StTreiffer, K. Latifi, and C. Thompson. Real time x-ray observation of lattice pulling during growth of epitaxial Pb(Zr,Ti)O₃ films. *Appl. Phys. Lett.*, 89:221914, 2006.

- [WWB⁺08] Q. Wang, T. Wang, J. Bai, A.G. Cullis, P.J. Parbrook, and F. Rana-
li. Influence of annealing temperature on optical properties of InGaN
quantum dot based light emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.*, 93:081915,
2008.
- [WWP⁺07] Q. Wang, T. Wang, P.J. Parbrook, J. Bai, and A.G. Cullis. The influence
of a capping layer on optical properties of self-assembled InGaN quantum
dots. *J. Appl. Phys.*, 101:113520, 2007.
- [WWY⁺02] J. Wu, W. Walukiewicz, K.M. Yu, J.W. Ager, E.E. Haller, H. Lu, W.J.
Schaff, Y. Saito, and Y. Nanishi. Unusual properties of the fundamental
band gap of InN. *Appl. Phys. Lett.*, 80(21):3967, 2002.
- [XSM⁺10] F.J. Xu, B. Shen, Z.L. Miao, J. Song, Z.J. Yang, G.Y. Zhang, X.P. Hao,
B.Y. Wang, X.Q. Shen, and H. Okumura. Different origins of the yellow
luminescence in as-grown high-resistance GaN and unintentional-doped
GaN films. *J. Appl. Phys.*, 107:023528, 2010.
- [YCY⁺07] A. Yoshikawa, S.B. Che, W. Yamaguchi, H. Saito, X.Q. Wang, Y. Is-
hitani, and E.S. Hwang. Proposal and achievement of novel structure
InN/GaN multiple quantum wells consisting of 1 ML and fractional mo-
nolayer InN wells inserted in GaN matrix. *Appl. Phys. Lett.*, 90:073101,
2007.
- [YDT⁺06] T. Yamaguchi, J. Dennemarck, C. Tessarek, K. Sebal, S. Gangopadhyay,
J. Falta, J. Gutowski, S. Figge, and D. Hommel. Two-Step Growth of
InGaN QDs and application to light emitters. *phys. stat. sol. (c)*, 4:2407,
2006.
- [YEG⁺06] T. Yamaguchi, S. Einfeldt, S. Gangopadhyay, A. Pretorius, A. Rosenauer,
J. Falta, and D. Hommel. Two to three dimensional transitions of InGaN
and the impact of GaN overgrowth. *phys. stat. sol. (c)*, 3(6):1396–1399,
June 2006.
- [Yof01] A.D. Yoffe. Semiconductor quantum dots and related systems: electronic,
optical, luminescence and related properties of low dimensional systems.
Advances in Physics, 50(1):1, 2001.
- [YSL⁺06] T. Yamaguchi, K. Sebal, H. Lohmeyer, S. Gangopadhyay, J. Falta,
J. Gutowski, S. Figge, and D. Hommel. A novel approach for the growth
of InGaN quantum dots. *phys. stat. sol. (c)*, 3:3955, 2006.
- [ZBB10] M. Zhanga, A. Banerjeea, and P. Bhattacharya. High perfor-
mance tunnel injection InGaN/GaN quantum Dot light emitting
diodes emitting in the green ($\lambda=495$ nm). *J. Cryst. Growth*,
(doi:10.1016/j.jcrysgro.2010.12.038), 2010.
- [ZBG10] M. Zhang, P. Bhattacharya, and W. Guo. InGaN/GaN self-organized
quantum dot green light emitting diodes with reduced efficiency droop.
App. Phys. Lett., 97:011103, 2010.

-
- [Zel03] C. M. Zellweger. *Realization of GaN-based Light Emitting Devices*. 2003. Dissertation, École Polytechnique Fédérale de Lausanne.
- [ZZJ⁺06] D.G. Zhao, J.J. Zhu, D.S. Jiang, Hui Yang, J.W. Liang, X.Y. Li, and H.M. Gong. Parasitic reaction and its effect on the growth rate of AlN by metalorganic chemical vapor deposition. *J. Cryst. Growth*, 289(1):72, 2006.

Probenverzeichnis

Kapitel/ Abschnitt	Probe/Bezeichnung/ Untersuchung	Proben- nummer
3.2	A	g2021
	B	g2040
	C	g1836
	D	g1837
	pure InN-Schicht	g2083
	Synchrotronmessung destruktive PL	g1724
3.3	E	g1527
	F	g1652
	G	g1530
	H	g1538
	I	g1553
3.4	AFM/XRD/PL	g1555
	600 °C	g1539
	650 °C	g1530
	700 °C	g1715
3.5	600 °C	g1651
	650 °C	g1603
3.6	eine NS+FS-Lage	g1116
	drei NS+FS-Lagen	g1117
4.1	J	g2200
	K	g2201
4.2	700 °C	g1539
	750 °C	g1541
	820 °C	g1551
4.3	L	g1645
	M	g1716
4.4	3,5 nm	g1761
	7 nm; L	g1645
	10 nm	g1702
4.5	In/(In+Ga)=0	g1537
	In/(In+Ga)=0,09	g1530
	In/(In+Ga)=0,21	g1529
4.6.1	N ₂	g0888
	H ₂ /N ₂	g1117
	H ₂	g0893
4.6.2	N	g0893
	O	g0906
	P	g1409
	AFM InGaN-Probe	g1464
	AFM GaN-Puffer	g2107
	NT-GaN	g1529
	HT-GaN	g1552

Kapitel/ Abschnitt	Probe/Bezeichnung/ Untersuchung	Proben- nummer
5.1.1	10 s	g1722
	14 s	g1723
	18 s	g1725
	8 s	g1537
	5 s	g1806
5.1.2	22 s	g1726
	eine QP-Lage	g1645
5.1.3	drei QP-Lagen	g1647
	sieben QP-Lagen	g1653
	sieben QP-Lagen-LED	g1654
5.1.3	eine QP-Lage-LED	g1722
	R	g1910
5.2	S	g1909
	sieben QP-Lagen-LED	g1654
	drei QP-Lagen-LD	g1655
5.3.1	sieben QP-Lagen-LD	g1657
	QP-EL	g1723
5.3.2	QPe in Mikrokavität	g1863
5.3.3	QPe in Mikrokavitaet: EL	g1994
5.4.1	T	g1972
	U	g1978
	V	g2039
5.4.2	kein Übergang	g1723
	50 nm Übergang	g1869
	100 nm Übergang	g1870
5.4.3	W	g1817
	X	g1834
	Y	g1854
	Z	g1934
5.4.4	W	g1817
	Ψ	g1840
	Φ	g1839
5.4.5	ohne GaN-Deckschicht	g2166
	mit GaN-Deckschicht	g2165
6.1	10 s	g1722
	14 s	g1723
	18 s	g1725
	22 s	g1726
	sieben QP-Lagen-LED	g1654
	80 nm InGaN	g2181

Hinweis: QP: Quantenpunkt

Liste der Veröffentlichungen

Veröffentlichungen als Erstautor

- C. Tessarek, T. Yamaguchi, S. Figge und D. Hommel: Improved capping layer growth towards increased stability of InGaN quantum dots. *phys. stat. sol. (c)* **6**, S561 (2009)
- C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge, S.Bley, A. Rosenauer, M. Seyfried, J. Kalden, J. Gutowski und D. Hommel: Strong phase separation of strained $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ layer due to spinodal and binodal decomposition: Formation of stable quantum dots. *Phys. Rev. B* **83**, 115316 (2011)

Veröffentlichungen als Coautor

- J. Dennemarck, C. Tessarek, S. Figge und D. Hommel: Deep ridge GaN cw-laser diodes. *phys. stat. sol. (c)* **4**, 78 (2007)
- T. Yamaguchi, J. Dennemarck, C. Tessarek, K. Sebald, S. Gangopadhyay, J. Falta, J. Gutowski, S. Figge und D. Hommel: Two-step growth of InGaN quantum dots and application to light emitters. *phys. stat. sol. (c)* **4**, 2407 (2007)
- K. Sebald, H. Lohmeyer, S. Herlufsen, J. Kalden, J. Gutowski, C. Tessarek, T. Yamaguchi und D. Hommel. Optical properties of single and multi-layer InGaN quantum dots. *phys. stat. sol. (c)* **5**, 1883 (2008)
- C. Kruse, S. Figge, H. Dartsch, C. Tessarek, D. Hommel, H. Lohmeyer, J. Kalden, K. Sebald und J. Gutowski: Integration of InGaN quantum dots into nitride-based microcavities. *phys. stat. sol. (c)* **5**, 2320, (2008)
- T. Aschenbrenner, C. Tessarek, S. Figge und D. Hommel: Incorporation of QD ensembles in separate confinement heterostructures for long wavelength emission. *phys. stat. sol. (c)* **6**, S921 (2009)
- K. Sebald, J. Kalden, S. Herlufsen, H. Lohmeyer, C. Tessarek, T. Yamaguchi, S. Figge, D. Hommel und J. Gutowski: Influence of piezoelectric fields on excitonic complexes in InGaN quantum dots. *phys. stat. sol. (c)* **6**, (2009)
- J. Kalden, K. Sebald, J. Gutowski, C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge und D. Hommel: Optical properties and modal gain of InGaN quantum dot stacks. *phys. stat. sol. (c)* **6**, S590 (2009)

- C. Schulz, T. Schmidt, J.I. Flege, N. Berner, C. Tessarek, D. Hommel und J. Falta: Oxide removal from GaN(0001) surfaces. *phys. stat. sol. (c)* **6**, S305 (2009)
- J. Kalden, C. Tessarek, K. Sebald, S. Figge, C. Kruse, D. Hommel und J. Gutowski: Electroluminescence from isolated single indium gallium nitride quantum dots up to 150 K. *phys. stat. sol. (a)* **207**, 1428 (2010)
- J. Kalden, C. Tessarek, K. Sebald, S. Figge, C. Kruse, D. Hommel und J. Gutowski: Electroluminescence from a single InGaN quantum dot in the green spectral region up to 150 K. *Nanotechnology* **21**, 015204 (2010)
- K. Sebald, M. Seyfried, J. Kalden, J. Gutowski, H. Dartsch, C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge, C. Kruse und D. Hommel: Optical properties of InGaN quantum dots in monolithic pillar microcavities. *Appl. Phys. Lett.* **96**, 251906 (2010)
- H. Dartsch, C. Tessarek, M. Fandrich, T. Aschenbrenner, S. Figge, C. Kruse, D. Hommel, M. Schowalter und A. Rosenauer: Electroluminescence from InGaN quantum dots in a monolithically grown GaN/AlInN cavity. *J. Crystal Growth* **320**, 28 (2011)
- M. Seyfried, J. Kalden, K. Sebald, C. Kruse, S. Figge, A. Gust, C. Tessarek, H. Dartsch, D. Hommel, M. Florian, F. Jahnke und J. Gutowski: Optical properties of wide-bandgap monolithic pillar microcavities with different geometries. *phys. stat. sol. (c)* **8**, 1246 (2011)
- A. Rosenauer, T. Mehrstens, K. Müller, K. Gries, M. Schowalter, P.V. Satyam, S. Bley, C. Tessarek, D. Hommel, K. Sebald, M. Seyfried, J. Gutowski, A. Avramescu, K. Engl und S. Lutgen: Composition mapping in InGaN by scanning transmission electron microscopy. *Ultramicroscopy*, im Druck (2011)
- K. Sebald, H. Lohmeyer, J. Kalden, M. Seyfried, S. Figge, C. Kruse, H. Dartsch, C. Tessarek, D. Hommel und J. Gutowski: Microphotoluminescence studies on GaN-based airpost pillar microcavities containing InGaN quantum wells and quantum dots. *phys. stat. sol.*, eingereicht
- S. Figge, C. Tessarek, T. Aschenbrenner und D. Hommel: InGaN quantum dot growth in the limits of Stranski-Krastanov and spinodal decomposition. *phys. stat. sol.*, eingereicht

Vorträge und Poster bei Tagungen und Konferenzen

- C. Tessarek, T. Yamaguchi, J. Dennemarck, S. Figge und D. Hommel. Vortrag: Growth condition dependence of MOVPE InGaN quantum dots. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft (DPG) 2007 in Regensburg
- C. Tessarek, S. Figge, D. Hommel, J. Kalden, K. Sebald und J. Gutowski. Vortrag: Dependence of InGaN quantum dot formation on two-step growth parameters. Frühjahrstagung der DPG 2008 in Berlin

- C. Tessarek, T. Yamaguchi, T. Aschenbrenner, S. Figge, D. Hommel, J. Kalden, K. Sebald, J. Gutowski, A. Pretorius und A. Rosenauer. Vortrag: Improved capping layer growth towards increased stability of InGaN quantum dots. International Workshop on Nitrides (IWN) 2008 in Montreux, Schweiz
- C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge, J. Kalden, K. Sebald, J. Gutowski und D. Hommel. Vortrag: Control of MOVPE InGaN quantum dot density and emission wavelength and applications in light emitting structures. Frühjahrstagung der DPG 2009 in Dresden
- C. Tessarek, J. Ebeling, T. Aschenbrenner, S. Figge, D. Hommel, J. Kalden, J. Gutowski, A. Pretorius und A. Rosenauer. Eingeladener Vortrag: InGaN quantum dots as active material in light emitting structures. 18. „Jaszowiec“ Konferenz 2009 in Krynica-Zdroj, Polen
- C. Tessarek, H. Dartsch, T. Aschenbrenner, S. Figge, J. Kalden, K. Sebald, J. Gutowski und D. Hommel. Poster: Growth of InGaN quantum dots by strain dependent spinodal decomposition and its applications in light emitting devices. International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-8) 2009 in Jeju, Korea
- C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge und D. Hommel. Vortrag: Spinodal and binodal decomposition of a thin InGaN layer grown on GaN. Frühjahrstagung der DPG 2010 in Regensburg

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die Arbeit ohne unerlaubte fremde Hilfe angefertigt habe, dass ich weiterhin keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutze und die den benutzten Werken wörtlich oder inhaltlich entnommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Bremen, 27. Mai 2011

Christian Tessarek

Danksagung

Im Folgenden möchte ich meinen Dank aussprechen an:

...Herrn Prof. Hommel, der mir die Chance gegeben hat, in seiner Arbeitsgruppe diese Doktorarbeit durchzuführen. Mir wurde eine sehr freie und selbständige Arbeitsweise gewährt. Er hat eine Arbeitsgruppe mit einer super Besetzung und eine sehr gute Arbeitsatmosphäre geschaffen.

...Herrn Dr. Thomas Schmidt für die Erstellung des Zweitgutachtens mit der entsprechenden zeitlichen Flexibilität.

...Carsten Kruse und Stephan Figge für die vielen Diskussionen und unschlagbaren Kommentare und Hilfen, wenn ich selber mal nicht weiter wusste.

...Tomohiro Yamaguchi, der mich in das Wachstum von InGaN eingeführt hat.

...Arne Gust, der bei Rechnerfragen immer eine Lösung parat hatte.

...Timo Aschenbrenner, der auf mich aufgepasst hat, wenn ich bis in die Abendstunden die MOVPE besetzt habe und für die wirklich sehr ausführlichen Korrekturvorschläge.

...Heiko Dartsch und Hanno Kröncke, die sich um das Wohl der MOVPE gekümmert haben.

...die Technikerriege um Sonja Hesselmann, Kalle Vennen-Damm und Torben Rohbeck für die Arbeiten im Technologielabor und am REM

...Gisela Schüttrup für die Hilfe bei den von mir ungeliebten Verwaltungskramarbeiten.

...meinen Stubenkameraden Gerd Kunert und Jakob Ebeling für die coole Büroatmosphäre.

...allen weiteren Mitgliedern der AG, die gekommen und gegangen sind.

...der AG Rosenauer und besonders bei Herrn Prof. Rosenauer, der persönlich einige Proben untersucht hat und mir mit den Ergebnissen unglaublich weitergeholfen hatte.

...der AG Gutowski um Kathrin Sebald, Joachim Kalden und Moritz Seyfried für die gute Zusammenarbeit und die optischen Untersuchungen.

Kurz vor dem Ende nochmal ein großes Danke an die gesamte Arbeitsgruppe und alle, die ich vergessen habe: hat echt Spaß gemacht mit Euch zusammenzuarbeiten.

Und zum Abschluss noch ein dickes Dankeschön an meine Familie, die irgendwie mit daran Schuld ist, dass es so weit gekommen ist. Und schließlich sieben liebe Dankeschön an meine Anja, der ich immer die wildesten Theorien und die neuesten Ergebnisse mitteilen konnte. Und das Schöne dabei: Du hast immer zugehört!