Effizienz von GaInN-Leuchtdioden: Struktur aktiver Schichten unter dem Einfluss substratinduzierter Defekte

DISSERTATION

zur
Erlangung des Doktorgrades
der
Fakultät für Mathematik und Physik
der
Albert-Ludwigs-Universität Freiburg im Breisgau

vorgelegt von

Markus Maier

Dekan:	Prof. Dr. K. Königsmann
Referent:	Prof. Dr. J. Wagner
Koreferent:	Prof. Dr. M. Moseler

Tag der mündlichen Prüfung und Verkündung: 21.04.2010

Teilergebnisse dieser Arbeit waren Gegenstand verschiedener Veröffentlichungen und Tagungsbeiträge, die auf Seite 149 aufgeführt sind.

meinem Vater Wilfried Maier

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis vi

1. Einleitung 1

2. Physikalische Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride 9
2.1. Kristallstruktur 9
2.2. Polarisation 12
2.3. Optische und elektronische Eigenschaften 15

3. Epitaxie und Charakterisierung von Leuchtdioden 19
3.1. Das Wachstum von GaN 19
3.1.1. Kristallzucht und Wachstum von GaN-Substraten 19
3.1.2. Epitaktisches Wachstum von Gruppe-III-Nitriden 24
3.1.3. Herstellung der Proben 26
3.2. Strukturelle und chemische Analyse 32
3.2.1. Hochaufgelöste Röntgenbeugung 32
3.2.2. Sekundärionen-Massenspektrometrie 34
3.2.3. Bestimmung der Versetzungsdichte 35
3.2.4. Substratabhängige Versetzungsdichten 36
3.3. Optische und elektrooptische Charakterisierung 36
3.3.1. Einführung in Leistungen und Effizienzen bei Leuchtdioden . . 37
3.3.2. Photolumineszenz-Spektroskopie 38
3.3.3. Elektrolumineszenz-Spektroskopie 39

4. Optimierung des Wachstums auf Saphir-Substrat 43
4.1. Schichtenfolge der Standard-Leuchtdiodenstruktur 43
4.2. Nukleationsschicht und Übergang zum Wachstum des Puffers 44
4.3. Variation des Trägergases zur Erhöhung des In-Einbaus für langwellige GaInN-Leuchtdioden 48
4.4. Einstellung des Mg-Dotierprofils 52
4.5. Optische Interferenz und Resonanzeffekte im p-Kontaktbereich 58
4.6. Einfluss der Breite des p-GaN-Spacers 59
4.7. Zusammenfassung 61

5. Wachstum auf Substraten mit reduzierter Defektdichte 63
5.1. Übergang von Saphir zu ULD-Templates und freistehenden GaN-Substraten 63
5.1.1. Wachstum auf ULD-Template 64
5.1.2. Wachstum auf LPE-Template 64

5.1.3. Wachstum auf FS-GaN 67
5.2. Photolumineszenzspektroskopie der LED-Strukturen im Vergleich . . 69
5.3. Optimierung der Pufferschicht beim Wachstum auf FS-GaN 70
5.4. Zusammenfassung 73

6. Effizienz von Leuchtdioden 75
6.1. Externe Quanteneffizienz 75
6.2. Optische Extraktionseffizienz 75
6.2.1. Optische Extraktionseffizienz beim Einsatz von FS-GaN-Substraten 78
6.2.2. Lithographischer Mesa-LED-Prozess 81
6.2.3. Industrieller Dünnfilm-Flip-Chip-LED-Prozess 83
6.3. Bestimmung der internen Quanteneffizienz 86
6.3.1. Ratengleichung der Ladungsträgerrekombination 87
6.3.2. Analyse der Lichtleistungs-Strom-Kennlinie 89
6.3.3. Temperaturabhängige Photolumineszenz 92
6.3.4. Vergleich der Methoden 94
6.4. Efficiency Droop – Das nicht-thermische Überrollen 95
6.5. Zusammenfassung 97

7. Einfluss des Substrattyps auf LED-Charakteristiken 99
7.1. Allgemeine Betrachtungen 99
7.1.1. Einfluss von Defekten auf die Quanteneffizienz 100
7.1.2. Ladungsträgerrekombination in der Verarmungszone 102
7.2. LED-Strukturen mit variiertem In-Gehalt: Wellenlängenserie 104
7.2.1. Konstante Stromdichte 104
7.2.2. Stromdichteabhängigkeit der Quanteneffizienz 112
7.3. Vergrößerung des optisch aktiven Volumens: Quantenfilm-Breiten-Serie 116
7.3.1. Kristallqualität der Proben 117
7.3.2. Elektrolumineszenz-Charakteristik 119
7.3.3. Modell zur Erklärung der experimentell gefundenen Abhängigkeiten 132
7.3.4. Grenzen des Modells 135
7.4. Zusammenführung der Ergebnisse 139

8. Zusammenfassung 141

A. Anhang 143
A.1. Transmission und Absorption in dicken GaN-Schichten 143
A.2. Verschiedene FS-GaN-Substratchargen 145
A.3. Zuordnung von Epitaxienummern zu Abbildungen 148

Publikationen 149

Literaturverzeichnis 153

Danksagung 169

1. Einleitung

Die EU verbietet Glühlampen...

So oder ähnlich lauteten Mitte 2009 zahlreiche Schlagzeilen in deutschen Zeitungen. Hintergrund war der Plan der Europäischen Union, tatsächlich nach und nach die herkömmlichen Glühbirnen (eigentlich: Glühlampe) durch Energiesparlampen zu ersetzen. So sind Glühlampen mit einer Leistung von 100 Watt schon seit September 2009 aus dem Handel verschwunden, bei den anderen Leistungsstufen wird dies bis spätestens September 2012 geschehen [1]. Verständlich ist dies, da die Glühlampe in ihrer prinzipiellen Form 1879 von Thomas Edison erfunden wurde und seit der Mitte des vergangenen Jahrhunderts keine wesentliche Weiterentwicklung mehr stattfand. Mit einem Wirkungsgrad im sichtbaren Spektralbereich von 3 - 5% und einer Lebensdauer von ca. 1000 Stunden ist die Glühlampe in Zeiten von knapper und damit teurer werdenden Energieressourcen ein längst überkommenes Produkt.
Für die Allgemeinbeleuchtung im privaten wie im professionellen Bereich stehen schon jetzt energiesparendere Alternativen zur Verfügung, die den Glühlampen sowohl in Wirkungsgrad als auch in Lebensdauer deutlich überlegen sind.
Die wichtigsten Kennzahlen von Lichtquellen sind der Leistungswirkungsgrad η_{WPE} (engl.: „wall plug efficiency, WPE“), welcher das Verhältnis von emittierter optischer Leistung zu aufgenommener elektrischer Leistung beschreibt, und die Lichtausbeute η_{LE} (engl.: „luminous efficacy“), welche den emittierten Lichtstrom im Verhältnis zur aufgenommenen elektrischen Leistung beschreibt. Die Lichtausbeute wird in Lumen pro Watt (lm/W) gemessen und bezieht damit die physiologische Hellempfindlichkeit des menschlichen Auges mit ein. Das theoretische Maximum der Lichtausbeute beträgt 683 lm/W für monochromatisches Licht bei 555 nm[1] und einem Wirkungsgrad der Lichtquelle von 100%. Für ein tageslichtähnliches kontinuierliches Weißlicht-Spektrum beträgt das Limit ca. 240 lm/W.
Die für thermische Erzeugung von sichtbarem Licht relativ niedrige Temperatur der Glühwendel von etwa 2700 K in Glühbirnen führt zu einem geringen Anteil an sichtbarem Licht im emittierten Spektrum und damit zu einer Lichtausbeute von nur etwa 10 lm/W. Durch Zugabe von Halogenen wie Jod oder Brom zum Füllgas läßt sich die Temperatur der Glühwendel um einige 100 K steigern, was Lichtausbeuten bis 25 lm/W ermöglicht. Deutlich energiesparender sind Leuchtstofflampen und Kompaktleuchtstofflampen (engl.: „compact fluorescent“, CFL) oder Energiesparlampen, die nicht auf dem Prinzip der thermischen Strahlung basieren, sondern auf der Gasentladung in einem Niederdruckplasma. Hierbei wird in einer Glasröhre

[1] Dies gilt für das helladaptierte menschliche Auge, für das Nachtsehen beträgt das theoretische Maximum 1699 lm/W bei 507 nm.

Leuchtmittel	**max. Lichtausbeute** lm/W	**CRI**	**CCT** K
Sonnenlicht	80	100	5800
Glühlampe (Halogen-)	15 (25)	100	2200 - 3000
Leuchtstofflampe	105 (75*)	> 95	2700 - 8000
Natriumdampflampe	200	47	2000
Leuchtdiode	249 (161*)	> 90	3000 - 6500

Tabelle 1.1: *Übersicht über verschiedene zur Beleuchtung angewendete Leuchtmittel, nach [2]. Die mit * markierten Werte stehen für Lichtausbeuten am Arbeitspunkt.*

ein (Niederdruck-)Quecksilberdampfplasma gezündet, welches ultraviolette (UV) Strahlung aussendet. Die Glasröhre ist mit einem oder mehreren Leuchtstoffen beschichtet, die die UV-Strahlung absorbieren und über Fluoreszenz in sichtbares Licht umwandeln. Da die Glasröhre für Energiesparlampen kompakt geformt ist, ist die erzielbare Lichtausbeute mit maximal 75 lm/W etwas geringer als für die gestreckten Leuchtstoffröhren mit bis zu 105 lm/W. Im Rahmen der seit vielen Jahren etablierten Technologien stehen noch Halogenmetalldampflampen mit bis zu 122 lm/W und Natriumnieder- sowie Natriumhochdrucklampen mit 200 bzw. 150 lm/W zur Verfügung, siehe dazu Tab. 1.1. Der Einsatz von Halogenmetalldampflampen beschränkt sich jedoch aufgrund des hohen Preises dieser Technologie auf Sportstätten oder Industriehallen. Obwohl die Natriumniederdrucklampe das effizienteste herkömmliche Leuchtmittel ist, beschränkt sich ihr Einsatz auf Straßen- und Industriebeleuchtung. Der Grund hierfür ist das emittierte monochromatische gelbe Licht, welches eine extrem schlechte Farbwiedergabe aufweist. Dieser weitere wichtige Parameter für die Verwendung von Leuchtmitteln in der Allgemeinbeleuchtung wird durch den Farbwiedergabe-Index (engl.: „color rendering index“, CRI) beschrieben.
Der CRI hat einen Maximalwert von 100 und gibt an, wie gut Farben bei Beleuchtung mit einer Lichtquelle wiedergegeben werden. Je ähnlicher das von einem Leuchtmittel emittierte Spektrum dem eines planckschen Schwarzkörperstrahlers ist, desto angenehmer und natürlicher empfindet der Mensch das Licht und desto höher ist der CRI. Ein Vergleich des CRI verschiedener Leuchtmittel macht nur bei gleicher Farbtemperatur (engl.: „correlated color temperature“, CCT) Sinn, da diese den Farbeindruck bestimmt. Sonnenlicht, das fast ein ideales plancksches Schwarzkörperspektrum bei einer Temperatur von ca. 5800 K hat, besitzt einen CRI von 100. Ebenso hat die Glühlampe, die auf dem Prinzip eines thermischen Strahlers beruht, einen CRI von 100 über einen Bereich von 2200 - 2800 K (abhängig von der Watt-Klasse). In Leuchtstofflampen kann der CRI heutzutage über die geeignete Mischung von Leuchtstoffen zu Werten bis auf über 90 bei Farbtemperaturen zwischen 2700 - 6500 K eingestellt werden, allerdings sinkt mit höherem CRI und geringerer Farbtemperatur die Lichtausbeute.
Als ultimative Lichtquelle der Zukunft kann die Leuchtdiode (engl.: „light emitting diode“, LED) betrachtet werden. Bei einer Leuchtdiode entsteht das Licht über die Rekombination von Elektronen und Löchern in einem Halbleiterkristall. Die Farbe

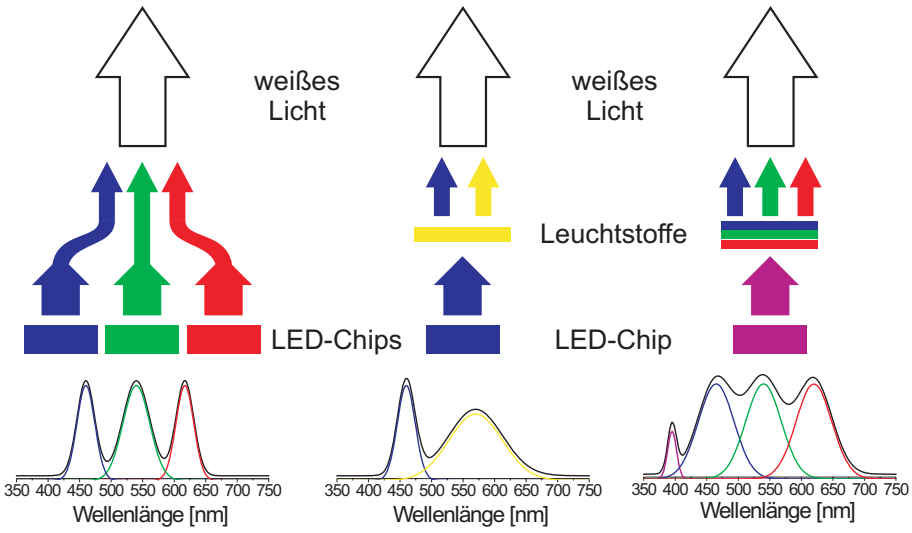


Abbildung 1.1: *Drei verschiedene Konzepte zur Erzeugung weißen Lichts mit LEDs. Drei einzelne LEDs unterschiedlicher Emissionswellenlängen im roten, grünen und blauen Spektralbereich (links), eine blaue LED mit gelb-emittierendem Leuchtstoff (mitte) und eine Nah-UV-LED mit rot-, grün- und blau-emittierendem Leuchtstoff (rechts).*

des emittierten Lichtes ist durch den Bandabstand und damit durch das Material der Leuchtdiode vorgegeben. Das emittierte Spektrum einer LED ist dadurch nahezu monochromatisch. Mit den Gruppe-III-Nitrid- und Gruppe-III-Phosphid-Verbindungshalbleitern stehen zwei Materialsysteme zur Verfügung, die durch Mischung der Gruppe-III-Elemente die Einstellung der Emissionswellenlänge über einen kontinuierlichen Spektralbereich erlauben. Das komplette sichtbare Spektrum kann heute mit LEDs dieser 2 Materialsysteme abgedeckt werden. Es besteht aber im Grenzbereich zwischen den Materialsystemen, dem grünen Spektralbereich, ein starker Einbruch der Effizienz, die sogenannte „Grün-Lücke“. Während die ersten LEDs auf Basis der Gruppe-III-Arsenide und Gruppe-III-Phosphide schon zwischen 1960 und 1970 entwickelt wurden, gelang es erst 1992 I. Akasaki an der Nagoya Universität, Japan, gefolgt 1993 von S. Nakamura bei der Firma Nichia, Japan, eine LED auf Nitrid-Basis herzustellen. Nakamura erzielte dabei sehr rasche Fortschritte und konnte schon 1994 eine LED bei 450 nm mit 1,5 mW vorweisen [3].
Um monochromatische LEDs in weiße LEDs für die Allgemeinbeleuchtung zu verwandeln, gibt es unterschiedliche Ansätze, wie in Abb. 1.1 dargestellt wird. Die zuerst realisierte Möglichkeit war, drei einzelne LEDs zu kombinieren, die bei verschiedenen Wellenlängen im roten, grünen und blauen Spektralbereich emittieren. Dies erfordert jedoch aufgrund von verschiedenen Betriebsspannungen und Bauelementalterungszeiten eine aufwändige elektronische Ansteuerung. Die zwei anderen in Abb. 1.1 dargestellten Ansätze beruhen auf dem Einsatz von Leuchtstoffen, die das von der LED emittierte Licht ganz oder teilweise absorbieren und per Fluoreszenz als niederenergetischeres Licht aussenden. Der Leuchtstoff kann in das Gehäuse der LED integriert werden, man spricht dann von einer Lumineszenz-Konversions-LED oder

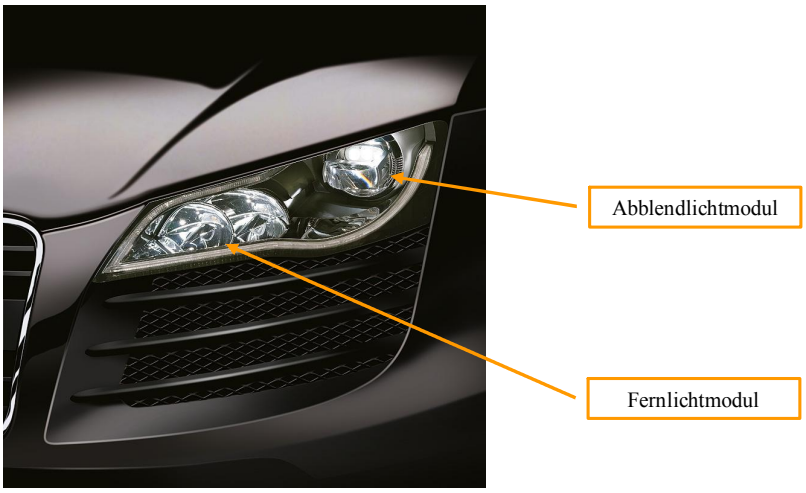


Abbildung 1.2: *Voll-LED-Scheinwerfer des Audi R8 der Automotive Lighting Reutlingen GmbH [5].*

kurz LUCOLED [4]. Die höchsten Effizienzen sind mit der Kombination einer blauen, bei 440 - 460 nm emittierenden LED als Pumplichtquelle mit einem gelb emittierenden Leuchtstoff wie Cer-dotiertes Yttrium-Aluminium-Granat $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}(4f^1)$ oder kurz YAG:Ce erzielbar. Durch additive Farbmischung des nur teilweise absorbierten blauen mit dem vom Leuchtstoff emittierten gelben Lichtes entsteht weißes Licht, welches in Bezug auf die Farbwiedergabe gegenüber konventionellen Leuchtmitteln noch Nachteile aufweist und durch den fehlenden Rot-Anteil als „kalt-weißes“ Licht empfunden wird (Farbtemperatur um 6000 K). Ein ähnlicher Ansatz kann verfolgt werden um „warm-weiße“ LEDs zu erreichen. Hier besteht die Pump-LED aus einer UV- oder Nah-UV-LED welche bei 370 - 420 nm emittiert und dem Einsatz von 3 Leuchtstoffen, siehe Abb. 1.1. Hier wird die für das menschliche Auge unsichtbare Pumpstrahlung fast vollständig in den Leuchtstoffen absorbiert und in sichtbares Licht umgewandelt. Durch die Entkopplung des Pumplichts von der sichtbaren Emission wird der Farbeindruck und CRI nur noch von der Kombination der verschiedenen Leuchtstoffe bestimmt. Dies ist ein Vorteil gegenüber der Kombination von blauer LED mit YAG:Ce, da dort die Anforderung an eine homogene Verteilung des Leuchtstoffes sehr hoch sind, um über den gesamten Raumwinkelbereich den gleichen Farbton (konstantes Verhältnis blauer zu gelber Emission) zu erzielen. Den eingesetzten Leuchtstoffen kommt auch in Bezug auf die Effizienz eine bedeutende Rolle zu. Während die Quanteneffizienz, also das Verhältnis der Anzahl von absorbierten zu emittierten Photonen, sehr hoch ist, ist mit der Lumineszenzkonversion ein prinzipiell bedingter Effizienzverlust, das Quantendefizit, verbunden. Das Quantendefizit entsteht durch die Absorption kurzwelliger, hochenergetischer Photonen und die Reemission langwelligerer, niederenergetischerer Photonen. Der entstehende Energieunterschied führt zur einer Erwärmung des Leuchtstoffs und Bauteils, was neben dem direkten Effizienzverlust durch das Quantendefizit auch noch eine Verschlechterung der Effizienz der Pumplichtquelle und des Leuchtstoffs zur Folge hat.

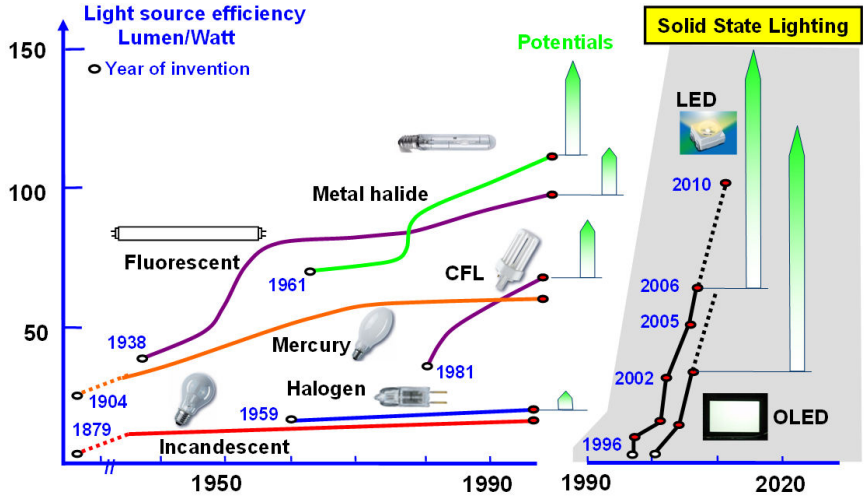


Abbildung 1.3: *Entwicklung der Lichtausbeute verschiedener Leuchtmittel in den vergangenen 90 Jahren, Stand 2009 [6].*

Für viele Anwendungen ist die Farbqualität von zweitrangiger Bedeutung, die Energieeffizienz, die kompakte Bauform und die Langlebigkeit jedoch entscheidend. Beispiele sind die Fahrradbeleuchtung oder Stirnlampen im Sport- sowie im Arbeitsbereich. Ein weiteres Anwendungsfeld ist die Automobilbeleuchtung. Nach der Armatur- und Innenraumbeleuchtung gibt es jetzt erste Automobilmodelle mit Frontscheinwerfern, die vollständig auf LED-Leuchtmitteln basieren. In Abbildung 1.2 ist der komplett auf LED-Technologie basierende Autoscheinwerfer des Audi R8 zu sehen. Neben dem Effizienzgewinn durch die hohe Effizienz der LEDs mit bis zu 100 lm/W ist hier die kompakte Bauform der LED mit der daraus resultierenden größeren Design-Freiheit das entscheidende Merkmal.
Abseits der mobilen Einsatzgebiete setzt sich die LED auch zunehmend in der Straßenbeleuchtung durch. Die zentrale Triebfeder ist dabei die Kostenersparnis durch niedrigen Energieverbrauch und geringen Wartungsaufwand.
Trotz der zahlreichen schon umgesetzten Anwendungen wird in Bezug auf eine Steigerung des Leistungswirkungsgrads der primären Leuchtdiode weltweit äußerst aktiv geforscht. Ein zentrales Problem der GaInN-basierenden Leuchtdioden ist das nicht-thermische Überrollen der Effizienz bei hohen Injektionsstromdichten (engl.: „nonthermal rollover“ oder „efficiency droop“). Dieser Effekt bezeichnet das Abfallen der Quanteneffizienz mit zunehmender Stromdichte, was in dieser Form nur bei GaInN-basierten LEDs festzustellen ist. Die zugrundeliegenden physikalisch verantwortlichen Effekte sind Gegenstand aktuellster Diskussion. Gesichert ist jedoch, dass das nicht-thermische Überrollen mit zunehmendem Indium-Gehalt des Quantentopfes (und damit steigender Wellenlänge) ansteigt und damit bei heutigen blauen und im besonderen grünen Leuchtdioden der effizienzbegrenzende Effekt ist. Deutlich wird dies zum Beispiel an den aktuellen Rekordwerten für die Effizienz von weißen LEDs. Die aktuelle Rekord-Lichtausbeute für kalt-weiße LEDs wird von der Firma Nichia berichtet und beträgt 249 lm/W [7] für einen 1 mm^2 großen LED-Chip bei 20 mA. Betrachtet man allerdings die Ausbeute bei dem Standardstrom für

diese Chip-Größe von 350 mA, so sinkt die Ausbeute auf 145 lm/W. In diesem Strombereich liegen die veröffentlichten Rekordwerte bei 161 lm/W von der Firma Cree [8]. Eine Übersicht über die rasante Entwicklung der Lichtausbeute von kommerziell erhältlichen LEDs verglichen mit herkömmlichen Leuchtmitteln ist in Abb. 1.3 gegeben.
Während bei mobilen Anwendungen der kalt-weiße Farbton dieser LEDs tolerabel ist, verlangt die Allgemeinbeleuchtung in Wohn- und Büroräumen eine höhere Farbwiedergabe. Auch bei weißen LEDs, die auf einer Nah-UV-LED mit 3-Banden-Leuchtstoff-Konversion beruhen, ist die Effizienz dieser Pump-LED der zentrale Ansatzpunkt zur Steigerung des Lichtausbeute.

Kapitelübersicht

Diese Arbeit beschäftigt sich im Besonderen mit dem Einfluss des Substrats auf die Epitaxie und Effizienz von Nah-UV-LEDs im Wellenlängenbereich 380 - 430 nm. Als wichtigstes Ergebnis der Arbeit wird in Kapitel 7 eine Möglichkeit aufgezeigt, wie das nicht-thermische Überrollen durch den Einsatz von breiten GaInN-Doppelheterostrukturen als aktiver Bereich in Kombination mit Homoepitaxie auf freistehenden GaN-Substraten umgangen werden kann. In den Kapiteln 4 bis 6 werden die für das Verständnis notwendigen grundlegenden Unterschiede der Epitaxie und Charakterisierung von LEDs auf verschiedenen Substraten erarbeitet und grundsätzliche Überlegungen zur Effizienz von LEDs vorgenommen.
Zunächst werden jedoch in Kapitel 2 die strukturellen, elektronischen und optischen Eigenschaften des Materialsystems der Gruppe-III-Nitride beschrieben. Hier wird auf die Polarität des Kristallgitters der Gruppe-III-Nitride eingegangen, welche nicht nur den *Quantum Confined Stark Effect* (QCSE) verursacht, sondern auch zu Grenzflächenladungen führt, die einige Gruppen als Grund für das nicht-thermische Überrollen sehen. Mit dem Herstellungsprozess der metallorganischen Gasphasenepitaxie (engl.: „metal-organic vapour-phase epitaxy“, MOVPE) beschäftigt sich Kapitel 3. Neben der Charakterisierung der strukturellen und chemischen Eigenschaften der epitaktischen Schichten mit hochaufgelöster Röntgenbeugung (engl.: „high-resolution X-ray diffraction“, HRXRD) und Sekundärionen-Massenspektrometrie (SIMS) wird hier auf die Charakterisierung der elektro-optischen Eigenschaften der LED-Strukturen mit Photo- und Elektrolumineszenz eingegangen.
Kapitel 4 beschreibt den epitaktischen Schichtaufbau der LED-Strukturen und die im Rahmen dieser Arbeit erzielten Weiterentwicklungen im Detail. Ein Fokus liegt hier auf der Nukleationsschicht, die beim Wachstum auf Saphir entscheidend die Dichte der Versetzungen und damit die Kristallqualität bestimmt. Des Weiteren werden grundlegende Wachstumsparameter wie Trägergaszusammensetzung, Temperatur und Druck und ihr Einfluss jeweils auf die Emissionswellenlänge, Effizienz oder das elektrische Nebenschlussverhalten diskutiert.
In Kapitel 5 wird der Übergang von der Heteroepitaxie auf Saphir, die mit einer hohen resultierenden Defektdichte einhergeht, über die Epitaxie auf defektreduzierten GaN-Templates (etwa 10 μm dicke epitaktische GaN-Schichten auf Saphir mit speziellen die Defektdichte reduzierenden Zwischenschichten) bis zur Homoepitaxie auf freistehenden GaN-Substraten beschrieben. Hier wird der Einfluss des Substratwechsels auf

die Epitaxie und die daraus resultierenden Schichtparameter, wie die Defektdichte, diskutiert. Die Ausbeute an funktionierenden LEDs über einen gesamten 2-Zoll-Wafer kann durch die Verwendung einer dicken Pufferschicht verbessert werden, dabei bestimmt die Qualität des Substrats die Lumineszenz-Effizienz und Kristallqualität der epitaktischen Schichten.
Spricht man von der Gesamteffizienz von Leuchtdioden, so betrachtet man stets das Produkt verschiedener Einzeleffizienzen. Beim Vergleich der optischen Ausgangsleistungen von LEDs auf unterschiedlichen Substraten spielt neben den jeweiligen internen Effizienzen (Umwandlung Strom - Licht) die Extraktionseffizienz eine entscheidende Rolle. Diese wichtigen Unterscheidungen werden in Kapitel 6 ausführlich diskutiert. Um die interne Quanteneffizienz (IQE) der LED-Strukturen hinsichtlich der verschiedenen Substrate zu vergleichen, sind Verfahren notwendig, die unabhängig von der Extraktionseffizienz sind. Dazu wird die direkte IQE-Bestimmung durch temperaturabhängige Photolumineszenzmessungen mit der indirekten Bestimmung über eine Analyse des charakteristischen Verlaufs der Lichtleistungs-Strom-Kennlinie korreliert. Auf die Grenzen des zweiten Verfahrens wird im letzten Abschnitt des Kapitels eingegangen. Es zeigt sich, dass das nicht-thermische Überrollen durch einen zusätzlichen Term in der Ratengleichung beschrieben werden kann, der allerdings nicht über die vorher genannte Analyse quantifizierbar ist.
In Kapitel 7 werden die Auswirkungen der Substratwahl auf die elektro-optischen Eigenschaften der LED-Strukturen beschrieben. Für Wellenlängen zwischen 370 und 400 nm führt die Verwendung von defektreduzierten Substraten zu einem deutlichen Leistungsgewinn, was durch eine abnehmende Ladungsträgerlokalisierung aufgrund des sinkenden In-Gehalts der aktiven Schichten in Verbindung mit nichtstrahlender Rekombination an Versetzungen erklärt wird. Defektreduzierte Substrate erlauben des Weiteren Epitaxiestrukturen mit breiten GaInN/GaN-Doppelheterostrukturen als aktiver Bereich, die zu einer Reduktion des nicht-thermischen Überrollens bei gleichzeitig hoher Effizienz führen. Um die Zusammenhänge von Versetzungsdichte und breiten Quantentrogstrukturen mit der Effizienzsteigerung zu erklären, wird ein Modell entwickelt, welches auf ladungsträgerdichteabhängigen Rekombinationsraten basiert.

2. Physikalische Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride

Die Gruppe-III-Nitrid-Verbindungshalbleiter besitzen eine Reihe von herausragenden Eigenschaften, die ihre Anwendung auf verschiedensten Gebieten möglich machen. So kann die hohe Schallgeschwindigkeit in AlN für akustische Oberflächenwellen-Bauelemente (engl.: „surface acoustic wave“, SAW) mit sehr hohen Frequenzen genutzt werden [9]. Die hohe mechanische, thermische und vor allem chemische Stabilität macht die Umsetzung Nitrid-basierter Ionen-empfindlicher Sensoren möglich, zur Anwendung in der pH-Sensorik oder der Gasdetektion [10]. Die Basis dafür sind Nitrid-basierte modulationsdotierte Feldeffekt-Transistoren (engl.: „modulation-doped field-effect transistor“, MODFET) mit hohen Elektronenkonzentrationen, die durch die polaren Eigenschaften der Nitride ermöglicht werden. Ein weiteres Einsatzgebiet dieser MODFET sind Verstärkerschaltungen, die zum Beispiel den Energiebedarf in Mobilfunk-Basisstationen senken können [11].
Im Folgenden werden jedoch nur die für das Verständnis dieser Arbeit notwendigen optoelektronischen Eigenschaften von GaN und den ternären Verbindungen $Ga_{1-x}In_xN$ und $Al_xGa_{1-x}N$ zusammengestellt. Durch die Anwendung in Leuchtdioden liegt hier der Schwerpunkt auf der Kristallstruktur und den optischen und elektronischen Eigenschaften. Umfassende und ausführlichere Zusammenstellungen der Materialeigenschaften der Gruppe-III-Nitride können in verschiedenen Datensammlungen und Büchern gefunden werden, z. B. [12, 13]. Abbildung 2.1 vergleicht die Bandlücke E_{gap} über der Nächster-Nachbar-Bindungslänge für verschiedene III-V-Halbleiter. Die besondere Eignung der Gruppe-III-Nitride für optoelektronische Anwendungen wird durch die direkte Bandlücke, die den weiten Energiebereich zwischen 0.7 eV und 6.1 eV abdeckt, deutlich. So ist theoretisch durch den In-Gehalt x in $Ga_{1-x}In_xN$ der gesamte sichtbare Spektralbereich als Emissionswellenlänge einstellbar. Die hohe Bandlücke von 3.5 eV für GaN und die Realisierung von blauen LEDs durch Beimischung von etwa 15% In waren Voraussetzungen für effiziente weiße Leuchtdioden. Das Erzielen von effizienten UV-LEDs mit kürzeren Wellenlänge von unter 365 nm bis 220 nm ist durch das Beimischen von Al zu GaN möglich, allerdings sind die erreichten Effizienzen noch etwa zwei Größenordnungen unter den auf GaInN-basierenden LEDs.

2.1. Kristallstruktur

Gruppe-III-Nitride kommen sowohl in der kubischen Zinkblendestruktur, als auch in der hexagonalen Wurtzitstruktur vor. Die thermodynamisch stabile Struktur ist die Wurtzitstruktur. Kubische Nitride können zwar epitaktisch hergestellt werden [14, 15], die Kristallqualität dieser Schichten ist jedoch deutlich geringer als die der hexagona-

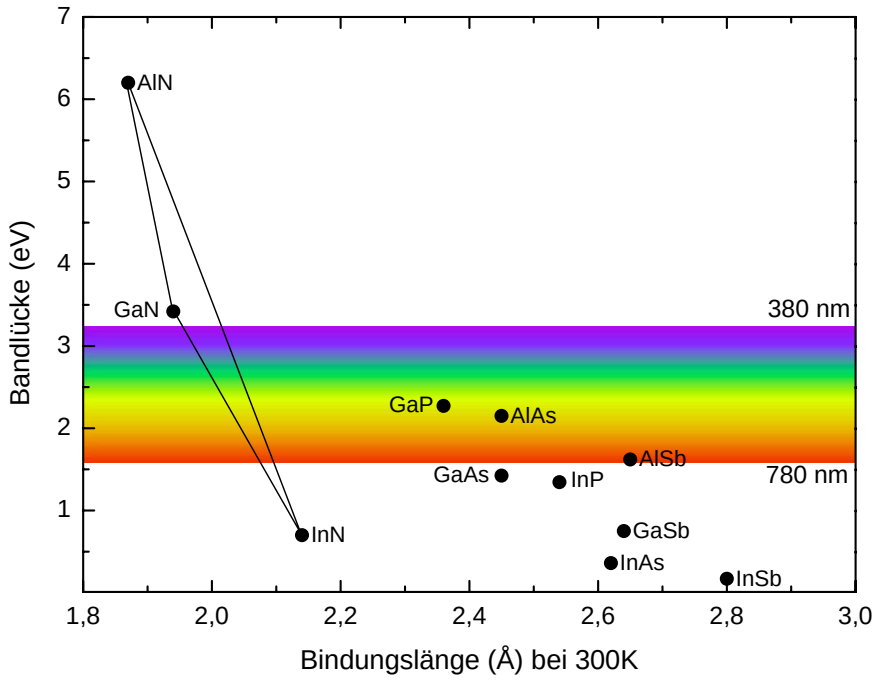
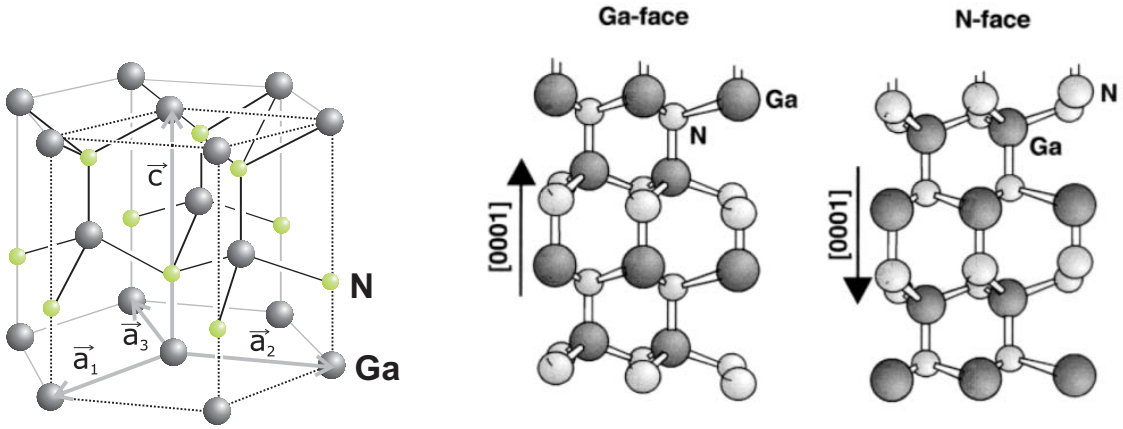


Abbildung 2.1: *Bandlücke gegen die Nächste-Nachbar-Bindungslänge für ausgewählte III-V-Halbleiter. Der sichtbare Spektralbereich von 380 bis 780 nm ist farblich markiert.*

len Schichten. Abbildung 2.2(a) zeigt schematisch den Aufbau des Wurtzitgitters am Beispiel von GaN. Die Wurtzitstruktur von GaN hat eine hexagonale Einheitszelle, die von den Einheitsvektoren a_1, a_2 und c und mit den zwei Gitterparametern a und c beschrieben wird. Sie besteht aus 2 ineinandergeschachtelten hexagonal dichtest gepackten (engl.: „hexagonal close packed“, hcp) Untergittern jeweils einer Atomsorte. Die Verschiebung des Stickstoff-Untergitters relativ zum Gallium-Untergitter beträgt 5/8 des c-Gittervektors. Zur Notation der Netzebenen im hexagonalen Gitter werden die vier Miller'schen Indizes $\{h, k, i, l\}$ genutzt, wobei die Bedingung $i = -(h + k)$ nötig ist um die Eindeutigkeit der Notation zu gewährleisten[1].
Man kann sich das Wurtzitgitter auch als eine Übereinanderstapelung von Doppellagen (engl.: „bilayers“) vorstellen, die aus einer Metall- und einer N-Lage bestehen. Dadurch besitzt der Kristall keine Inversionssymmetrie, was zu polaren Achsen führt. Bei Oberflächen in Richtung [0001] spricht man von Ga-Polarität und bei $[000\bar{1}]$ von N-Polarität, siehe Abb. 2.2(b). Es zeigt sich, dass die Ga-polaren Oberflächen chemisch stabiler sind und beim MOVPE-Wachstum eine geringere Rauigkeit aufweisen [17, 18].
Die derzeit weit überwiegende Wachstumsrichtung für Bauelemente auf Saphir und SiC ist [0001], deren Wachstumsoberfläche (0001) als c-plane bezeichnet wird. Die nicht-polaren Oberflächen $\{1\bar{1}00\}$ und $\{11\bar{2}0\}$ werden als m-plane bzw. a-plane be-

[1] Da der Index i nicht linear unabhängig ist, kann er auch durch einen Punkt ersetzt oder ganz weggelassen werden, wenn der Bezug zum hexagonalen Gitter klar ist.



(a) (b)

Abbildung 2.2: *(a) Kristallgitter von GaN in Wurtzitstruktur. Die primitive Einheitszelle ist durch die Gittervektoren a_1, a_2 und c zusammen mit den gepunkteten Linien beschrieben. (b) Verschiedene Polaritäten bestimmen die Richtung der spontanen Polarisation, nach Ref. [16].*

zeichnet.
Die wichtigsten Kristallstrukturparameter zusammen mit den Bandlücken von hexagonalem und kubischem AlN, GaN und InN sind in Tabelle 2.1 zusammengefasst. Für die Gitterparameter der ternären Verbindungen AlGaN und GaInN mit nied-

	InN	**GaN**	**AlN**
Bandlücke E_{gap} (eV) (hex.)	0,7 [19]	3,42	6,0
Bandlücke E_{gap} (eV) (cub.)	-	3,2	5,4
kub. Gitterparameter a (Å)	4,98	4,50	4,38
hex. Gitterparameter a (Å)	3,537	3,189	3,111
hex. Bindungslänge (Å)	2,14	1,94	1,87
hex. Gitterparameter c (Å)	5,703	5,185	4,981
in-plane Wärmeausdehnungskoeffizient (10^{-6}/K) bei RT	-	5,59	3

Tabelle 2.1: *Bandlücken und Gitterparameter der Gruppe-III-Nitride in hexagonaler und kubischer Kristallstruktur bei 300 K, nach [12, 20] falls nicht anders markiert.*

rigem In-Gehalt kann die Regel von Vegard angewendet werden, welches auf einer linearen Interpolation zwischen den jeweiligen binären Verbindungen beruht:

$$a_{\mathrm{A_{1-x}B_xN}}(x) = a_{\mathrm{AN}} + x(a_{\mathrm{BN}} - a_{\mathrm{AN}})$$

Für AlInN und höhere In-Gehalte x in $\mathrm{Ga_{1-x}In_xN}$ gilt diese allerdings aufgrund der zu großen Unterschiede in den Gitterparametern, die Abweichungen bis zu 6% für AlInN verursachen [21], nicht mehr [20].

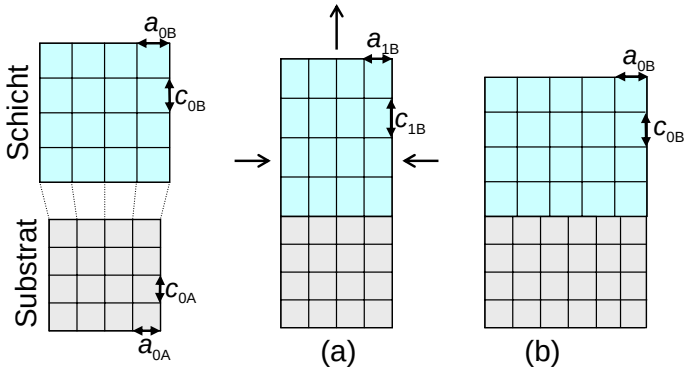


Abbildung 2.3: *Schematische Darstellung von (a) vollverspannter und (b) vollständig relaxierter Epitaxieschicht.*

Werden bei der Epitaxie dünne Schichten auf einem Puffer oder Substrat gewachsen und sind die Gitterparameter der Schicht größer/kleiner als die des Puffers/Substrats, so sind die Schichten bis zu einer kritischen Schichtdicke pseudomorph verspannt. Dies bedeutet, dass der in-plane Gitterparameter $a_{0\mathrm{B}}$ der Schicht dem des Puffers $a_{0\mathrm{A}}$ entspricht. In Abb. 2.3 ist der Fall der kompressiven Druckverspannung (a) aufgezeigt, dabei wird durch den Index 0 der unverspannte und mit 1 der verspannte Gitterparameter bezeichnet. Eine solche Verspannung, d. h. Verkleinerung des a-Gitterparameters in der Wachstumsebene, führt zu einer Vergrößerung des Gitterparameters c. Im umgekehrten Fall, der sogenannten biaxialen Zugspannung, bewirkt das pseudomorphe Wachstum eine Verkleinerung von c. Bedingt durch den Grad der Gitterfehlanpassung und die Dicke kann die Schicht nun pseudomorph, d. h. völlig verspannt auf dem Substrat, relaxiert oder teilweise relaxiert aufwachsen. Die beiden extremen Fälle einer vollständig relaxierten und einer pseudomorph verspannten Schicht sind in Abb. 2.3 gezeigt. Die elastischen Eigenschaften des Materials und die zur Ausbildung von Versetzungen nötige Energie bestimmen, ob die aufgewachsene Schicht einer bestimmten Dicke elastisch verspannt oder relaxiert ist. Da die Verspannungsenergie mit der Dicke der Schicht zunimmt, existiert eine kritische Schichtdicke, ab der die Schicht unter Bildung von Fehlanpassungsversetzungen zu relaxieren beginnt [22].

2.2. Polarisation

Die ideale Wurtzitstruktur hat ein Verhältnis der hexagonalen Gitterparameter $c/a = 1{,}633$. Die Kristallstruktur der Nitride weicht jedoch auch im vollständig relaxierten Zustand aufgrund des großen Elektronegativitätsunterschiedes von Metall- zu Stickstoffatom vom idealen Wert ab. Dadurch heben sich die Dipole der einzelnen Tetraederbindungen nicht mehr auf und es entstehen Polarisationsfelder im Kristall. Abbildung 2.4 verdeutlicht die Verschiebung des Stickstoffatoms relativ zur Position in der idealen Wurtzitstruktur. Der nicht kompensierte Dipolanteil führt zur soge-

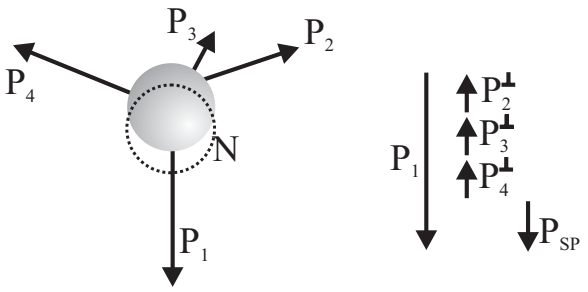


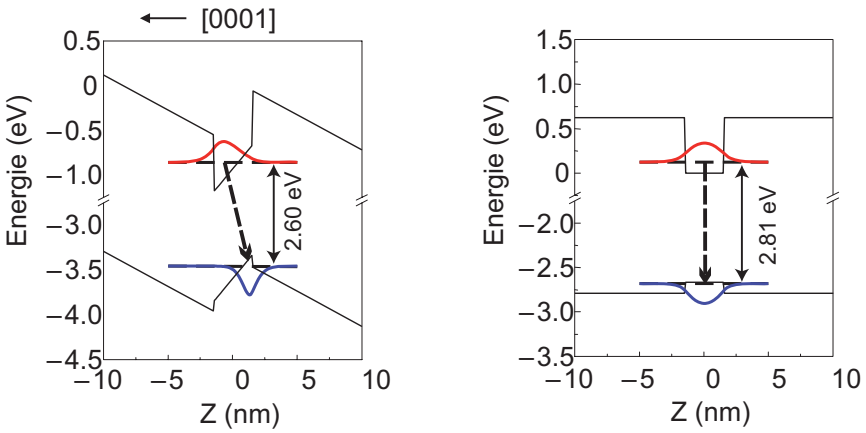
Abbildung 2.4: *Durch die Verschiebung des Stickstoff Untergitters gegenüber der idealen Wurtzitstruktur entsteht die spontane Polarisation. Die in c-Richtung resultierenden Dipolmomente sind auf der rechten Seite dargestellt.*

nannten spontanen Polarisation der Gruppe-III-Nitride, die in c-Richtung besteht[2]. Die spontane Polarisation im relaxierten Zustand steigt mit sinkender Elektronegativität des Metallatoms von GaN über InN bis AlN. Beide Werte sind in folgender Tabelle zusammengefasst:

	Ga(N)	**In(N)**	**Al(N)**	**N**
Elektronegativität (Metallatom)	1,81	1,78	1,61	3,04
Spontane Polarisation (Cm^{-2})	0,034	0,042	0,092	

Die Kristallstruktur bewirkt neben der spontanen Polarisation auch eine Piezoelektrizität. Durch biaxiale (engl.: „in-plane“) Verspannung erzeugt die elastische Verschiebung der Atome einen zusätzlichen Beitrag zur Polarisation in c-Richtung. Aufgrund unterschiedlicher in-plane Gitterparameter und Wärmeausdehnungskoeffizienten des Fremdsubstrats gegenüber der epitaktischen Schicht oder durch Heterostrukturen geringer Dicke, entstehen bei der Epitaxie solche biaxialen Verspannungen. Als Beispiel sind hier die ca. 3 nm breiten Quantentopfstrukturen des aktiven Bereichs von GaInN Leuchtdioden oder die etwa 20 nm breite AlGaN-Barriere bei HEMT-Strukturen zu nennen. Bei AlGaN-HEMT-Strukturen zeigen die spontane und die piezoelektrische Polarisation in die gleiche Richtung und sind etwa gleich groß. Bei GaInN-Quantentopfstrukturen zeigen die Polarisationen in entgegengesetzte Richtung. Da jedoch die spontane Polarisation von GaN und InN sehr ähnlich sind, führt nur die durch den großen Unterschied in den Gitterparametern verursachte starke piezoelektrische Polarisation zu einer starken Verkippung der Energiebänder, die zum *Quantum Confined Stark Effect* (QCSE) [23] führt, siehe Abb. 2.5. Der QCSE führt zur lokalen Separation von Elektron- und Lochwellenfunktion, deren Energieabstand geringer ist als die Bandlücke des Quantentopfmaterials.
Die Absenkung des Energieabstands eröffnet zwar die Möglichkeit längere Emissionswellenlängen zu erreichen, der geringe Überlapp der Wellenfunktionen führt allerdings zu einem Abnehmen des Matrixübergangselements der strahlenden Rekombination und damit zu einer sinkenden strahlenden Ausbeute. Die Abschirmung der Polarisa-

[2]Die spontane Polarisation wird manchmal auch als pyroelektrische Polarisation bezeichnet, weil ihre Größe von der Temperatur abhängig ist.



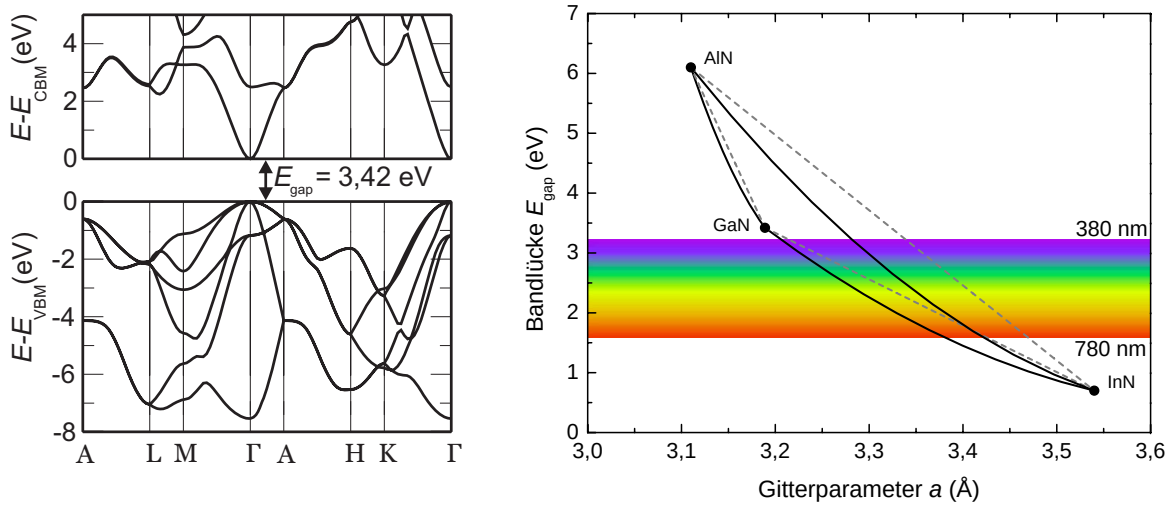
(a) (b)

Abbildung 2.5: *Schematischer Bandverlauf für einen verspannten 3 nm breiten GaInN-Quantenfilm bei Wachstum in (a) polaren und (b) nicht-polaren Kristallrichtungen, nach [24]. Die Bandverbiegung beim Wachstum in polarer Kristallrichtung (a) führt zum QCSE.*

tionsfelder durch injizierte Ladungsträger wiederum führt zu einer Blauverschiebung der Emission zu kürzeren Wellenlängen mit steigendem Injektionsstrom in einer Diode.

Eine starke Reduktion des QCSE kann durch das Wachstum auf nicht-polaren (*a*- oder *m*-plane) oder semi-polaren Ebenen (z.B. $\{11\bar{2}2\}$) erreicht werden. Während bei den nicht-polaren Ebenen die Polarisation in der Wachstumsbene liegt, wird beim Wachstum auf semi-polaren Ebenen ein lokales Minimum der Polarisation in und senkrecht zu der Wachstumsebene ausgenutzt [25]. Waltereit *et al.* [26] haben 2000 erstmals einkristallines nicht-polares GaN mit *m*-plane Orientierung auf $LiAlO_2$ gewachsen und durch Kathodolumineszenzmessungen nachgewiesen, dass der QCSE nicht auftritt. Die Effizienz der seither heteroepitakisch auf Saphir und SiC gewachsenen nicht- bzw. semipolaren LEDs war aber aufgrund von in-plane Stapelfehlern um etwa 2 Größenordnungen geringer als die von *c*-plane LEDs. Erst Ende 2006 gelangen der Gruppe um J. Speck an der Universität von Kalifornien in Santa Barabara (UCSB) der Durchbruch mit *m*-plane-LEDs und -Lasern, die auf kleinen freistehenden GaN-Substraten der Firma Mitsubishi Chemicals gewachsen wurden und Effizienzen vergleichbar den LEDs und Lasern zu *c*-plane zeigten [27, 28]. Diese Substrate werden aus dicken *c*-plane GaN-Substraten geschnitten und sind damit in ihrer Größe auf etwa $5 \times 20\,\mathrm{mm}^2$ begrenzt, dadurch sehr teuer und weit von einer kommerziellen Nutzung entfernt.

Die in dieser Arbeit gewachsenen LED-Strukturen sind ausschließlich polare *c*-plane LEDs mit In-Gehalten von zumeist unter 10%, weshalb die Polarisationsfelder beim Großteil der analysierten LEDs nur eine untergeordnete Rolle spielen. Eine Ausnahme hiervon sind jedoch die LEDs mit breiten Quantenfilm- und Doppelheterostrukturen, die in Kapitel 7.3 untersucht werden.



(a) (b)

Abbildung 2.6: *(a) Über Dichtefunktionaltheorie und Vielteilchen-Störungstheorie berechnete Bandstruktur von GaN [29]. (b) Verlauf der optischen Bandlücke für ternäre Gruppe-III-Nitride aufgetragen über den Gitterparameter a.*

2.3. Optische und elektronische Eigenschaften

Abbildung 2.6(a) zeigt die von Delaney *et al.* [29] über Dichtefunktionaltheorie und Vielteilchen-Störungstheorie berechnete Bandstruktur von GaN. Leitungsbandminimum und Valenzbandmaximum liegen beide am Γ-Punkt. GaN ist somit wie alle Gruppe-III-Nitride ein direkter Halbleiter, was die Grundvoraussetzung für eine effiziente Halbleiterlichtquelle darstellt. Das Leitungsbandminimum kann gut mit einer parabolischen Dispersion beschrieben werden, das nächst-höhere Leitungsband hat am Γ-Punkt einen Abstand von 2,5 eV. Aufgrund des Wurtzit-Kristallfeldes spaltet das Valenzband in zwei Zustände auf, zusammen mit der Spin-Bahn-Wechselwirkung ergeben sich dann drei, das Leichtlochband (LH), das Schwerlochband (HH)[3] und das durch das Kristallfeld abgespaltene Split-Off-Band (CH).
Die optische Bandlücke von GaN beträgt 3,51 eV bei 0 K und 3,42 eV bei 300 K. Die Änderung der Bandlücke mit der Temperatur wird mit der empirischen Formel von Varshni beschrieben:

$$E_{\mathrm{gap}}(T) = E_{\mathrm{gap}}(T=0) - \frac{\alpha T^2}{T+\beta} \ . \tag{2.1}$$

Bei ternären Verbindungen ändert sich die Bandlücke mit der Zusammensetzung, dies ist in Abbildung 2.6(b) dargestellt. Durch Erhöhen des In-Gehalts x in $Ga_{1-x}In_xN$ sinkt die Bandlücke von 3,42 eV bis zu 0,7 eV. Im Gegensatz zum Gitterparameter ändert sich die Bandlücke auch bei niedrigen In-Gehalten in GaInN nicht linear mit steigendem In-Gehalt. Der Verlauf der Bandlücke wird über einen Bowing-Parameter b

[3] Die Aufspaltung von Leicht- und Schwerlochband ist in Abb. 2.6(a) nicht sichtbar, da in der Berechnung die Spin-Bahn-Wechselwirkung nicht mit einbezogen wurde.

beschrieben, der über folgende Formel am Beispiel von GaInN definiert ist:

$$E_{\mathrm{gap}}^{\mathrm{GaInN}} = (1-x)E_{\mathrm{gap}}^{\mathrm{GaN}} + xE_{\mathrm{gap}}^{\mathrm{InN}} - x(1-x)b_{\mathrm{GaInN}}$$

Die Bandlücke von InN wurde lange Zeit kontrovers diskutiert. Aus Messungen an Proben mit hoher Kristallqualität wird heute jedoch ein Wert von $E_{\mathrm{gap}}^{\mathrm{InN}} = 0{,}7\,\mathrm{eV}$ allgemein akzeptiert [30, 31]. Die Materialqualität von $Ga_{1-x}In_xN$ mit In-Gehalt x um 50% ist noch immer unzureichend und erschwert damit die Bestimmung von b_{GaInN}. Der allgemein akzeptierte Wert für den Bowing-Parameter ist $b_{\mathrm{GaInN}} = 1{,}4\,\mathrm{eV}$. Allerdings deuten neueste Veröffentlichungen, bei denen MOVPE-gewachsene GaInN-Schichten über einen weiten Bereich von In-Gehalten gemessen wurden, auf einen größeren Wert von $b_{\mathrm{GaInN}} = 2{,}8\,\mathrm{eV}$ [31] hin. Der Vergleich von Photolumineszenz-Emissionswellenlängen mit aus hochaufgelöste Röntgenbeugung bestimmten In-Gehalten an 18 nm dicken GaInN-Doppelheterostrukturen jedoch stimmt mit $b_{\mathrm{GaInN}} = 1{,}4\,\mathrm{eV}$ überein, so dass dieser Wert im Folgenden verwendet wird. Eine Zusammenstellung von Bandlücken und weiteren optoelektronischen Parametern des Gruppe-III-Nitrid-Systems ist in Tabelle 2.2 gegeben.
Im Bereich von Bandextrema, die mit parabolischer Dispersion beschrieben werden können, ist die effektive Masse m^* der Ladungsträger umgekehrt proportional zur Krümmung der Bandkanten:

$$m^* = \hbar^2 \left(\frac{\partial^2 E}{\partial k^2} \right)^{-1} \tag{2.2}$$

Die kleinen Bandkantenkrümmungen der Nitride führen somit zu hohen effektiven Elektronenmassen von $m^* = 0{,}20\,m_{\mathrm{e}}$. Die Masse der Löcher variiert in einem weiten Bereich zwischen 0,3 und $2{,}2\,m_{\mathrm{e}}$, abhängig von Experiment und dem jeweils betrachteten Lochband, bzw. bei theoretischen Berechnungen von der betrachteten Kristallrichtung. Für optische Experimente ist der gebräuchlichste Wert für die effektive Masse der Löcher $m^* = 0{,}8\,m_{\mathrm{e}}$, während für die effektive Masse der Zustandsdichte $m^* = 1{,}25\,m_{\mathrm{e}}$ gilt [32].
Die hohen effektiven Massen der Löcher führen zu geringen Beweglichkeiten von nur etwa $10\,\mathrm{cm}^2/\mathrm{Vs}$ bei einer Akzeptorkonzentration im Bereich $1\text{-}10 \cdot 10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$ und sind ein Grund für die schlechte Leitfähigkeit der mit Magnesium p-dotierten GaN-Schichten. Zusätzlich ist die Aktivierungsenergie des Mg-Akzeptors in GaN mit 160 meV sehr groß und führt zu einem Ionisierungsgrad bei Raumtemperatur von nur etwa 2%. Für Si-dotiertes n-GaN findet man bei gebräuchlichen Dotierungen ($1\text{-}3 \cdot 10^{18}\,\mathrm{cm}^{-3}$) Beweglichkeiten im Bereich $100\text{-}300\,\mathrm{cm}^2/\mathrm{Vs}$ und, wegen der niederen Aktivierungsenergie des Donators von unter 20 meV, Ionisierungsgrade nahe 100% [33, 34]. Bei gebräuchlichen Dotierungen in LEDs auf Saphir führt dies zu Leitfähigkeiten für die p-Leitung von etwa $\sigma = 1\text{-}2\,(\Omega\,\mathrm{cm})^{-1}$ [35] und für n-Leitung von $\sigma = 50\text{-}100\,(\Omega\ \mathrm{cm})^{-1}$ [34]. Die schlechte Leitfähigkeit vor allem der p-GaN-Schichten hat direkte Auswirkungen auf die Entwicklung des LED-Struktur-Designs, wie in Kapitel 4.1 beschrieben wird.

Eigenschaft	**AlN**	**GaN**	**InN**
Bandlücke E_{gap} (eV) 0 K	6,1	3,51	0,7
Bandlücke E_{gap} (eV) 300 K	6,0	3,42	0,7
Bowingparameter b (eV)	1 (AlGaN)	-	1,4 (GaInN)
Ionisierungsenergie Donator (meV)	282 [36]	20	-
Ionisierungsenergie Akzeptor (meV)	630 [36]	160	-
Effektive Lochmasse (m^*/m_0)	3,3 [36]	0,8	0,2-1,6
Effektive Elektronmasse (m^*/m_0)	0.32	0,20	0,1
Spontane Polarisation ($\mathrm{C/m^{-2}}$)	0,092	0,042	0,034
Piezoelektrischer Koeffizient e_{31} ($\mathrm{C/m^{-2}}$)	-0,53	-0,34	-0,41
Piezoelektrischer Koeffizient e_{33} ($\mathrm{C/m^{-2}}$)	1,5	0,67	0,81
Piezoelektrischer Koeffizient e_{15} ($\mathrm{C/m^{-2}}$)	-0,48	-0,22	-

Tabelle 2.2: *Wichtige Materialparameter der Gruppe-III-Nitride, nach [37, 12], sofern nicht anders angegeben.*

3. Epitaxie und Charakterisierung von Leuchtdioden

In diesem Kapitel wird auf die Herstellung und Charakterisierung von GaN-basierten Leuchtdioden eingegangen. Nach einem Vergleich der verschiedenen Wachstumsverfahren, die zur GaN-Epitaxie und GaN-Substrat-Herstellung verwendet werden, wird auf die in dieser Arbeit verwendete metallorganische Gasphasenepitaxie genauer eingegangen. Dabei werden sowohl das Reaktordesign als auch die damit verbundenen chemischen und physikalische Prozesse erläutert. Im Weiteren werden die zur Charakterisierung der LED-Strukturen angewandten Techniken beschrieben. Dabei werden auch die notwendigen technologischen Schritte, wie zum Beispiel die genaue Geometrie und Zusammensetzung der Kontaktmaterialien, erläutert.

3.1. Das Wachstum von GaN

Die Herstellung von LED-Strukturen beinhaltet das Wachstum von Abfolgen von Gruppe-III-Nitrid-Schichten unterschiedlicher Zusammensetzung und Dotierung. Bei allen heute industriell gefertigten Hochleistungsleucht- und Laserdioden auf Basis der Gruppe-III-Nitride kommt als Herstellungsverfahren die metallorganische Gasphasenepitaxie zum Einsatz. Die Molekularstrahlepitaxie ist die einzige andere Wachstumsmethode, die es erlaubt dünne nitridische Bauelementheterostrukturen abzuscheiden. Bei den Substratmaterialien erlangen GaN- und AlN-Substrate zur Homoepitaxie zunehmende Bedeutung, jedoch sind sie bisher nur begrenzt verfügbar. Es gibt mehrere erfolgversprechende Kristallzuchtverfahren für GaN: die Flüssigphasenepitaxie, das ammonothermale Wachstum und das Hochdruck-Wachstum. Das derzeit dominierende Herstellungsverfahren für freistehende GaN-Substrate ist das heteroepitaktische Wachstum von sehr dicken GaN-Schichten mittels der hydridischen Gasphasenepitaxie mit anschließender Ablösung des Fremdsubstrats. Freistehende AlN-Substrate werden mit der Sublimation-Kondensationsmethode gezüchtet.

3.1.1. Kristallzucht und Wachstum von GaN-Substraten

Hochdruck-Lösungszüchtung

Das Hochdruck-Lösungszüchtung-Verfahren (engl.: „high-pressure solution“, HPS) stellt die in Bezug auf die Versetzungsdichte (engl.: „threading dislocation density“, TDD) hochwertigsten GaN-Substrate bzw. Kristalle her. Es wird vor allem von Unipress, einem Hochdruck-Forschungslabor in Warschau, Polen, betrieben. Aufgrund der Dekomposition von Nitriden in die Ausgangsmetalle und Stickstoff können die

Standard-Verfahren zur Kristallzucht aus der Schmelze (Czochralski, Bridgman) von anderen Halbleitern wie Si, GaAs oder InP nicht übernommen werden. Beim HPS-Verfahren wird die Dekomposition durch einen hohen Stickstoffdruck von bis zu 20 kbar in einem geschlossenen Wachstumsofen verhindert. Die Züchtung der GaN-Kristalle erfolgt dabei über einen Temperaturgradienten aus der Ga-Schmelze, in der bei 1500 - 1700°C etwa 1%N gelöst ist. Die so gezüchteten GaN-Kristalle haben durch eine hohe Anisotropie der Wachstumsraten die Form von dünnen hexagonalen Plättchen. Sie zeigen nach 100 - 150 h Wachstumsdauer maximale Größen von 3 cm^2 mit einer Dicke von 100 μm in Richtung [0001], siehe Abb. 3.1. Die Substrate sind

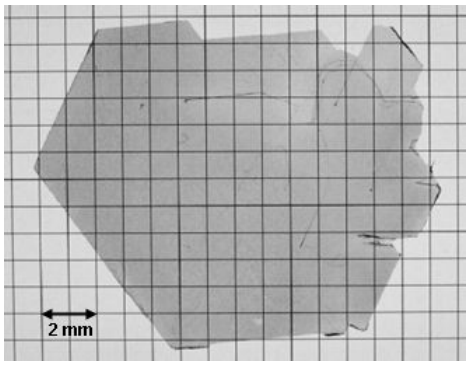


Abbildung 3.1: *Ein von Unipress mit dem Stickstoff-Hochdruck-Verfahren gezüchtetes freitragendes GaN-Substrat [38].*

zumeist durch unvermeidbare O-Verunreinigungen hoch n-leitend und zeigen manchmal makroskopische Defekte wie C-Einschlüsse [38, 39]. Die O-Verunreinigung führt außerdem zu einer leichten Ausdehnung der Gitterparameter gegenüber des idealen GaN-Gitters von $1{,}6 \cdot 10^{-4}$ [40]. Abgesehen von den genannten Punktdefekten sind die GaN-Kristalle jedoch von überragender Qualität mit einer TDD von unter 100 cm^{-2}. Die niedrige TDD ist besonders für Laser-Strukturen attraktiv, da hier die Bauteil-Lebensdauer hauptsächlich durch Versetzungen beeinflusst ist. Allerdings werden durch das Wachstum der AlGaN-Mantelschichten hohe Zugverspannungen in die Laser-Struktur eingeführt, die wiederum zur Entstehung von neuen Versetzungen führen. Besonders attraktiv scheint auch die Nutzung dieser nahezu defektfreien Substrate als Keime für andere Wachstumsarten zu sein. Experimente zum Überwachsen mit der HVPE zeigten bisher exzellente HVPE-Schichtqualitäten allerdings nur bis zu einer Schichtdicke von etwa 100 μm, bei dickeren Schichten entstehen wiederum eine hohen Anzahl von Versetzungen im Bereich 10^7 cm^{-2}. Als Gründe werden zum einen unterschiedliche Gitter- und Gitterausdehnungsparameter zwischen dem O-verunreinigten oder Mg-dotierten Substrat und der reineren HVPE-Schicht genannt, zum anderen noch nicht ausoptimiertes HVPE-Wachstum [41, 40].
Neben den extremen Wachstumsbedingungen ist die limitierte Größe der Substrate das größte Hindernis für einen kommerziellen Erfolg der mit HPS hergestellten Substrate.

Ammonothermales Wachstum

Das ammonothermale Wachstum ist das nitridische Analogon zum hydrothermalen Wachstum, welches zur kommerziellen Massenproduktion von Quarz benutzt wird. Das Wachstum findet in geschlossenen Autoklaven statt, die in zwei Bereiche mit unterschiedlichen Temperaturen unterteilt sind. Während auf der einen Seite GaN-Pulver als Ausgangsmaterial unter hohem Druck und Zuhilfenahme von Mineralisatoren in überkritischem Ammoniak gelöst wird, sind auf der anderen Seite die GaN-Keime angebracht. Der Begriff „überkritisch“ steht für den einphasigen, homogenen Zustandsbereich des Ammoniaks oberhalb der kritischen Temperatur (132,4°C) und des kritischen Druckes (113,5 bar). Typische Wachstumsbedingungen sind Temperaturen im Bereich von 400 - 600°C und Drücke von 1000 - 3000 bar. Über Konvektion im Temperaturgradient wird die überkritische Ammoniaklösung zu den Keimen transportiert und kristallisiert dort. Weltweit beschäftigen sich mehrere Gruppen mit dem ammonothermalen Wachstum von GaN [42, 43, 44, 45], wobei die mit großem Abstand eindruckvollsten und zugleich am meisten beworbenen Kristalle von der Firma AMMONO, Warschau, Polen, stammen [46]. Sie erreichen optisch transparente *c*-plane Substrate mit einem Durchmesser von bis zu 1,5 Zoll, siehe Abb. 3.2. Je nach

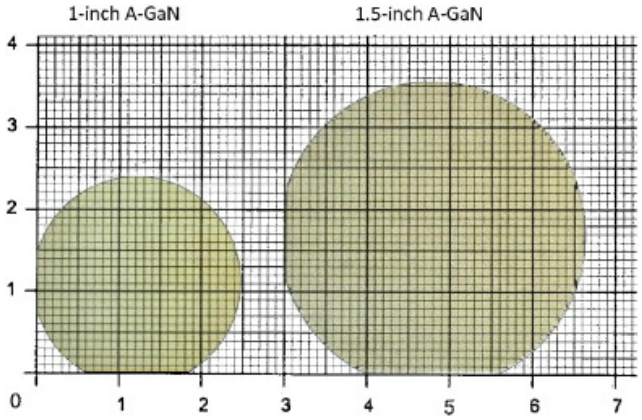


Abbildung 3.2: *Durch ammonothermales Wachstum hergestellte 1 und 1,5 Zoll GaN-Wafer der Firma AMMONO, aus [47].*

Dotierung zeigen die Substrate n- oder p-Leitung oder sind semiisolierend. Die spezifischen Widerstände bewegen sich im Bereich $\rho = 10^{-3}$ - $10^{-2}\,\Omega$cm für n-Leitung, $\rho = 10^{1}$ - $10^{2}\,\Omega$cm (p-Leitung) und $\rho = 10^{6}$ - $10^{12}\,\Omega$cm (semiisolierend). Die Kristallqualität der Substrate ist mit TDDs im Bereich 10^{3}-$10^{4}\,\mathrm{cm}^{-2}$ hervorragend, allerdings ist nichts über Verunreinigungen, die z. B. von den eingesetzten Mineralisatoren stammen, bekannt.
D'Evelyn *et al.* [42] demonstrierten auf ammonothermalem GaN (noch im Entwicklungsstadium) der Firma GE eine AlGaN/InGaN-Laserdiode, die gepulstes Lasing bei 414 nm zeigte. Auf ammonothermalen GaN-Substraten der Firma AMMONO wurde bisher nur das erfolgreiche homoepitaktische MOVPE-Wachstum demonstriert. Dabei zeigte sich jedoch eine um 2-3 Größenordnungen erhöhte TDD, die auf unzureichende Oberflächenpreparation zurückzuführen ist [47].
Obwohl das ammonothermale Wachstum erst seit 10 Jahren untersucht wird, sind

die Aussichten auf einen kommerziellen Erfolg gut. Gründe hierfür sind neben der exzellenten Materialqualität vor allem der mögliche niedrige Preis. Die Wachstumsgeschwindigkeit ist sehr niedrig und erfordert Wachstumsdauern von mehreren Tagen pro Run, jedoch kann durch den Einsatz zahlreicher Keime in einem einzelnen Run dieser Nachteil mehr als ausgeglichen werden. Zusätzlich zeichnet sich das ammonothermale Wachstum durch den geschlossenen Autoklaven mit einem geringen Verbrauch an Ausgangsmaterialien aus.

Flüssigphasenepitaxie

Die Flüssigphasenepitaxie (engl.: „liquid phase epitaxy“, LPE) ist eine weitere Methode um GaN aus der Schmelze zu wachsen. Am erfolgversprechendsten scheint hier die Methode der Natrium-Schmelze (engl.: „Na-flux“), bei der Na zur Ga-Schmelze hinzugegeben wird, welches katalytisch die Dissoziation von N_2 ermöglicht. Das Wachstum selbst findet bei Temperaturen um 900°C unter Stickstoffdrücken von bis zu 50 bar statt. Eine LPE bei niedrigem Druck wird am Fraunhofer Institut für Integrierte Systeme und Bauelemente (IISB) betrieben. Bei der Niedrigdruck-Lösungszüchtung (engl.: „low pressure solution growth“, LPSG) wird statt Natrium Germanium zur Ga-Schmelze hinzugegeben, welches die Löslichkeit von N in der Schmelze deutlich erhöht und so das GaN-Wachstum bei Temperaturen um 900°C und Umgebungsdruck (1 bar) ermöglicht [48, 49]. Um 2-Zoll-GaN-Substrate zu erzielen, werden großflächige MOVPE-gewachsene Templates als Keime benutzt. Die TDD sinkt mit steigender Substratdicke durch ein Abknicken und koaleszieren der Versetzungen. Kawamura *et al.* [50] konnten mit der *Na-flux* Methode 2-Zoll-Substrate auf Saphir mit einer GaN-Dicke bis 2 mm herstellen. Die TDD verringerte sich stark von $10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ für das MOVPE-Template auf $8 \cdot 10^4$ und $10^2\,\mathrm{cm}^{-2}$, stark variierend nach dem Bereich auf der Probe. Auch Hussy *et al.* [49] vom Fraunhofer IISB stellten eine Reduktion der Defektdichte fest, bei einer Schichtdicke von 25 μm auf einem 3-Zoll-MOVPE-Template, allerdings nur um etwa 1 Größenordnung.
Bisher wurde noch keine Homoepitaxie auf freistehenden LPE-gewachsenen Substraten berichtet, in dieser Arbeit jedoch wird die erste Epitaxie einer LED-Struktur auf LPE-gewachsenen Templates vorgestellt, siehe dazu Abschnitt 5.1.2. Die kommerziellen Erfolgsaussichten hängen wesentlich davon ab, inwieweit sich die Technologie auf mehrere Wafer pro Run hoch skalieren lässt. Bisher ist die LPE ein Ein-Wafer-Prozess und damit sehr teuer.

Sublimations-Rekondensationszüchtung von AlN

Aufgrund der kleinen Gitterparameter von AlN eignen sich freistehende AlN-Substrate weniger für die GaN-Epitaxie, dafür aber vor allem für kurzwellige AlGaN-basierte Leucht- und Laserdioden mit hohem Al-Gehalt [51]. AlN-Substrate werden über die Sublimations-Rekondensationstechnik hergestellt und hauptsächlich von der Gruppe um L. J. Schowalter von der Firma Crystal IS Inc., Green Island, USA, beworben und vertrieben. Bei etwa 2200°C wird in einem Tiegel am heißen Ende polykristallines AlN sublimiert, über einen Temperaturgradient zum kalten Ende transportiert, wo es zu einem einkristallinen Kristall rekondensiert [52]. Schujman *et al.* [53] konn-

ten so AlN-Boules mit einem Durchmesser von mehr als 50 mm herstellen, aus denen 500 μm dicke AlN-Substrate gesägt wurden. Die Substrate sind nur zu 50% einkristallin, der Rest ist polykristallin. Die TDDs im Substrat und bei der Homoepitaxie von AlN sind zwischen 300 cm^{-2} und 30000 cm^{-2}. Bei der Heteroepitaxie von GaN und 50%tigem AlGaN wurden TDDs im Bereich $3 \cdot 10^6\,cm^{-2}$ und $8 \cdot 10^5\,cm^{-2}$ gemessen [54].
Aus kommerzieller Sicht sind die AlN-Substrate für den Massenmarkt der Allgemeinbeleuchtung mit LEDs nicht geeignet, haben jedoch für die Tief-UV-LEDs und Laser, die z. B. zur Wasserdesinfektion genutzt werden können, ein großes Potential.

Hydridische Gasphasenepitaxie

Die hydridische Gasphasenepitaxie (engl.: „hydride vapour-phase epitaxy“, HVPE) ist derzeit die dominierende Methode freistehende GaN-Substrate herzustellen. Der große Markt ist die Produktion von bei 405 nm emittierenden Laserdioden (LD) für Blu-Ray-Laufwerke, da die Lebensdauer der LDs entscheidend von der TDD abhängt. Die HVPE bietet durch die sehr hohen Wachstumsraten von 100 - 500 μm/h in *c*-Richtung die Möglichkeit, dicke GaN-Schichten aufzuwachsen und damit die TDD an der Oberfläche effektiv zu reduzieren. Das Wachstum findet bei Temperaturen um 1100°C und einem Druck im Bereich zwischen 100 - 1000 mbar statt. Als Ausgangsstoffe werden meist GaCl und NH_3 genutzt, die gasförmig in den Reaktor geleitet werden, siehe dazu auch Kapitel 3.1.2. Die laterale Größe der Kristalle wird durch das Substrat oder die benutzten Templates vorgegeben. Als Fremdsubstrate werden unter anderem vorstrukturierte GaAs-(111)A- oder Saphir-(0001)-Wafer verwendet. Um freistehende GaN-Substrate zu erhalten, werden entweder nach ausreichender Schichtdicke ($\approx$500 μm) die Fremdsubstrate abgelöst, oder die GaN-Schicht so dick gewachsen ($>$ 3 mm), dass daraus nach Ablösung des Fremdsubstrats mehrere einzelne Substrate herausgesägt werden können. Das Ablösen der Substrate kann im Falle von GaAs durch chemisches Abätzen erfolgen, bei Saphir entweder durch Laser-lift-off oder über *self-separation* durch geeignete Zwischenschichten [55, 56]. Diese Zwischenschichten dienen dann als Sollbruchstellen, die beim Abkühlen von Wachstumstemperatur auf Raumtemperatur durch die verschiedenen thermischen Ausdehnungskoeffizienten des Fremdsubstrats und der GaN-Schicht zur Separation führen [57]. Eine weitere Aufgabe dieser Zwischenschichten ist, die durch Heteroepitaxie bedingte hohe TDD zu verringern. Dabei werden in-situ oder ex-situ nur teilweise bedeckende SiN_x- oder SiO_2-Schichten eingebracht, die ein propagieren der Versetzungen während des Wachstums in *c*-Richtung weitgehend verhindern. Die erreichbaren TDDs variieren dabei stark je nach Prozess und bewegen sich im Bereich 10^6 - $10^8\,cm^{-2}$ für die zumeist verwendeten Verfahren, die auf epitaktischem lateralen Überwachsen beruhen (engl.: „epitaxial lateral overgrowth“, ELOG und „facet-assisted epitaxial lateral overgrowth“, FACELO). Außerordentlich niedrige TDDs werden von Motoki *et al.* [58] berichtet. Durch Einsatz ihrer „a-DEEP“[1] genannten Technik, erreichen sie ca. 50 μm breite Streifen mit einer TDD von weniger als $6 \cdot 10^3\,cm^{-2}$, zwischen denen jedoch Bereiche mit $10^7\,cm^{-2}$ TDD und großem Höhenunterschied liegen.

[1] a-DEEP: advanced dislocation elimination by epitaxial growth with inverse-pyramidal pits

Die mit HVPE gewachsenen freistehenden GaN-Substrate haben das kommerzielle Stadium bereits erreicht. Die Hauptgründe dafür waren die gegenüber dünnen heteroepitaktischen Schichten um etwa 2 Größenordnungen reduzierten TDDs und vor allem die frühe Verfügbarkeit von großflächigen (min. 2 Zoll) Substraten. Ein kommerzieller Anbieter ist z. B. die Firma Lumilog[2], Frankreich, die n-leitende 2-Zoll-Substrate mit TDDs um $2 \cdot 10^7 \mathrm{cm}^{-2}$ anbietet. Diese Substrate wurden in dieser Arbeit verwendet, der Preis pro Substrat beträgt um 1000 Euro.

3.1.2. Epitaktisches Wachstum von Gruppe-III-Nitriden

Molekularstrahlepitaxie, MBE

Bei der Molekularstrahlepitaxie (engl.: „molecular beam epitaxy“, MBE) liegen die metallischen Ausgangsstoffe als höchstreine Elemente vor und werden in Effusionszellen verdampft. Die Effusionszellen sind in einer Ultrahochvakuum(UHV)-Kammer so ausgerichtet, dass ihre Effusionsstrahlen auf dem geheizten Substrat zusammentreffen. Die atomare Zusammensetzung der gewachsenen Schicht wird über Shutter und die Temperatur der Effusionszellen geregelt, aus denen die Ausgangsstoffe atomar verdampft werden.
Im Falle der plasma-assistierten MBE (PA-MBE) für das Wachstum von Gruppe-III-Nitriden wird atomarer Stickstoff über eine Plasmaquelle aus molekularem Stickstoff erzeugt. Eine weitere Möglichkeit ist die katalytische Zerlegung von Ammoniak (NH_3) am geheizten Substrat. Dies verspricht zwar höhere Wachstumsraten, stellt allerdings auch hohe Anforderungen an die Vakuumpumpen. Die Wachstumstemperaturen für GaN in der MBE sind zwangsläufig etwa 250°C niedriger als in der MOVPE, da die Dekompositionstemperatur für GaN im Vakuum bei etwa 850°C liegt [16]. Die in der PA-MBE maximal erreichbaren Wachstumsraten für GaN sind im Bereich $1\,\mu\mathrm{m/h}$. Ein Vorteil der MBE gegenüber der MOVPE sind die durch das UHV ermöglichten insitu Charakterisierungen wie Beugung hochenergetischer Elektronen bei streifendem Einfall (engl.: „reflection high-energy electron diffraction“, RHEED), die das direkte Beobachten der kristallinen Oberflächenstruktur während der Epitaxie ermöglicht. Zudem ist es in der MBE auch kontrollierter möglich, atomar scharfe Grenzflächen und dünnste Schichtfolgen mit definierten Dicken im Monolagen-Bereich herzustellen. Eine Reihe von Forschungsinstituten beschäftigen sich mit dem Einsatz der MBE im Bereich von Laserstrukturen [59, 60]. Neben der möglichen Kostenersparnis durch einen geringeren Verbrauch an Ausgangsmaterialien, ist das Umgehen von weitreichenden Patentrechten auf dem Gebiet der MOVPE eine Hauptmotivation. Obwohl die mit MBE gewachsenen Laser schon Dauerstrichbetrieb (engl.: „continuous wave“, cw) zeigen [61, 62], ist die cw-Lebensdauer der Bauelemente mit unter 50 h noch viel zu kurz für eine kommerzielle Anwendung [60]. Der Hauptgrund dafür ist die niedrige Wachstumstemperatur, die zu einem Wachstum weit außerhalb des thermischen Gleichgewichts und damit zu einer schlechteren GaN-Materialqualität im Vergleich zu MOVPE-Schichten führt.
In der Industrieproduktion von Nitirid-basierten optoelektronischen Bauelementen

[2] http://www.lumilog.com

hat sich die MBE gegenüber der MOVPE vor allem wegen dem geringeren Produktionsdurchsatz, der durch die geringeren Wachstumsraten und die kleine Epitaxiefläche pro Run bedingt ist, und dem Fehlen von klaren Vorteilen nicht durchsetzen können. Im Bereich der Vorlaufforschung jedoch eröffnet sich durch die tieferen Wachstumstemperaturen ein Vorteil im Wachstum von hoch In-haltigen Quantenfilmen (engl.: „quantum well“, QW), da dadurch die Desorption des In von der Oberfläche unterdrückt wird. Bei der MOVPE ist man hier durch die thermische Zersetzung des Ammoniaks im unteren Temperaturbereich limitiert.
Größere Bedeutung könnte die MBE im Bereich der GaN-Elektronik erreichen. Hier wurden Rekordbeweglichkeiten in 2-dimensionalen Elektronengasen von über $160000\,\mathrm{cm^2/Vs}$ bei tiefen Temperaturen erzielt [63]. Verantwortlich für die hohen Beweglichkeiten ist wohl die gute Grenzflächenqualität und der niedrige Verunreinigungsgrad der MBE-Schichten, da die Ausgangsstoffe atomar vorliegen und damit wenig Kohlenstoff- oder Sauerstoff-Verunreinigungen aufweisen.

Metallorganische Gasphasenepitaxie, MOVPE

Die metallorganische Gasphasenepitaxie (engl.: „metal-organic vapour-phase epitaxy“, MOVPE[3]) ist das Verfahren der Wahl um GaInN-basierte optoelektronische Bauelemente herzustellen. Neben der guten Schichtqualität zählt in der industriellen Produktion vor allem der Kosten-/Zeitaufwand für das Wachstum der Wafer und für die Wartung der Maschine. Hier hat die MOVPE durch hohe Wachstumsraten, große Waferfläche pro Run, schnellen Austausch der Quellmaterialien und einfache Wartung der Reaktorbauteile einen großen Vorteil.
Abbildung 3.3 zeigt den prinzipiellen Aufbau einer MOVPE-Anlage. Die Trägergase sind entweder Stickstoff (N_2) oder Wasserstoff (H_2) und werden in den Quellen (engl.: „bubbler“) mit den Ausgangsstoffen, genannt Prekursor, angereichert. Der Gasdurchfluss wird durch Massenflussregler (engl.: „mass flow controller“, MFC) gesteuert und die Quellen mithilfe von Ventilen zu- oder abgeschaltet.
Als Prekursor für das Gruppe-V-Element Stickstoff wird überwiegend Ammoniak NH_3 benutzt, für die Gruppe-III-Elemente werden metallorganische Verbindungen wie z. B. Trimethylgallium [TMGa $\equiv$ $Ga(CH_3)_3$] verwendet.
Das Kristallwachstum bei der Gasphasenepitaxie verläuft wie folgt:
Die Prekursoren werden über Gaszuführungen in den Reaktor geleitet, im Gasstrom zum heißen Substrat transportiert und pyrolisieren dort unter Bildung von verschiedenen Zwischenprodukten (z. B. CH_4, NH_2) zu elementarem Ga und N. Über Diffusion adsorbieren Ga, N und manche Zwischenprodukte (z.B. Ga-CH_3, NH) an der Substrat-Oberfläche und reagieren dort zum Festkörper. Die gasförmigen Reaktionsprodukte desorbieren und diffundieren in den ausfließenden Gasstrom. Die Bruttoreaktionsgleichung kann als

$$Ga(CH_3)_{3\,(gas)} + NH_{3\,(gas)} \Rightarrow GaN_{\,(fest)} + 3\,CH_{4\,(gas)}$$

geschrieben werden. Ist die Wachstumstemperatur niedrig, so limitiert die thermische Zersetzung der Prekursoren das Ga- bzw. N-Angebot und damit die Wachstumsra-

[3] Alternative Bezeichnungen sind „metal-organic chemical vapour deposition“, MOCVD oder selten auch „organo-metallic vapour-phase epitaxy“, OMVPE.

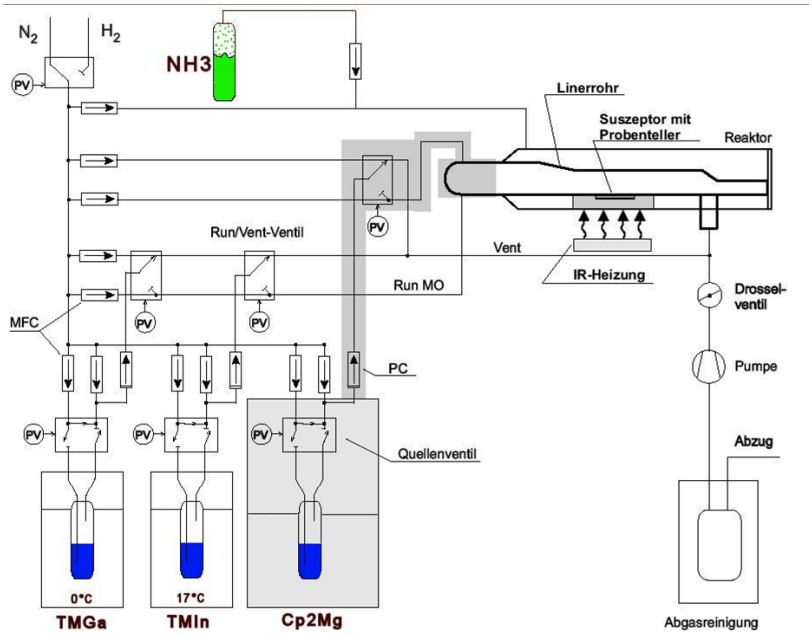


Abbildung 3.3: *Schematischer Aufbau einer MOVPE-Anlage.*

te. Dieser Temperaturbereich wird *kinetisch kontrollierter Bereich* genannt. Der für das Wachstum bevorzugte Bereich ist der *diffusionskontrollierte Bereich*, bei dem der Massentransport der Ausgangsstoffe durch Diffusion zur Wachstumsoberfläche limitiert wird. Die Diffusion ist in erster Näherung temperaturunabhängig und die Wachstumsrate somit konstant. Bei höheren Temperaturen nimmt die Wachstumsrate durch zunehmende Desorption der Reaktanden oder durch wachstumshemmende Vorreaktionen wieder ab.
Durch die Zwischenprodukte bei der Zersetzung der Prekursoren treten Probleme bei der p-Dotierung mit Mg auf. Die Adsorption und Diffusion von atomarem Wasserstoff aus der Zersetzung von NH_3 führt zur Bildung von neutralen Mg-H Komplexen, die den Mg-Akzeptor passivieren [64]. Erst 1989 bzw. 1992 fanden Amano *et al.* [65] bzw. Nakamura *et al.* [64] Möglichkeiten, den Wasserstoff aus dem Komplex zu entfernen und so die p-Leitung zu aktivieren. Amano aktivierte die Proben durch Bestrahlung mit einem niederenergetischen Elektronenstrahl (engl.: „low energy electron beam irradiation“, LEEBI), Nakamura durch thermische Behandlung in einer N_2-Atmosphäre bei über 600°C.

3.1.3. Herstellung der Proben

Zur Herstellung der Proben dieser Arbeit wurde ein 2-Zoll-Ein-Wafer-Reaktor AIXTRON AIX 200/RF mit induktiver Suszeptorheizung und horizontalem Reaktordesign genutzt, dessen Zuleitungssystem in Abb. 3.3 und dessen prinzipieller Reaktoraufbau in Abb. 3.4 dargestellt werden.
Als Prekursor für das Gruppe-V-Element Stickstoff wird Ammoniak NH_3 benutzt, welcher in der Run-Hydrid-Leitung mit dem Trägergas vermischt wird. Die Run-Dopant-Leitung führt die Prekursoren der Dotierstoffe Silizium und

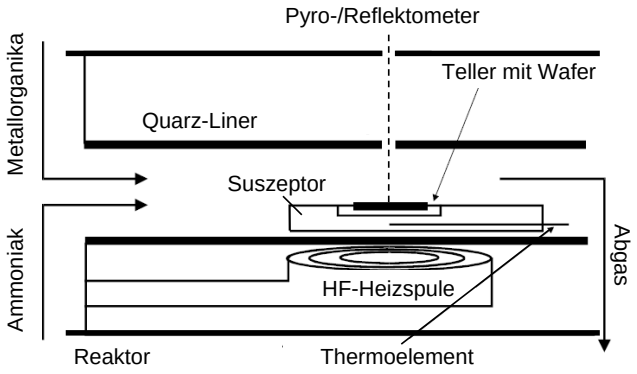


Abbildung 3.4: *Schematischer Aufbau des MOVPE-Reaktors.*

Magnesium zum Reaktor, diese sind Silan (SiH_4) für die n-Dotierung und Bis(cyclopentadienyl)magnesium (Cp_2Mg) für die p-Dotierung. Für die Gruppe-III-Elemente werden die metallorganischen Verbindungen Trimethylgallium [TMGa $\equiv$ $Ga(CH_3)_3$], Triethylgallium [TEGa $\equiv$ $Ga(C_2H_5)_3$], Trimethylindium (TMIn) und Trimethylaluminium (TMAl) als Prekursor verwendet.
Um die mit dem Trägergas transportierte Prekursormenge zu regeln, kann die Temperatur und der Druck in den Quellen verändert werden. Beides beeinflusst den Partialdruck des Prekursors in der Gasphase und hat damit direkten Einfluss auf die Sättigung des Trägergases. Die Prekursoren der einzelnen Gruppe-III-Elemente werden dann zur Run- oder Vent-MO-Leitung geführt und dort gemischt. Dabei steuert ein Ventil, ob der Prekursor über die Vent-Leitung direkt in das Abgas geleitet wird, oder aber über die Run-Leitung in den Reaktor. Diese Konfiguration erlaubt durch den Vorlauf in die Vent-Leitung das Einpendeln stabiler Gasgemische und -flüsse und gleichzeitig über das Run/Vent-Ventil ein schnelles Zu- und Abschalten der einzelnen Prekursoren in den Reaktor. Dies ist die Voraussetzung für des Wachstum von Heterostrukturen mit Dicken der Einzelschichten im Nanometerbereich.
Die Prekursoren werden in den Liner eingeleitet und reagieren, wie oben beschrieben, über dem heißen Suszeptor zu GaN. Die entstehenden Restgase werden über die Abgasleitung abgesaugt. Bevor der Abgasstrom über die Reinigung ins Freie geleitet wird, strömt er durch ein Drosselventil welches den Reaktordruck regelt, siehe Abb. 3.3.
Das Substrat liegt in einem Teller, der durch einen Gasstrom in Rotation versetzt wird. Die Heizung des Substrats erfolgt induktiv durch die Hochfrequenz-Heizspule, die in den SiC-beschichteten Graphit-Suszeptor einkoppelt. Die maximal erreichbare Temperatur beträgt mit diesem Aufbau etwa 1150°C und wird über ein Thermoelement im Suszeptor geregelt. Der Suszeptor ist von einem Liner aus Quarz umgeben, der leicht austauschbar ist, für einen laminaren Gasstrom sorgt und die parasitäre Deposition von GaN am Reaktor selbst verhindert. Außerhalb des Reaktors ist direkt über dem Substrat ein Laytec EpiTT Pyro- und Reflektometer angebracht, das unter senkrechtem Einfall bei Wellenlängen von 950 und 633 nm misst. Über ein Fenster am Reaktor und durch ein Loch im Liner ist es damit möglich, in-situ die reale Temperatur und vor allem die Wachstumsrate und Rauigkeit der Schicht zu bestimmen. Die per Pyrometer bestimmte reale Wachstumstemperatur liegt bei

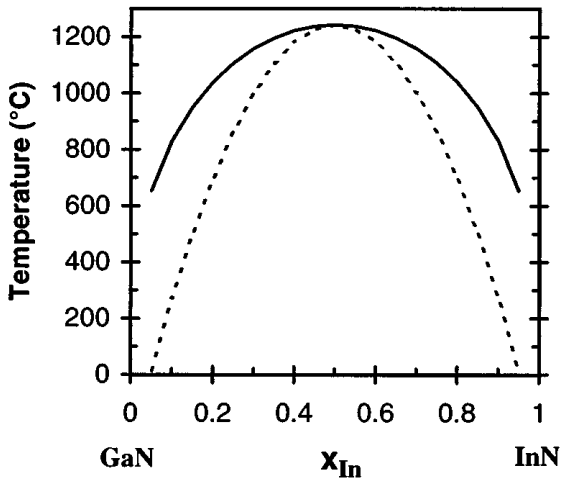


Abbildung 3.5: *Von Ho und Stringfellow berechnetes Phasendiagramm für $Ga_{1-x}In_xN$ [66]. Unterhalb der durchgezogenen Linie kommt es zur binodalen Entmischung, unterhalb der gestrichelten zur spinodalen Entmischung.*

hohen Temperaturen um 1000°C etwa um 25°C unter der über das Thermoelement geregelten Temperatur. Der Grund dafür ist die Rotation des Tellers auf dem Gasstrom, wodurch der direkte Kontakt mit dem Suszeptor unterbrochen wird. Wenn nicht anders angegeben, werden in dieser Arbeit die Regeltemperaturen des Thermoelements als Grundlage verwendet.
Die Wachstumstemperaturen betragen für GaN-Schichten zwischen 1000°C und 1100°C, und sind somit im diffusionskontrollierten Bereich. Bei diesen Temperaturen zersetzen sich die Metallorganika vollständig, Ammoniak jedoch nur teilweise. Um die Oberfläche der GaN-Schicht zu stabilisieren, ist allerdings ein hoher Stickstoffpartialdruck notwendig. Dies erfordert hohe NH_3-Flüsse und damit hohe Prekursor-V/Prekursor-III-Verhältnisse im Bereich von 500 - 1000. Für das Wachstum von GaInN sind noch höhere V/III-Verhältnisse im Bereich 20.000 erforderlich, da die geringere thermische Stabilität von InN eine deutlich niedrigere Wachstumstemperatur (750 - 850°C) erfordert, was zu einer verminderten NH_3 Zerlegung führt. Das Wachstum von GaInN findet damit in Bezug auf die Stickstoff-Komponente im kinetisch kontrollierten Bereich statt, allerdings steht meist das Erreichen eines bestimmten In-Gehalts im Vordergrund, so dass das Wachstum von GaInN hauptsächlich von der Desorption des In bestimmt wird, siehe dazu auch Abschnitt 4.3.

Die niedrige Wachstumstemperatur im Bereich um 800°C für die GaInN-Schichten kann außerdem zu einer Phasenseparation des GaInN führen: Ho und Stringfellow [66] berechneten auf Basis der unterschiedlichen Atomabstände in GaN und InN eine Mischungslücke im Phasendiagramm von GaInN, siehe Abb. 3.5.
Oberhalb der durchgezogenen Linie (*Binodale*) lassen sich GaN und InN homogen über den gesamten Kompositionsbereich mischen. Zwischen der durchgezogenen und der gestrichelten Linie (*Spinodale*) existiert ein metastabiler Bereich, bei dem binodale Entmischung auftritt. Dies bedeutet, dass das System stabil gegenüber infinitesimalen

Konzentrationsfluktuationen ist, allerdings durch Nukleationskeime zur Entmischung gebracht werden kann. Bei Wachstumstemperaturen unterhalb der gestrichelten Linie kommt es dagegen direkt zu einer spinodalen Entmischung, die spontan einsetzt.
In der Literatur wird diskutiert, dass unter anderem das Auftreten von aufgrund dieser Mischungslücke entstehenden Konzentrationsfluktuationen zur hohen Lumineszenz-Effizienz von In-haltigen Gruppe-II-Nitriden führt, wie in Kapitel 6.3 ausführlich diskutiert wird. Bei Wachstumstemperaturen um 800°C liegt die Grenze zwischen homogener Mischbarkeit und binodaler Entmischung bei einem In-Gehalt von etwa 10%, was dem In-Gehalt der Quantenfilme von der Mehrzahl der LED-Strukturen dieser Arbeit entspricht. Es ist also möglich, dass bei unseren Proben Phasenseparation auftritt, worauf in Kapitel 7.2.2 eingegangen wird.

Verwendete Substrate

Für die Optimierung des Schichtaufbaus der LED-Struktur wurden überwiegend Proben direkt auf Saphir mit einer Niedertemperatur-Nukleation gewachsen. Die mit diesem Verfahren erreichbare minimale TDD liegt im Bereich $1 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$. Um den Einfluss der TDD auf die LED-Charakteristika zu untersuchen, wurden zusätzlich sowohl defekt-reduzierte GaN-Templates auf Saphir (ultra low dislocation templates, ULD) als auch HVPE-gewachsene freistehende GaN-Substrate (FS-GaN) eingesetzt. Saphir ist das bei der GaN-Epitaxie zur industriellen LED-Herstellung am meisten verwendete Substrat. Er ist aufgrund der hohen Bandlücke von 9,9 eV transparent, allerdings dadurch ein Isolator und hat eine niedrige thermische Leitfähigkeit von $0{,}3\,\mathrm{W(cm\,K)}^{-1}$. Dies erfordert im Forschungsbereich und bei der Produktion von extrem kostengünstigen LEDs ein laterales LED-Design, also das Anbringen der metallischen p- und n-Kontakte auf der gleichen Seite des Bauteils. Beim Übergang zu High-Power-LEDs, die eine Fläche von etwa $1\,\mathrm{mm}^2$ haben, ist das laterale Design durch *current crowding* limitiert, welches die unzureichende Stromverteilung beschreibt. Eine Möglichkeit dies zu umgehen, ist das Ablösen des Saphir-Substrats nach der Epitaxie mit Hilfe eines technologisch sehr aufwändigen und teuren *Laser-Lift-Off(LLO)*-Prozesses, [67, 68]. Dieser Prozess ermöglicht sowohl die vertikale Kontaktierung als auch eine Steigerung der Extraktionseffizienz, siehe dazu Kapitel 6.2.3.
Saphir hat eine rhomboedrische Kristallstruktur, welche allerdings durch eine hexagonale Zelle beschrieben werden kann, die größer als die rhomboedrische Einheitszelle ist. Auf *c*-plane Saphir wächst GaN in *c*-plane Richtung mit einer in-plane Verdrehung von 30° gegenüber dem Sauerstoffuntergitter des Saphirs: (0001)GaN||(0001)Saphir und $[1\bar{1}00]$GaN$||[11\bar{2}0]$Saphir, siehe Abb. 3.6.
Betrachtet man die hexagonale Einheitszelle der Basalebene des Saphir, so beträgt die Gitterfehlanpassung zu GaN 33%. Durch die 30° Drehung jedoch ergibt sich eine effektive Gitterfehlanpassung von 16%:

$$\frac{2\cos(30°)\,a_{0(\mathrm{GaN})} - a_{0(\mathrm{Saphir})}}{a_{0(\mathrm{Saphir})}} = 16,1\%$$

Aufgrund der hohen Gitterfehlanpassung kann kein pseudomorphes (verspanntes) Wachstum stattfinden und die Herstellung defektarmer Kristallschichten ist nicht

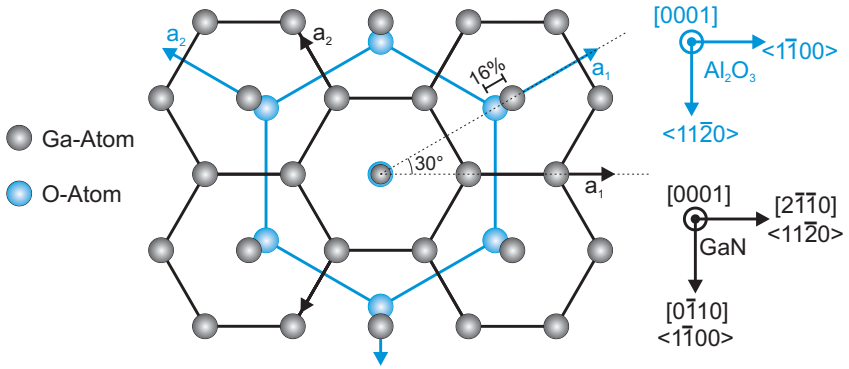


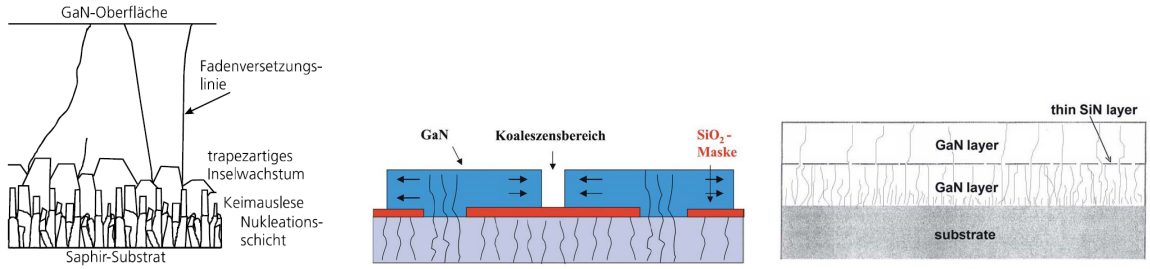
Abbildung 3.6: *Schematische Darstellung des in der Ebene der Substratoberfläche um 30° verdrehten GaN-Gitters auf Saphirsubstrat.*

möglich. Deshalb ist mit dem Wachstum von der ersten Monolage schon die kritische Schichtdicke erreicht und die Schicht relaxiert unter Bildung einer hohen Anzahl ($>10^{10}\,\mathrm{cm}^{-2}$) von Fehlanpassungsversetzungen. Erst mit der Entwicklung der AlN- oder GaN-Niedertemperatur-Nukleation konnten qualitativ hochwertige GaN-Schichten gewachsen werden, Abb. 3.7(a) [69, 70].
Obwohl die GaN-Schicht relaxiert aufwächst, entstehen beim Abkühlen auf Raumtemperatur Verspannungen durch die unterschiedlichen Wärmeausdehnungskoeffizienten von GaN und Saphir, siehe Tab. 3.1. Da Saphir den höheren Wärmeausdehnungskoeffizienten hat, sind GaN-Schichten auf Saphir bei Raumtemperatur kompressiv verspannt. Dies führt zu einer Wölbung des Wafers, die im Ausmaß von der Dicke des Saphir-Wafers und der GaN-Schicht abhängt. Bei Raumtemperatur haben Standard-LEDs auf 330 μm dickem Saphir mit ca. 4,5 μm GaN-Schichtdicke einen Hub von 50 μm in der Mitte, also konvexe Form. Bei identischer Epitaxie-Struktur und nur 100 μm dicken Saphir-Substraten beträgt der Hub 200 - 500 μm.

Material	GaN	Saphir	SiC
Wärmeausdehnungs-koeffizient bei RT (10^{-6}/K)	5,59	7,50	4,46

Tabelle 3.1: *Übersicht über die wichtigsten Wärmeausdehnungskoeffizienten*

Eine über die Niedertemperatur-Nukleation hinausgehende Qualitätsverbesserung kann durch den Einsatz von ELOG-Verfahren erzielt werden, siehe Abb. 3.7(b). Dieses Verfahren wurde 1997 von Nakamura *et al.* [71] angewandt, um die Lebensdauer von auf Saphir gewachsenen Lasern zu steigern. Dabei wird das GaN-Wachstum nach 2 μm unterbrochen und ex-situ lithografisch eine SiO_2-Maske mit 7 μm breiten Streifen und 4 μm breiten Öffnungen aufgebracht. Das GaN wächst bei der Fortsetzung des Wachstums nur in den Öffnungen weiter, auf der Maske findet keine GaN-Deposition statt. Nachdem das GaN durch die Öffnungen gewachsen ist, werden auch die SiO_2-Streifen lateral überwachsen. Im Laufe des weiteren Wachstums bildet sich eine homogene und glatte Oberfläche aus. Die TDD jedoch variiert von $2 \cdot 10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ über den SiO_2-Stegen bis $10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ über den Öffnungen und dem Bereich der Koaleszenz,



(a) (b) (c)

Abbildung 3.7: *Schematische Abbildung des Verlaufs von Versetzungen bei (a) der konventionellen Niedrigtemperatur-Nukleation, (b) dem zusätzlichen Einsatz von ELOG-Verfahren und (c) beim ULD-Verfahren.*

also dort wo das GaN über den Stegen zusammenwächst. Generell sind über das Ein-Schritt(1S)-ELOG TDDs bis unter $10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ möglich, allerdings immer nur oberhalb der SiO_2-Stege. Damit eignen sich die Substrate zwar für Laserdioden, die nur eine schmale streifenförmige Laserrippe mit einer Breite im Bereich $2-4\,\mu$m und einer Länge von $300-600\,\mu$m nutzen, sind aber für grossflächige Bauelemente wie LEDs ($200\times200\,\mu\mathrm{m}^2$ bis $1\times1\,\mu\mathrm{m}^2$) ungeeignet. Mit den Weiterentwicklungen 2S-ELO und FACELO lassen sich entweder über das wiederholte Aufbringen einer zweiten, anders platzierten Maske oder einer Variation der Wachstumsparameter während des Überwachsens die TDD ganzflächig reduzieren. Zumindest im Fall des 2S-ELO mit 2. Maske bedeutet das allerdings einen deutlich höheren, technologischen Aufwand. Die TDD kann bis in den Bereich um $10^6\,\mathrm{cm}^{-2}$ reduziert werden [72, 73, 74].
Angelehnt an die ELOG-Verfahren zeigt Abbildung 3.7(c) einen weiteren Prozess zur Defektreduktion, der auf der in-situ Abscheidung einer amorphen nicht geschlossenen SiN-Schicht basiert und Si/N-Prozess benannt ist [75, 76]. Der große Vorteil ist das Wegfallen des sequentiellen Wachstums und des lithographischen Prozessierungsaufwandes, die beide zusätzlich die Gefahr von Verunreinigungen in der Epitaxieschicht steigern. Bei diesem Verfahren wird direkt auf dem Substrat oder nach einer bestimmten Dicke das GaN-Wachstum unterbrochen, indem der TMGa-Fluss abgeschaltet wird. Für die SiN-Schicht wird neben NH_3 nur SiH_4 als Prekursor verwendet, wobei die Depositionsdauer so gewählt werden muss, dass keine vollständig geschlossene Schicht entsteht, sondern die Schicht statistisch verteilte Öffnungen aufweist. Im nächsten Schritt wird das GaN-Wachstum fortgesetzt und dabei die Versetzungen, wie bei den ELOG Verfahren, unter dem SiN blockiert. Das darüber wachsende GaN ist nahezu defektfrei und nur Versetzungen über den SiN-Öffnungen stoßen bis zur Oberfläche durch. Ganzflächig kann so die mittlere Defektdichte auf $7\cdot10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ reduziert werden [76]. GaN-Templates mit dieser Art der Defektreduktion werden kommerziell unter dem Namen ULD-Templates von der Firma Lumilog vertrieben. Der Preis für die 2-Zoll-Templates mit ca. $11\,\mu$m GaN-Schichtdicke und einer typischen TDD um $8\cdot10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ beträgt derzeit etwa 700 Euro.

3.2. Strukturelle und chemische Analyse

In diesem Abschnitt werden die zur Kontrolle der epitaktischen Schichten(folgen) wichtigsten Charakterisierungsmethoden eingeführt. Zur strukturellen Analyse der Substrate und Epitaxieschichten wird die hochaufgelöste Röntgenbeugung genutzt, die es ermöglicht, die Kristallqualität zu beurteilen. Neben der kristallographischen Güte der epitaktischen Schichten ist eine Kontrolle von Dotierprofilen und Schichtkompositionen für das Herstellen von Bauteilen nötig. Diese Analyse ist mittels Sekundärionen Massenspektrometrie möglich.

3.2.1. Hochaufgelöste Röntgenbeugung

Die hochaufgelöste Röntgenbeugung (engl.: „high resolution X-ray diffraction“, HR-XRD) wird benutzt, um die Gitterparameter von Kristallen und Kristallschichten zu bestimmen. Dazu wird Röntgenstrahlung der Cu-K_{α_1}-Linie mit $\lambda = 1{,}54059$ Å verwendet. Das verwendete Geräte ist mit einem Ge-Zweifach-Monochromator im Primärstrahl und mit einem Ge-Dreifach-Monochromator auf der Detektorseite ausgerüstet, die für eine monochrome Cu-K_{α_1}-Strahlung mit geringer Divergenz sorgen. Der gerichtete und monochromatisierte Röntgenstrahl trifft auf die Probe und wird am Kristallgitter entsprechend der Bragg-Bedingung gebeugt. Die Probe befindet sich in einer Eulerwiege, was eine Orientierung in jede beliebige Raumrichtung ermöglicht. Mit Hilfe der Eulerwiege wird der Winkel ω zwischen Probenoberfläche und dem einfallenden Strahl eingestellt. Der am Kristallgitter der Probe gebeugte Strahl wird dann auf der Winkelposition 2θ bezüglich des einfallenden Strahls detektiert. Dabei ist die Grundlage der Röntgenbeugung die Bragg-Gleichung:

$$\lambda = 2d_{hkl} \cdot \sin(\theta_{hkl})$$

mit Wellenlänge λ, Netzebenenabstand d_{hkl} und Beugungswinkel an den Netzebenen für den Reflex hkl θ_{hkl}.
Der schematische Aufbau der zur Messung benutzten Anlage ist in Abb. 3.8 gezeigt. Durch das heteroepitaktische Wachstum entstehen einzelne Keiminseln, die zu Kristalliten anwachsen. Durch Prozesse wie der Relaxation zum Abbau von Gitterfehlanpassungen entstehen leicht Verkippungen (engl.: „tilt“) und Verdrehungen (engl.: „twist“) der Kristallite zueinander. Bei fortschreitendem Wachstum bildet sich eine geschlossene Gruppe-III-Nitridschicht aus, jedoch kommt es dabei zur Ausbildung von Kleinwinkel-Korngrenzen zwischen den Kristalliten. Die Korngrenzen werden durch Versetzungen ausgeglichen, wobei *tilt*-Korngrenzen zu Stufenversetzungen und solche mit *twist*-Charakter zu Schraubenversetzungen führen. Je größer die einzelnen Kristallite und je geringer die Verkippung und Verdrehung gegeneinander ist, desto weniger Versetzungen entstehen und desto besser ist die Schichtqualität.
Im Rahmen dieser Arbeit wurden hauptsächlich ω-Scans (engl.: „rocking curves“), ω-2θ-Scans und reziproke Gitterkarten (engl.: „reciprocal space map“, RSM) genutzt, um die Epitaxieschichten zu charakterisieren. Beim ω-Scan wird der Einfallswinkel ω zwischen Quelle und Probe variiert, während der Ausfallswinkel 2θ konstant gelassen wird. Die Halbwertsbreite (engl.: „full width at half maximum“, FWHM) des ω-Scans

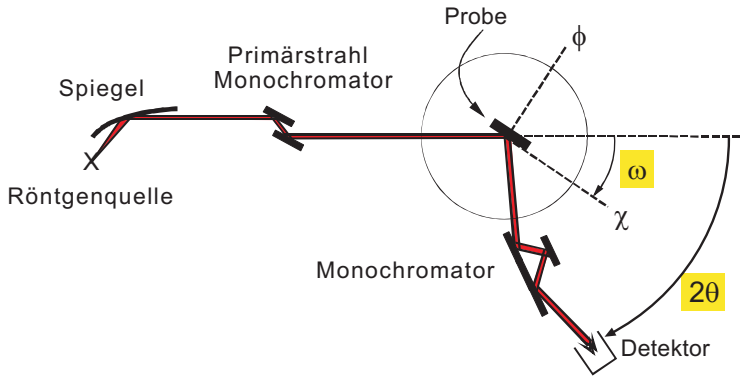


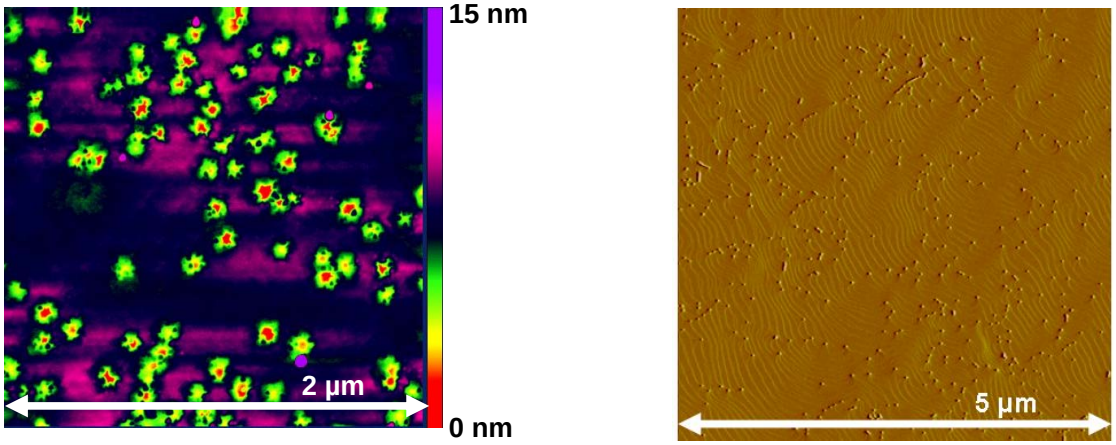
Abbildung 3.8: *Schematischer Aufbau der HRXRD zur Strukturanalyse [77].*

ist ein Maß für die Ausrichtung der einzelnen Kristallite und damit für die Schichtqualität der Epitaxieschicht. Je stärker diese gegeneinander verkippt oder verdreht sind, desto größer ist die Verbreiterung. Dabei sind die FWHM der symmetrischen Reflexe 00.l ein Maß für die Anzahl an Schrauben- und gemischten Versetzungen, die der asymmetrischen Reflexe (meistens 10.0 oder 10.5) für Stufen- und gemischte Versetzungen. Eine zusätzliche Verbreiterung der FWHM des ω-Scans entsteht durch die endliche Größe der Kristallite und durch gewölbte Wafer.
Beim ω-2θ-Scan werden sowohl ω als auch θ so variiert, dass die Bragg-Bedingung stets erhalten ist. Dieser Scan ermöglicht die Bestimmung von Materialkompositionen, Übergitterperioden und Schichtdicken, wobei allerdings der Einsatz von Simulationsrechnungen zur Auswertung nötig ist. Bei Scans an symmetrischen Reflexen kann der c-Gitterparameter bestimmt werden. Zur direkten Bestimmung des a-Gitterparameters allerdings ist ein Reflex des Typs hk.0 nötig (also Kristallnetzebenen senkrecht zur Probenoberfläche), welche in Reflexionsgeometrie sehr schwer zugänglich sind. Über die asymmetrischen Reflexe $hk.l$ jedoch lässt sich das c/a-Verhältnis messen und damit, zusammen mit c, auch a bestimmen. Durch Kenntnis der elastischen Materialparameter kann nun auf die vollständig relaxierten Gitterparameter zurückgerechnet werden. Letztlich lässt sich mithilfe der Vegard'schen Regel die Schichtkomposition, bzw. der In- oder Al-Gehalt einer ternären Schicht bestimmen.
Analog zur optischen Beugung an Gittern, führen einzelne Schichten und Übergitter zu Interferenzmustern (engl.: „fringes“), durch Interferenz der reflektierten Röntgenstrahlung. Über Anpassen des aus der nominellen Schichtstruktur errechneten Interferenzprofils an das Experiment können so die genauen Schichtdicken und Kompositionen bestimmt werden.
Bei einer reziproken Gitterkarte wird der gesamte reziproke Raum um einen Netzebenenreflex durch Variation von ω/ω-2θ abgescannt und ermöglicht damit die Kontrolle über den Relaxationsgrad einzelner Epitaxieschichten. Vollständig verspannte Schichten haben den gleichen a-Gitterparameter wie die Unterlagen, unterscheiden sich jedoch im c-Gitterparameter. Folglich liegen die zugehörigen Reflexe auf einer Geraden mit gleichen reziproken a-Koordinaten, aber verschiedenen reziproken c-Koordinaten. Im Falle einer komplett relaxierten Schicht weichen durch die unterschiedliche Schicht-

komposition sowohl a- als auch c-Gitterparameter ab, die Reflexe liegen dann auf einer Geraden, die durch die Vegard'sche Regel beschrieben ist (sofern bei der Materialkomposition anwendbar). Da man eine Aussage über sowohl a- als auch c-Gitterparameter benötigt, machen RSMs zu diesem Zweck nur an asymmetrischen Reflexen wie dem 10.5-Reflex Sinn.

3.2.2. Sekundärionen-Massenspektrometrie

Mit der Sekundärionen-Massenspektrometrie (engl.: „secondary ion mass spectrometry", SIMS) ist es möglich, Halbleiterschichten auf ihre chemische Zusammensetzung hin tiefenaufgelöst zu untersuchen. Wichtig wird dies bei der Kontrolle von Dotierprofilen, Schichtdicken und der genauen Zusammensetzung von ternären Schichten. Das verwendete Gerät ist eine Quadrupol FEI–Atomika SIMS 4500.
Bei der SIMS-Messung werden energiereiche Primärionen wie Cs^+ oder O_2^- als fokussierter Ionenstrahl verwendet, um die Probenoberfläche mittels Ionenbeschuss abzurastern und abzutragen. Dieser Vorgang erzeugt unter anderem geladene Sekundärionen, die mit einem Massenspektrometer detektiert werden. Gemessen wird die Zählrate für eine oder mehrere Ionensorten über der Abtragszeit. Die Zählrate der ionisierten Sekundärionen ist proportional zu ihrer Konzentration im Kristall. Die Tiefenskala wird über die Zeitachse der Abtragrate und die Tiefe des entstandenen Kraters errechnet. Um ein genaues Tiefenprofil einer Probe zu erhalten, müssen allerdings die materialabhängigen Abtragraten nach der Messung rechnerisch korrigiert werden.
Die quantitative Bestimmung der Konzentrationen der einzelnen Materialien erfolgt mit Hilfe von Kalibrierschichten. Hierzu können einerseits Schichten verwendet werden, deren Zusammensetzung mit unabhängigen quantitativen Analyseverfahren, z. B. energiedispersiver Röntgenspektroskopie (engl.: „energy dispersive X-ray spectroscopy", EDX) oder HRXRD für Al- und In-Gehalte in AlGaN bzw. GaInN, ermittelt wurde. Andererseits können sie durch genau quantifizierte Ionenimplantation in eine GaN-Matrix hergestellt werden. Mit der SIMS lassen sich hohe Tiefenauflösungen von maximal 2 nm erreichen. Die Tiefenauflösung begrenzende Parameter sind die Rauigkeit der Probenoberfläche, eine wegen der statistischen Natur des Zerstäubungsprozesses steigende Rauigkeit des Kraterbodens mit zunehmender Abtragdauer, sowie eine von der Energie der Primärionen abhängige Durchmischung der Gitteratome durch Stöße mit den Primärionen. Voraussetzung für das Bestimmen von Zusammensetzungen von insbesondere dünnen Schichten ist, dass die Schichtdicke größer als die SIMS-Tiefenauflösung ist, und damit Volumenkonzentration und Schichtdicke gemessen werden können. Wenn das Signal eine Bestimmung der Volumenkonzentration nicht zulässt, gibt SIMS nur die Flächendichte der detektierten Elemente an. Das Verhältnis zwischen Haupt- und Hintergrundsignal der detektierten Ionen bestimmt die Nachweisgrenze. Sie ist elementabhängig und kann als Untergrenze $10^{14}\,\mathrm{cm}^{-3}$ betragen, bei den in dieser Arbeit untersuchten Elementen Al, In, Mg und Si liegt sie im Bereich von 10^{16} - $10^{17}\,\mathrm{cm}^{-3}$.



(a) (b)

Abbildung 3.9: *(a) AFM-Höhenbild einer auf Saphir gewachsenen LED-Struktur nach der EPD-Ätzung und (b) AFM-Amplitudenbild einer 20 nm dicken GaInN-Schicht mit 9% In.*

3.2.3. Bestimmung der Versetzungsdichte

Die TDD wurde über Auszählung der Ätzgrubendichte (engl.: „etch-pit density“, EPD) oder der Wachstumsgrubendichte (engl.: „growth-pit density“, GPD) bestimmt. Für die EPD-Messung wurden die Proben bei unserem Projektpartner Universität Ulm in einem Aixtron HVPE-Reaktor bei 600°C einer HCl:N_2 10:90 Atmosphäre bei einem Druck von 940 mbar ausgesetzt und dadurch angeätzt [78]. Alternativ kann das Ätzen auch durch geschmolzenes Kaliumhydroxid (KOH) oder heiße Phosphorsäure (H_3PO_4) geschehen [79]. Das Ätzen des GaN geschieht dort, wo die Kristallstruktur durch die zur Oberfläche durchstoßenden Versetzungen gestört ist und führt dort zu deutlich sichtbaren Ätzgruben. Die verschiedenen Versetzungstypen sind durch unterschiedlich tiefe Ätzgruben in Rasterkraftmikroskopie-Aufnahmen (engl.: „atomic force microscopy“, AFM) zu unterscheiden. Dabei zeigen Schraubenversetzungen die tiefsten Gruben, gemischte Versetzungen zeigen mittlere Tiefen und Stufenversetzungen sehr flache. Problematisch ist diese Unterscheidung bei einer geringen TDD, da hier die Auflösung durch den nötigen großen AFM-Scanbereich niedrig ist. Abbildung 3.9(a) zeigt die AFM-Aufnahme einer mit HCl angeätzten LED-Struktur auf Saphir. Deutlich sind die Ätzgruben mit verschiedener Tiefe zu erkennen. Die Auswertung ergab eine TDD von insgesamt $2,2 \cdot 10^9 \mathrm{cm}^{-2}$, wovon $1,1 \cdot 10^9 \mathrm{cm}^{-2}$ Stufenversetzungen, $6,3 \cdot 10^8 \mathrm{cm}^{-2}$ gemischte Versetzungen und $4,7 \cdot 10^8 \mathrm{cm}^{-2}$ Schraubenversetzungen sind. Die Dichte der reinen Schraubenversetzungen erscheint hier sehr hoch. In der Literatur wird ihr Anteil an der gesamten TDD bei MOVPE-gewachsenen Proben zwischen 0,1% und 4% gesehen [80, 79]. Es scheint mittlerweile jedoch Konsens zu sein, dass alle Versetzungstypen als nichtstrahlende Rekombinationszentren wirken, so dass die genauere Unterscheidung in Bezug auf die Betrachtung der strahlenden Ausbeute nicht unbedingt erforderlich ist [81, 82].
Die GPD ist ein epitaktisches Verfahren, bei dem eine mindestens 20 nm dicke GaInN-Schicht in der MOVPE aufgewachsen wird. Durch die tiefe Wachstumstemperatur

entstehen an den durchstoßenden Versetzungen Wachstumsgruben (*V-pits*), die mit steigender GaInN-Schichtdicke größer werden und leicht in AFM-Aufnahmen ausgezählt werden können [83, 72]. Abbildung 3.9(b) zeigt die AFM-Amplitudenaufnahme einer 20 nm dicken GaInN Schicht mit 9% In auf Saphir. Auch hier sind deutlich die *V-pits* zu erkennen, deren Auszählung eine TDD von $2,2 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ ergab, was sehr gut mit den per EPD gemessenen Werten übereinstimmt. Eine Trennung der einzelnen Versetzungstypen ist mit der GPD nicht möglich.

3.2.4. Substratabhängige Versetzungsdichten

Die TDD der in dieser Arbeit verwendeten Saphir-, ULD-Template und FS-GaN-Substrate sowie der darauf abgeschiedenen epitaktischen Strukturen, ist in Tabelle 3.2 zusammengefasst. Die Details zur Erzielung der niedrigen TDD auf den einzelnen Substraten werden in den nachfolgenden Kapiteln vermittelt.

	Saphir	**ULD-Templates**	**FS-GaN-Substrat**
LED-Oberfläche	$*40-220$	10	bis 14
Puffer unter QW	$40-230$	9	$2,3-6,6$
Substrat	-	$7-9$	$2-6$

Tabelle 3.2: *TDD (in $10^7\,cm^{-2}$) der Saphir-, ULD-Template und FS-GaN-Substrate sowie der darauf abgeschiedenen epitaktischen Strukturen. *Bei LED-Strukturen mit optimiertem Puffer auf Saphir wurde keine Auswertung der TDD der kompletten Struktur gemacht, so dass der untere Wert von $4 \cdot 10^8$ nur angenommen werden kann.*

Diese TDD führt zu folgenden HRXRD Halbwertsbreiten:

	Saphir	**ULD-Templates**	**FS-GaN-Substrat**
FWHM 002	285	400	170
FWHM 006	250	220	131
FWHM 100	$780-880$	200	335

Tabelle 3.3: *FWHM (in arcsec) ausgewählter symmetrischer und asymmetrischer HRXRD Reflexe im ω-Scan.*

3.3. Optische und elektrooptische Charakterisierung

Nachdem im vorangegangenen Abschnitt die zur Herstellung der Schichten wichtigen Analysemethoden vorgestellt wurden, werden in diesem Abschnitt die zur Charakterisierung der LED-Parameter wichtigen Methoden dargestellt. Im ersten Teil wird eine kurze Einführung über wichtige Effizienz- und Leistungsbegriffe im Zusammenhang

mit Leuchtdioden gegeben. Danach wird die Photolumineszenz als kontaktlose optische Methode vorgestellt, die innerhalb von Minuten nach Ende der Epitaxie eine erste zuverlässige Aussage über die Emissionswellenlänge und Effizienz der strahlenden Ladungsträgerrekombination im QW erlaubt. Als zweiter Schritt folgt die Elektrolumineszenz, die als wichtigste Charakterisierungsmethode für LED-Strukturen eine endgültige Aussage über die Leistungsdaten der Strukturen liefert.

3.3.1. Einführung in Leistungen und Effizienzen bei Leuchtdioden

Die Leistungs- und Effizienzsteigerung ist der zentrale Punkt für die Forschung an den LEDs. Im Folgenden wird eine kurze Übersicht über die nötigen physikalischen Größen und deren Zusammenhänge im Kontext mit der Leistung und Effizienz von LEDs gegeben.
Der Leistungswirkungsgrad η_{WPE} (engl.: „wall-plug efficiency“, WPE) ist der umfassendste Begriff, der die Gesamteffizienz einer LED beschreibt. Er gibt das Verhältnis von emittierter optischer Leistung P_{EL} zu injizierter elektrischer Leistung P_{elek} an.

$$\eta_{\mathrm{WPE}} = \frac{P_{\mathrm{EL}}}{P_{\mathrm{elek}}} = \frac{\Phi_{\mathrm{phot}}\, E_{\mathrm{phot}}}{U\, I} = \frac{\Phi_{\mathrm{phot}}\, h\nu}{U\, I} = \frac{\Phi_{\mathrm{phot}}\, hc}{U\, I\, \lambda} \tag{3.1}$$

wobei Φ_{phot} der Photonenfluss, $E_{\mathrm{phot}} = h\nu$ die Photonenenergie mit $h = 4.135 \cdot 10^{-15}\,\mathrm{eV\,s}$ sowie $\nu = \mathrm{c}/\lambda$ die Frequenz des Photons bei der Wellenlänge λ und der Lichtgeschwindigkeit c im Vakuum mit $c = 2,998 \cdot 10^{8}\,\mathrm{m/s}$ ist. U bezeichnet die Spannung am Bauteil und I den Diodenstrom.
Statt dem Leistungswirkungsgrad η_{WPE} wird in dieser Arbeit meist die *externe Quanteneffizienz* η_{EQE} genutzt, die das Verhältnis von emittierten (oder im Messaufbau gemessenen) Photonen Φ_{phot} zu den in das Bauteil injizierten Ladungsträgern I_{d} in einem gegebenen gleichen Zeitintervall beschreibt:

$$\eta_{\mathrm{EQE}} = \frac{\Phi_{\mathrm{phot}}}{I_{\mathrm{d}}/q} = \frac{\eta_{\mathrm{WPE}}}{\eta_{\mathrm{QD}}\, \eta_{\mathrm{pack}}} \tag{3.2}$$

wobei das *Quantendefizit* $\eta_{\mathrm{QD}} = (h\nu)/(U_{\mathrm{d}}q)$ den Energieverlust der Photonenenergie E_{phot} zu der Diodenspannung U_{d} in Relation setzt und die *Effizienz des Packages* $\eta_{\mathrm{pack}} = (U_{\mathrm{d}}I_{\mathrm{d}})/(UI)$ alle Spannungs- und Stromverluste durch Prozessierung und Packaging, also außerhalb des aktiven Bereichs der LED, beschreibt. Für die spätere Auswertung kann $I_{\mathrm{d}} = I$ gesetzt werden.
Die *externe Quanteneffizienz* η_{EQE} setzt sich wiederum aus einzelnen Teileffizienzen zusammen:

$$\eta_{EQE} = \eta_{\mathrm{ex}} \times \eta_{\mathrm{IQE}} \times \eta_{\mathrm{inj}} \tag{3.3}$$

mit der *optischen Extraktionseffizienz* η_{ex} (oder *Auskoppeleffizienz*), der *internen Quanteneffizienz* η_{IQE} und der *Injektionseffizienz* η_{inj}. Die *optische Extraktionseffizienz* η_{ex} gibt an, welcher Anteil der erzeugten Photonen das Bauteil verlässt, bzw. welcher Anteil im Messaufbau erfasst wird. Die *interne Quanteneffizienz* η_{IQE} ist das Verhältnis von strahlend rekombinierenden Elektron-Loch-Paaren in der aktiven

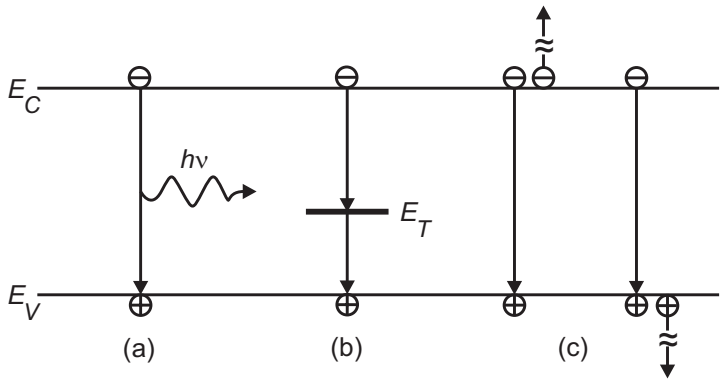
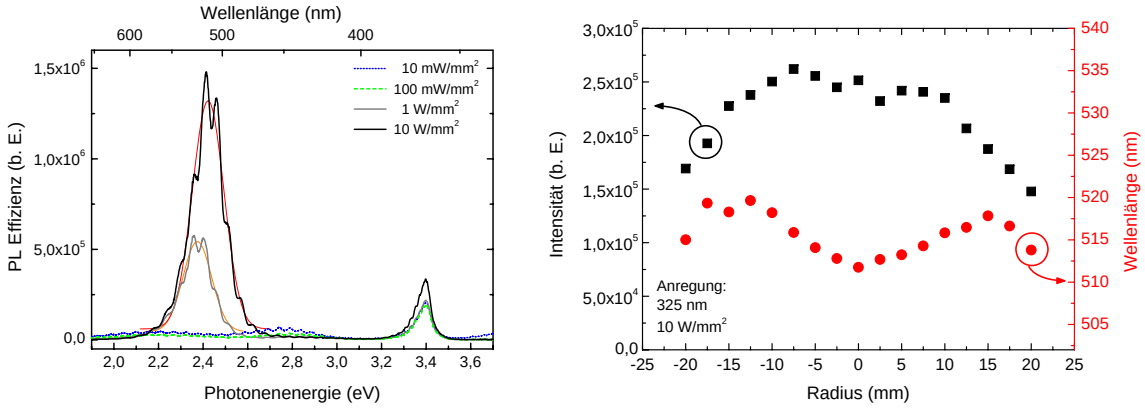


Abbildung 3.10: *Mögliche Rekombinationsprozesse: Strahlender Band-zu-Band-Übergang (a), nichtstrahlend über Defektniveaus (b) oder nichtstrahlender Auger-Prozess (c).*

Schicht zu insgesamt in der aktiven Schicht rekombinierenden Elektron-Loch-Paaren. Die *Injektionseffizienz* η_{inj} beschreibt den Anteil der durch das Bauteil fließenden Elektronen (bzw. Löcher), die den aktiven Bereich erreichen.
Als einfach zugängliche Messgrößen bieten sich die optische Leistung oder Elektrolumineszenz(EL)-Leistung in einem gegebenen Messaufbau, d. h. gegebenen Lichtauskoppelverhältnissen und Raumwinkel, und der Betriebsstrom an. Für die EL-Leistung und beim Vergleich verschiedener LED-Strukturen auf unterschiedlichen Substraten spielen η_{IQE} und η_{ex} die entscheidende Rolle. Während η_{IQE} von der epitaktischen Schichtstruktur und der Kristallqualität abhängt, ist für den Wert von η_{ex} die Geometrie des Bauteils und der Brechungsindex n der Materialien entscheidend. Die getrennte Bestimmung von η_{IQE} und η_{ex} ist nicht trivial und wird in Kapitel 6 ausführlich behandelt.

3.3.2. Photolumineszenz-Spektroskopie

Bei der Photolumineszenz(PL)-Spektroskopie wird die zu untersuchende Probe mit einem Laser angeregt, wobei die Photonenenergie des anregenden Lichts über der Bandkante des Probenmaterials liegt, also $h\nu > E_{\mathrm{gap}}$. Die durch Absorption generierten Elektron-Loch-Paare relaxieren z. B. über Phononenkaskaden zum jeweiligen Bandextremum, also Elektronen zur Leitungsbandunterkante und Löcher zur Valenzbandoberkante, und rekombinieren. Die Rekombination kann dabei strahlend direkt Band-zu-Band Abb. 3.10(a) oder strahlend über Defektniveaus (nicht gezeigt) erfolgen, oder nichtstrahlend über Defekte (b) oder den Auger-Effekt (c). Das bei der strahlenden Rekombination emittierte Licht wird dann in einem Spektrometer analysiert. Da das Spektrum von Schichtdicken-Interferenzen überlagert ist, werden die QW-Lumineszenzen mit einer Gauß-förmigen Linienform angefittet um die Peak-Wellenlänge λ_{PL}, die Halbwertsbreite und die Intensität zu bestimmen; Details hierzu finden sich in Referenz [84]. Als Anregungslaser kommt ein HeCd-Laser mit 24 mW optischer Leistung auf der 325-nm-Linie (3,81 eV) zum Einsatz. Über ein Filterrad kann die Anregungsleistungsdichte um 4 Größenordnungen variiert werden, bevor der



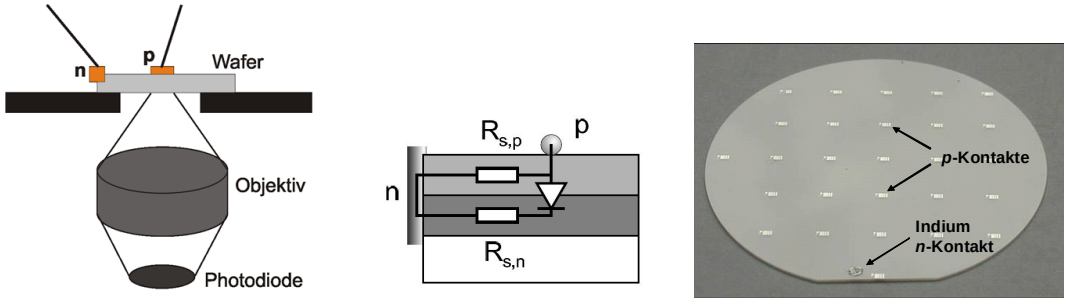
(a) (b)

Abbildung 3.11: *(a) Vergleich von PL-Spektren bei verschiedenen Anregungsleistungsdichten und (b) Auswertung eines PL-Linescan parallel zum Waferflat.*

Strahl über eine Sammellinse auf $20 \times 20\,\mu$m fokussiert wird. Standardmäßig werden 4 verschiedene Leistungsdichten zur Anregung verwendet, diese sind von $10\,\mathrm{mW/mm^2}$ bis $10\,\mathrm{W/mm^2}$ um je eine Größenordnung variiert. Dies erlaubt eine schnelle erste Aussage über die Stärke des QCSE und über das leistungsdichteabhängige Verhältnis von Bandkanten-zu-QW oder QW-zu-Defektlumineszenz. Durch den Einsatz eines X-Y-Tisches werden standardmäßig PL-Linescans bei höchster Anregungsleistung senkrecht und parallel zum Flat des Wafers durchgeführt, um die Homogenität der Epitaxie zu überprüfen. Abbildung 3.11(a) zeigt 2 PL-Spektren, die bei verschiedenen Anregungsdichten aufgenommen wurden und in Abb. 3.11(b) wird ein Linescan parallel zum Flat gezeigt, bei dem die Wellenlänge, die PL-Effizienz und die Halbwertsbreite der QW-Lumineszenz ausgewertet wurden.
Wichtige Annahmen, die bei der Auswertung der PL-Ergebnisse verwendet werden, sind eine vernachlässigbare Erwärmung der Probe und vernachlässigbare laterale Diffusion der Ladungsträger aus dem Laser-Spot. Eine ausführliche Diskussion dieser Annahmen findet sich in Kapitel 6.3.3.

3.3.3. Elektrolumineszenz-Spektroskopie

Im Gegensatz zur PL-Charakterisierung ist bei der Elektrolumineszenz(EL)-Spektroskopie eine vorherige Kontaktierung der Proben notwendig. Für die optische Leistungsmessung werden die reflektiven Eigenschaften des p-Kontakts genutzt und das emittierte Licht rückseitig durch das Substrat ausgekoppelt. Abbildung 3.12 zeigt den schematischen Messaufbau bei dem die Probe über Nadeln kontaktiert und das emittierte Licht durch ein Objektiv auf eine Fotodiode fokussiert wird. Das Objektiv mit der numerischen Apertur $A = 0{,}5$ detektiert unter einem Öffnungswinkel von 60°. Kalibriert wurde der Aufbau über die Vergleichsmessung mit einer Ulbrichtkugel, die Licht unter einem Winkel von nahezu 180° detektiert und damit die gesamte durch das Substrat emittierte Lichtleistung P_{EL} misst. Ein Teil des emittierten Lichts wird nach oben gestreut und kann somit über eine Lichtleitfaser mit angeschlosse-



(a) (b) (c)

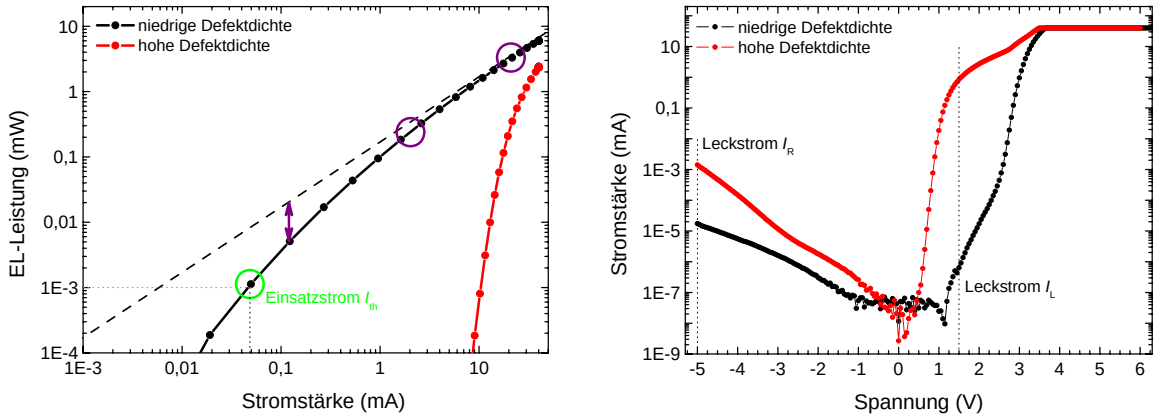
Abbildung 3.12: *Schematischer Aufbau des EL-Messplatzes (a), Ersatzschaltbild für Kontaktierung bei Schnelltest (b) und per Schattenmaske aufgedampfte Schnelltestkontakte auf 2-Zoll-Wafer (c).*

nem Spektrometer spektral analysiert werden. Der Wafer ist über einen X-Y-Tisch automatisiert verfahrbar, so dass die gesamte Waferfläche abgescannt werden kann.

Bevor die p-Kontakte aufgedampft werden, wird die p-Leitfähigkeit im GaN:Mg für 10 min bei 580°C unter einer 96% N_2 und 4% N_2O Atmosphäre aktiviert, siehe dazu Abschnitt 3.1.2. Die reflektiven p-Kontakte werden standardmäßig über ein Schnelltest-Verfahren angebracht, bei dem 27 Kontakte durch eine Schattenmaske auf einen 2-Zoll-Wafer aufgedampft werden. Seitlich wird ein einzelner n-Kontakt angebracht, wobei eine Kontaktierung des n-dotierten GaN durch Anritzen der Epischicht ermöglicht wird. Der n-Kontakt besteht dabei aus einer leicht verformbaren Indium-Kugel, die in die angeritzte Stelle gedrückt wird. Es wird zwar auch die p-Seite mitkontaktiert, allerdings ist der laterale Bahnwiderstand $R_{s,n}$ auf der n-Seite aufgrund der viel höheren Leitfähigkeit und Schichtdicke um einige Größenordnungen geringer als der Widerstand auf der p-Seite $R_{s,p}$. Damit ist unter Vorwärtsspannung U_F der Leckstrom I_{Leck} im p-GaN vernachlässigbar und der Strom fließt durch die Diode, siehe Abb. 3.12(b). Die Kontakte sind quadratisch und in Größen von 270, 140 und 70 μm Kantenlänge vorhanden. Zusätzlich werden *Transmission-Line-Model*-Strukturen, zur Bestimmung der Schicht- und Kontaktwiderstands, und eine quadratische Potentialsonde, zur Bestimmung der Vorwärtsspannung, deponiert. Die standardmäßigen Schnelltestkontakte bestehen aus Ni/Al/Ni/Au (1/300/40/200 nm). Im Laufe dieser Arbeit wurde das p-Kontakt-Material jedoch mehrfach im Zuge einer Optimierung und Automatisierung des Schnelltests geändert, so dass bei der Messung der Ausgangsleistung von LED-Strukturen die unterschiedlichen Reflektivitäten und Kontaktwiderstände der Metalle berücksichtigt werden müssen. Dies geschieht durch einen Anpassungsfaktor β, der für die verwendeten Kontaktmetalle in folgender Tabelle zusammengefasst ist und über $P_{EL} = P_{met}/\beta$ zur auf den Pt-Kontakt kalibrierten Ausgangsleistung P_{EL} führt:

Metall	Palladium (Pd)	Platin (Pt)	In-Bumps	Ni/Al/Ni/Au
Faktor β	0,9	1	1,35	1,3

Neben der Charakterisierung mit Schnelltestkontakten steht auch ein lithografischer Vollprozess zur Verfügung, der jedoch wegen zahlreicher Maskenebenen aufwändig ist



(a) (b)

Abbildung 3.13: *(a) Reale $P(I)$-Kennlinien zweier LED-Strukturen im Vergleich zur idealen (gestrichelte Linie) und (b) $I(U)$-Kennlinien der Dioden nach dem lithografischen Vollprozess.*

und deshalb selten angewandt wurde. In Kapitel 6 wird dieser Vollprozess eingehend diskutiert und die Ergebnisse mit dem des Schnelltests und einem *state-of-the-art* ThinGaN®-Chip-Prozess verglichen.
Im Schnelltest wurden bei allen hergestellten Proben die 27 Kontakte mit 270 μm Breite abgescannt und die EL-Leistung P_{EL} je bei 40, 20 und 2 mA Injektionsstrom I gemessen. An ausgewählten Dioden wurden auch komplette $P(I)$-Kurven aufgenommen, siehe Abb. 3.13(a).
Um das Abweichen der $P(I)$-Kurve von einem idealen linearen Verlauf auch aus den Wafer-Mappings zu beschreiben, wird die Linearität L definiert:

$$L = 10 \cdot \frac{P_{\mathrm{EL}}(2\,\mathrm{mA})}{P_{\mathrm{EL}}(20\,\mathrm{mA})}$$

Bei einer idealen Diode steigt die optische Leistung linear mit dem Injektionsstrom, dies würde mit einer Linearität $L = 1$ beschrieben. Bei realen Dioden hängt die $P(I)$-Kurve allerdings bei niedrigen Stromdichten abhängig von der Kristallqualität durch, was durch $L < 1$ beschrieben wird, siehe Abb. 3.13(a). Eine exemplarische Auswertung der radialen Verteilung von EL-Leistung P_{EL} und Linearität bei einer LED-Struktur auf Saphir im Schnelltest wird in Abbildung 3.14 gezeigt. Anhand der Auswertung von P_{EL} und L über den Radius des 2-Zoll-Wafers wird die Homogenität der Epitaxie kontrolliert, die aber nur bis zu einem gewissen Grad über die Gasflüsse im Reaktor nachgeregelt werden kann.
Als weiterer Parameter zur Beschreibung der Abweichung von einer idealen Diode wird der Einsatzstrom I_{th}, als Stromstärke bei einer EL-Leistung von 10^{-6} W, definiert. Durch die Definition einer absoluten EL-Leistung ist der Einsatzstrom abhängig vom verwendeten p-Kontaktmetall und dem genauen Messaufbau, wobei die Werte für Pt-Kontakte und den Schnelltestaufbau kalibriert sind. Sowohl die Linearität als auch der Einsatzstrom I_{th} lassen auf Defekte im aktiven Bereich oder auf unzureichende Ladungsträgerinjektion schließen. Diese Zusammenhänge werden in Kapitel 6

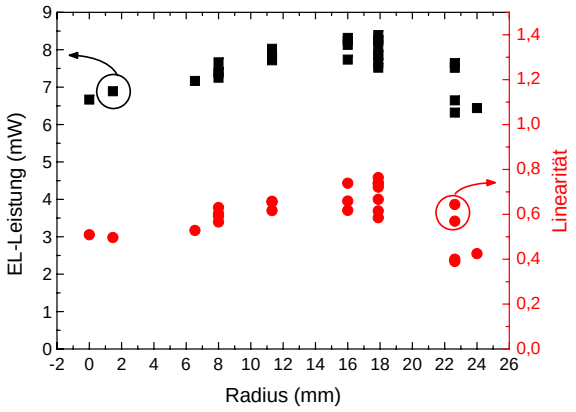


Abbildung 3.14: *Schnelltest-Auswertung der radialen Verteilung von EL-Leistung und Linearität über einen 2-Zoll-Wafer.*

im Rahmen eines Rekombinationsraten-Modells ausführlich behandelt.
In Abb. 3.13(b) ist die zugehörige Strom-Spannungskennlinie gezeigt. Die Defekte verursachen hier erhöhte Leckströme, die unterhalb der Schwellenspannung als I_{L} und in Sperrspannung als I_{R} sichtbar sind.

4. Optimierung des Wachstums auf Saphir-Substrat

Ein Ziel dieser Arbeit ist neben einem detailierteren Verständnis der Funktionsweise einer LED, die Erhöhung der EL-Leistung. Die Optimierung der Schichtenfolge und Wachstumsparameter der einzelnen Schichten wurde auf Saphir durchgeführt. Ausgehend von einer Standardstruktur wird im Folgenden das Wachstum der entscheidenden Schichten, wie des kristallqualitätsbestimmenden Nukleations- und Anwachsbereichs, des effizienz- und wellenlängenbestimmenden aktiven Bereichs und des elektrisch schwierig zu kontaktierenden p-dotierten Bereichs erläutert.

4.1. Schichtenfolge der Standard-Leuchtdiodenstruktur

In Abb. 4.1 ist die 3-fach-QW(TQW)-LED-Standardstruktur auf Saphir schematisch dargestellt.

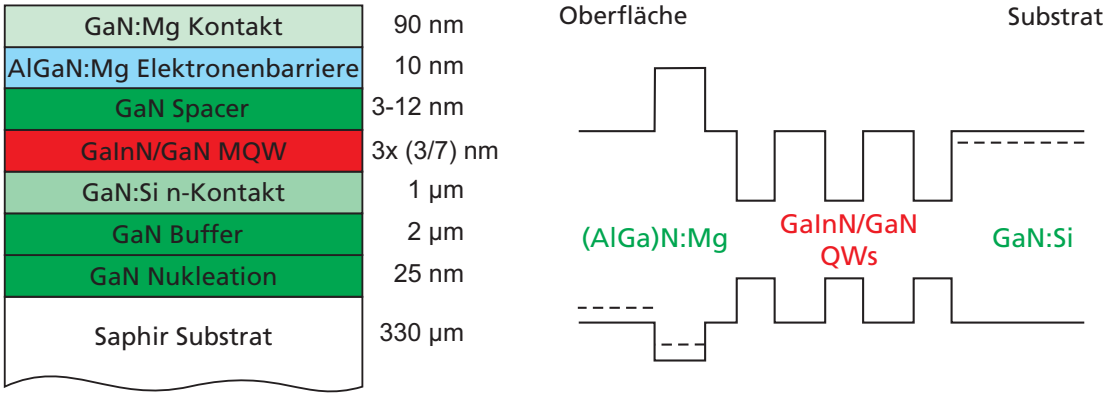


Abbildung 4.1: *(a) Schematischer Aufbau einer 3-fach QW LED und (b) deren Bandverlauf aufgetragen entgegen der Wachstumsrichtung.*

Im Anschluss an die etwa 30 nm dicke Nukleationsschicht, die bei niedrigen Temperaturen um 530°C gewachsen wird, folgt eine 2 μm dicke nominell undotierte Pufferschicht bei etwa 1100°C, die zum Abbau von Versetzungen und zum Koaleszieren (Zusammenwachsen) der Nukleationskeime dient. Die darauffolgende 1 μm dicke n-Kontaktschicht ist zusätzlich Si-dotiert, mit $[\mathrm{Si}] = 5 \cdot 10^{18}$ cm^{-3} für die ersten 750 nm

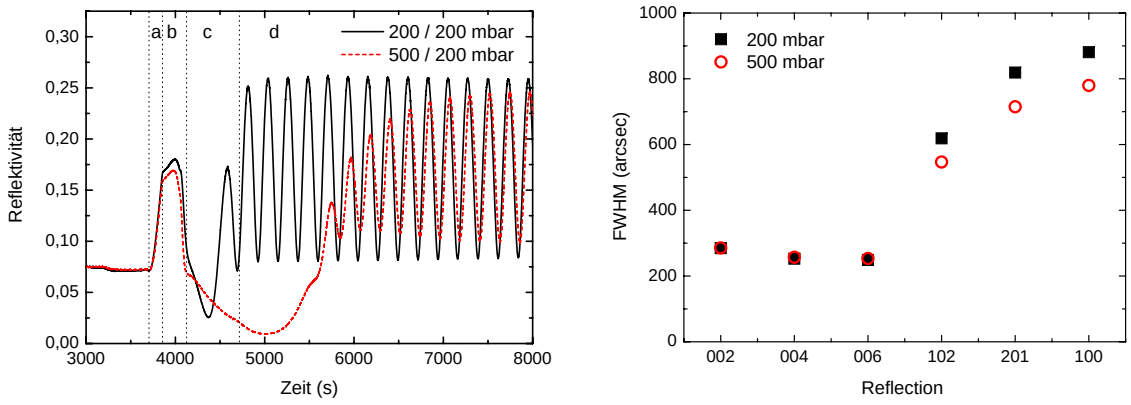
Schicht	Dicke nm	Dotierung $\times 10^{18}\,\mathrm{cm}^{-3}$	Temperatur °C (EpiTT)	V/III-Verhältnis
Nukleationsschicht	30	-	530	900
Puffer undot.	2700	-	1065	600
n-Kontaktschicht	750	5	1065	600
n-Kontaktschicht	250	10	1050	600
n-Spacer	5	-	750	20000
Barriere/Quantenfilm	7/3	-	750	20000 / 4800
p-Spacer	3	-	750	20000
Elektronenbarriere	10	60	1015	1700
p-Kontaktschicht	180	60	1015	1700

Tabelle 4.1: *Übersicht über die Wachstumsparameter der Schichten der Standardstruktur. Die Temperaturwerte beziehen sich auf die per Pyrometer gemessene Temperatur.*

und $[\mathrm{Si}] = 1 \cdot 10^{19}\ \mathrm{cm}^{-3}$ für die verbleibenden 250 nm. Darauf folgt der aktive Bereich, der aufgrund der hohen In-Desorption bei nur $700-850$°C gewachsen wird. Er besteht aus einer undotierten 10 nm dicken (n-seitigen) Abstandsschicht (engl.: „spacer“), einem Mehrfach-QW(MQW)-Bereich mit drei 3 nm dicken $Ga_{0,91}In_{0,09}N$-QWs getrennt durch 7 nm GaN-Barrieren und dem 3 nm dicken (p-seitigen) GaN-Spacer. Danach wird die 10 nm dicke $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$:Mg-Elektronenbarriere bei 1040°C gewachsen. Sie verringert im EL-Betrieb das Überschießen der Elektronen in die p-Kontaktschicht und ist mit $[\mathrm{Mg}] = 6 \cdot 10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$ dotiert. Die abschließende GaN-p-Kontaktschicht ist Mg-dotiert mit $[\mathrm{Mg}] = 6 \cdot 10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$ und 180 nm dick. Tabelle 4.1 fasst die wichtigsten Wachstumsparameter der einzelnen Schichten zusammen. Die Temperaturwerte wurden per EpiTT gemessenen, da die eingestellte und über das Thermoelement geregelte Temperatur abhängig vom Reaktorzustand (z. B. belegter/unbelegter Liner) um bis zu 15°C variiert werden muss.

4.2. Nukleationsschicht und Übergang zum Wachstum des Puffers

Das Wachstum von hochqualitativem GaN auf Saphir wurde erst 1986 mit der Entwicklung der AlN-Nukleation durch H. Amano [69] möglich. Im Jahr 1991 wurde dann das Verfahren der Niedertemperatur-GaN-Nukleation von S. Nakamura [70] vorgestellt. Letzteres wurde in dieser Arbeit für alle Proben auf Saphir genutzt.
Zugrunde liegt eine 3D-2D-Wachstumsmethode, bei der erst eine raue, versetzungsreiche Nukleationsschicht gewachsen wird, die – ähnlich zu den ELO-Verfahren – lateral überwachsen wird. Dabei knicken die Versetzungen ab und laufen teilweise zusammen und löschen sich so zum Teil selbst aus.
Vor dem eigentlichen GaN-Wachstum wird das Saphir Substrat bei 1000°C in Wasserstoffatmosphäre gereinigt. Die bei tiefen Temperaturen um 530°C deponierte GaN-Nukleationsschicht (engl.: „nucleation layer“, NL) liegt zuerst ungeordnet mit kubi-

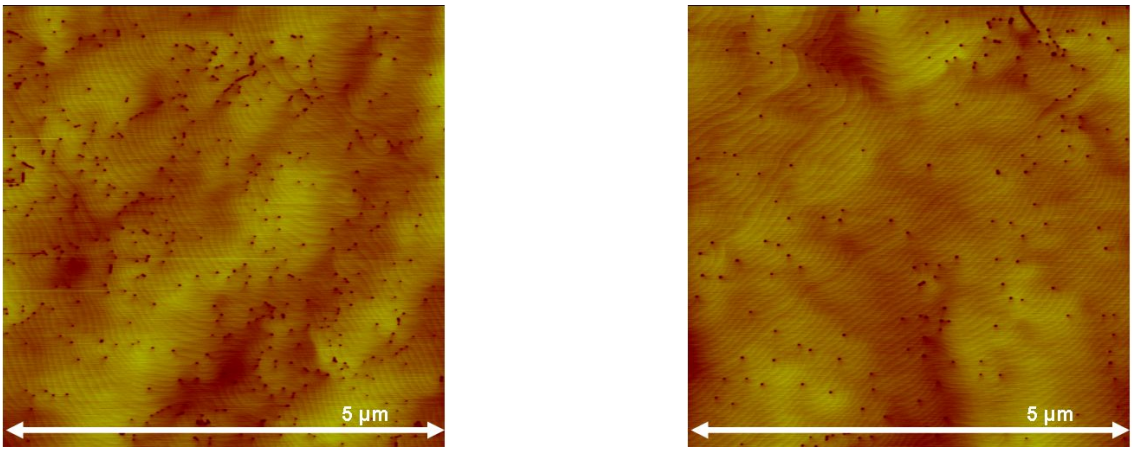


(a) (b)

Abbildung 4.2: *(a) Vergleich der in-situ Reflexion bei 200 und 500 mbar Anwachsdruck und (b) Vergleich der FWHM verschiedener HRXRD-Reflexe im ω-Scan.*

schen Anteilen (β-GaN) vor [85]. Darauf folgt der Ausheilschritt, bei dem die Probe auf 1000 - 1100°C in einer H_2/NH_3-Atmosphäre erhitzt wird. Dabei findet die Rekristallisation von der kubischen in die hexagonale α-GaN-Phase statt, einhergehend mit einer Aufrauung der NL. Die Aufrauung ist Folge des bei der Rekristallisation zugrundeliegenden Ostwald-Reifungsprozesses[1], bei dem erst lokale Dickenvariationen der NL auftreten und sich dann einzelne Inseln ausbilden [86]. Die Geschwindigkeit dieses Prozesses und die Verteilung der Inseln ist von der Temperatur, dem Druck und dem NH_3-Fluss abhängig, wobei eine hohe Temperatur und ein niedriger Druck den Prozess beschleunigen und zu kleineren, dichtstehenden Inseln führen [87]. Ist die Rekristallisationszeit zu lange gewählt, so beginnen die Inseln sich nach der vollständigen Umwandlung zu zersetzen und Material geht über den Abgasstrom verloren. Im nächsten Schritt wird das Wachstum fortgesetzt, wobei die (α-GaN) Inseln als Nukleationskeime dienen. Abhängig von den Wachstumsbedingungen koalesziert die Schicht nun mehr oder weniger schnell und eine glatte lochfreie Wachstumsoberfläche entsteht. Wachstumsbedingungen, die zu einem hohen lateralen Wachstum (2-dimensional) und damit zu einer schnellen Koaleszenz führen, sind analog zur Rekristallisation, da auch hier die Oberflächenbeweglichkeit der Adatome die entscheidende Rolle spielt. Zusätzlich wird die Koaleszenz hier durch die hohe Dichte der Inseln begünstigt. Der jeweils gegenteilige Fall (also niedrige Temperatur, niedriges V/III-Verhältnis und hoher Druck) führt zu 3-dimensionalem Wachstum und damit zu einer rauen Schicht bis hin zur Ausbildung von Löchern.
Abbildung 4.2(a) zeigt den Vergleich der in-situ Reflektometrie beim Wachstum von 3,4 μm dicken Pufferstrukturen mit 200 und 500 mbar Druck für die ersten 10 min des Wachstums (Bereich c in der Abb.) und 200 mbar im restlichen Bereich (d). Beim erhöhten Anwachsdruck von 500 mbar ist deutlich ein Einbruch der Reflektivität zu sehen, während ein Anwachsdruck von 200 mbar nur eine wenig kleinere Amplitude

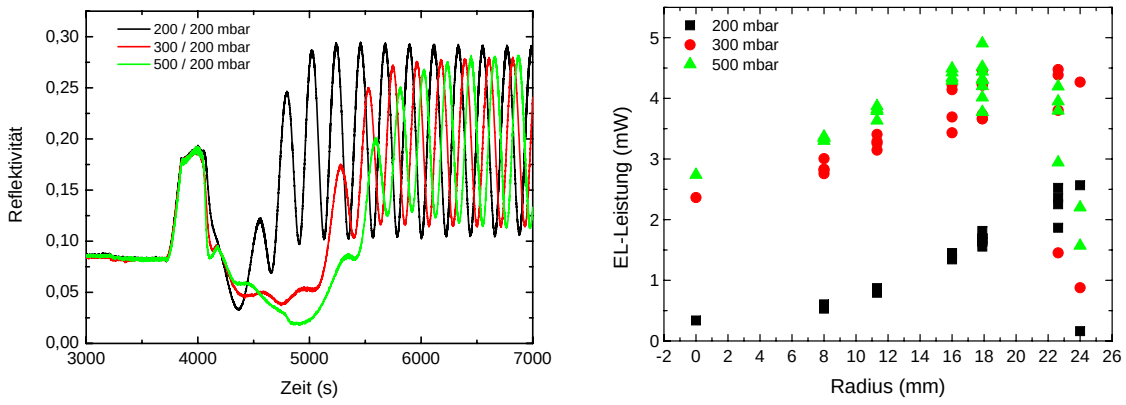
[1] Die Ostwald-Reifung bezeichnet das Wachstum von großen Inseln über Massetransport auf Kosten der kleinen.



(a) (b)

Abbildung 4.3: *AFM-Höhenbild von LED-Strukturen auf Saphir mit (a) 200 mbar und (b) 500 mbar Anwachsdruck zur Bestimmung der GPD.*

der ersten Schichtdickenoszillation (SDO) ergibt. Im weiteren Verlauf des Wachstums werden auch beim 500-mbar-Prozess SDOs sichtbar, allerdings mit nur langsam ansteigender und bei einem geringeren Wert sättigenden Amplitude als bei 200 mbar. Zurückzuführen ist dies ist auf das stärkere 3-dimensionale Wachstum bei hohem Druck. Dadurch wachsen die Keiminseln länger in vertikaler Richtung und es dauert länger, eine vollständige Koaleszenz der Schicht zu erreichen. Die vergrößerten Inseln führen auch zu einer insgesamt erhöhten Rauigkeit am Ende des Wachstum, wie an der geringeren Amplitude der SDO zu sehen ist.
Wie sich der Wachstumsdruck auf die TDD auswirkt, wird in Abb.4.2(b) anhand der FWHM von HRXRD ω-Scans gezeigt. Während die symmetrischen Reflexe unveränderte Breiten zeigen, sind die asymmetrischen Reflexe beim höheren Anwachsdruck deutlich schmaler. Dies zeigt hauptsächlich eine Reduktion der gemischten und reinen Stufenversetzungen während die Dichte der Schraubenversetzungen relativ konstant bleibt, siehe Kapitel 3.2.1, und ist in sehr guter Übereinstimmung mit Jang *et al.* [88]. Die AFM-Höhenbilder der GPD-Messungen an diesen Proben sind in Abb. 4.3 dargestellt. Das Auszählen der *V-pits* zeigt die Reduktion von Stufen- und gemischten Versetzungen von $2,3 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ auf $8 \cdot 10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ und ist damit ebenfalls vergleichbar zu Jang *et al.* [88], die eine TDD von $5 - 9 \cdot 10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ für unterschiedlich lange 3D-Wachstumszeiten gemessen haben. Da die erhöhte Oberflächenrauigkeit zu einer Verbreiterung der HRXRD-Reflexe führt, ist allerdings keine eindeutige Zuordnung der HRXRD-FWHM zur TDD möglich.
Ein anderer schneller Indikator für die Kristallqualität bei Standard-LED-Strukturen mit Standard-Dotierung ist der Schichtwiderstand, der direkt nach der Epitaxie kontaktlos über ein Wirbelstromverfahren gemessen wird. Der Schichtwiderstand der 200-mbar-Probe beträgt $2550\,\Omega$, während die 500-mbar-Probe nur $470\,\Omega$ aufweist. Für diese Zunahme der n-Leitfähigkeit ist hauptsächlich der defektreiche Nukleations-/Anwachsbereich verantwortlich, der bei den 500-mbar-Proben dicker ausfällt als bei den 200-mbar-Proben und deshalb eine höhere Leitfähigkeit zeigt. Zusätzlich kommen



(a) (b)

Abbildung 4.4: *(a) In-situ Reflektometrie einer Serie von LED-Strukturen mit variiertem Anwachsdruck und (b) zugehörige EL-Waferscans bei 40 mA und Pt-Kontakten.*

aber auch zwei andere Effekte in Frage, dies ist zum einen ein erhöhter Einbau von Kohlenstoff mit sinkendem Druck [89], zum anderen die Verringerung der TDD. Während Kohlenstoff ein bekannter Akzeptor in GaN ist, ist die Rolle von Versetzungen als Akzeptor noch nicht ganz verstanden. Diskutiert werden tiefe Störstellenniveaus der Versetzungen selbst, genauso wie Ga-Leerstellen-Sauerstoff-Komplexe V_{Ga}-O_N oder andere Verunreinigungen, die zu einem Akzeptorniveau führen und an den Versetzungen angelagert sind. Eine gute Übersicht dazu findet sich in Ref. [80].
Der Einfluss der gesteigerten Kristallqualität auf die EL-Eigenschaften von LED-Strukturen ist in Abb. 4.4 dargestellt. Mit steigendem Anwachsdruck findet die vollständige Koaleszenz der Schicht erst bei größeren Schichtdicken statt, was eine effektivere Reduktion der TDD bewirkt [90]. Die in Abbildung 4.4(b) dargestellten EL-Waferscans zeigen damit einhergehend eine deutliche Steigerung der EL-Intensität über den gesamten Wafer, mit maximalen Werten für die Probe mit 500 mbar Anwachsdruck. Der Einbruch der EL-Leistung zur Wafermitte hin ist zum einen auf eine frühere Koaleszenz im Vergleich zum Rand zurückzuführen und zum anderen auf die Diffusion von Mg (siehe dazu Kapitel 4.4). Die frühere Koaleszenz ist durch eine lokal höhere Substrattemperatur bedingt, welche sich auch beim In-Einbau in den QW bemerkbar macht und über die Wellenlänge bei PL-Waferscans auswertbar ist. Bei einer Substrattemperatur von 780°C beträgt der Temperaturunterschied zwischen Mitte und Rand 5 K, steigt jedoch mit zunehmender Temperatur an, so dass bei 1100°C von Unterschieden im Bereich 10 K ausgegangen werden kann. Die niedrigere Temperatur am Rand führt zu noch späterer Koaleszenz, dadurch besserer Kristallqualität, allerdings aber auch zu im Mikroskop sichtbaren Löchern in der Schicht. Zusammen mit anderen Randeffekten führen diese Löcher bei den am Waferrand liegenden Dioden zu Kurz- oder Nebenschlüssen oder einer starken Verringerung der EL-Intensität.

4.3. Variation des Trägergases zur Erhöhung des In-Einbaus für langwellige GaInN-Leuchtdioden

Im Vergleich zu anderen III-V-Verbindungshalbleitern ist das Wachstum der Gruppe-III-Nitride ungewöhnlich sensitiv auf das eingesetzte Trägergas [91]. Schön *et al.* [92] zeigten 1998, dass das GaN-Wachstum unter 100% H_2 zu deutlich besseren elektrischen und morphologischen Eigenschaften und einer verminderten PL von Verunreinigungen im Vergleich zum Wachstum mit 100% N_2 führt. Andererseits fanden sie unter 100% N_2 eine reduzierte gelbe Lumineszenz und eine homogenere Schichtdicke über den Wafer. Durch veränderte Reaktordesigns und Optimierung der Wachstumsparameter konnten diese Punkte jedoch mittlerweile auch unter H_2 verbessert werden. Zusammen mit der technisch relativ einfachen Wasserstoffreinigung mittels einer Palladium-Zelle, ist damit H_2 heute das Standardträgergas für das Wachstum von GaN- und AlGaN-Schichten in der MOVPE und wurde auch in dieser Arbeit verwendet.
Das Wachstum des aktiven Bereichs ist entscheidend für die Emissionswellenlänge und die Effizienz der LED. Die Kombination von GaInN-QW und GaN-Barrieren bedeutet einen Kompromiss aus guter Kristallqualität und gutem In-Einbau. Während hochqualitatives GaN eine hohe Wachstumstemperatur T_G um 1000 - 1100°C erfordert, muss GaInN im Bereich zwischen 700 - 850°C abgeschieden werden. Die relativ niedrige Bindungsstärke von InN führt bei höheren Temperaturen zu starker In-Desorption und damit nur geringem In-Einbau. Die niedrige Temperatur führt außerdem zur ungenügenden Zerlegung des NH_3, also zu zu geringer Verfügbarkeit von atomarem N. Für einen effizienten In-Einbau hat sich jedoch genau eine hohe Konzentration von atomarem N als hilfreich erwiesen [92]. Ferner führt der Einsatz von N_2 als Trägergas beim Wachstum von GaInN zu einem deutlich verbesserten In-Einbau gegenüber der Verwendung von H_2, wobei selbst geringe Mengen H_2 einen deutlichen Einfluss zeigen.
Bei dem in dieser Arbeit verwendeten MOVPE-Reaktor werden alle Prekursor-Quellen von demselben Trägergas durchflossen. Zum Wachstum des aktiven Bereichs werden die Prekursoren TEGa und TMIn genutzt, idealerweise mit N_2 als Trägergas, wie oben beschrieben. Für das Wachstum der Puffer- und Kontaktschichten, die mit TMGa als Prekursor gewachsen werden, wird allerdings H_2 als Trägergas bevorzugt. Um beim Umschalten der Wachstumsbedingungen von Kontaktschicht-Wachstum zu Aktivem-Bereich-Wachstum eine Vermischung der Trägergase in den Prekursor-Quellen zu verhindern, ist eine Wachstumsunterbrechung (WU) nötig, um nach Schließen der Quellen-Zuflüsse das Trägergas im gesamten Gaszuführungs-System auszutauschen. Bisher wurde beim Wachstum des aktiven Bereichs nur das *direkt* den Reaktor durchfließende Trägergas auf N_2 umgestellt und das die TEGa- und TMIn-Quellen durchfließende Trägergas auf H_2 belassen, um diese WU zu umgehen. Der Anteil des durch die Quellen fließenden H_2 am gesamten Trägergasfluss beträgt 5% und hat einen deutlichen Einfluss auf das Wachstum des aktiven Bereichs, wie im Folgenden gezeigt wird.
Abbildung 4.5 vergleicht die Emissionswellenlängen λ_{PL} von TQW LED-Strukturen, bei denen der aktive Bereich bei verschiedenen Wachstumstemperaturen T_G und un-

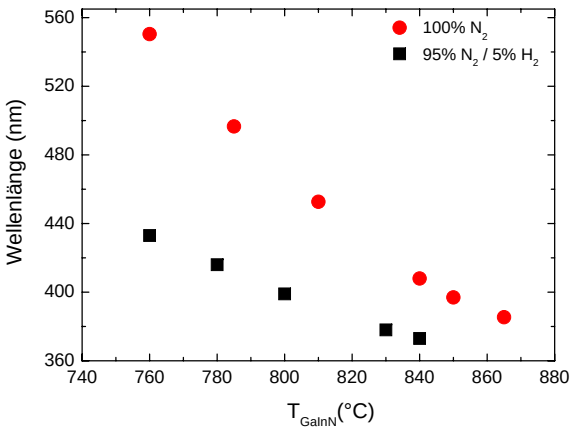
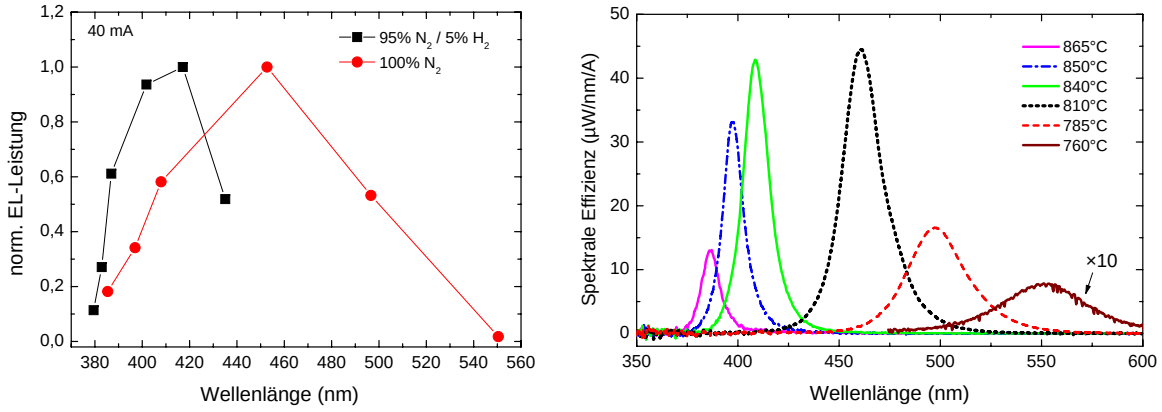


Abbildung 4.5: *PL-Emissionswellenlängen von TQW-LED-Strukturen über der Wachstumstemperatur des aktiven Bereichs für Trägergasgemische mit 100% N_2 und 5%/95% H_2/N_2.*

ter den Trägergasgemischen 100% N_2 und H_2:N_2 = 5:95 gewachsen wurden. Während LED-Strukturen, bei denen der aktive Bereich bei T_G = 760°C und unter 5% H_2 gewachsen wurde, bei λ_{PL} = 430 nm emittieren, liegt λ_{PL} unter 100% N_2 bei 550 nm. Bei 840°C wird unter 5% H_2 mit λ_{PL} = 370 nm nur noch vernachlässigbar In eingebaut, bei 100% N_2 jedoch sind es mit 408 nm immer noch etwa 10%. Ähnliche Ergebnisse wurden auch von Scholz *et al.* [93] und Piner *et al.* [94] berichtet.
Kobayashi *et al.* [95] erklärten dies durch Reaktionen des atomaren N auf der Wachstumsoberfläche mit H_2 in der Gasphase, was zu einer deutlich erhöhten N-Desorptionsrate führt. Sie konnten mittels Oberflächen-Photoabsorption nachweisen, dass (jeweils unter NH_3-Fluss) eine Änderung der Oberflächenbedeckung beim GaN-Wachstum von N-reich zu Ga-reich unter N_2 bei ca. 1030°C, unter H_2 jedoch schon bei 850°C stattfindet. Die fehlende N-Bedeckung im Falle von H_2 führt demzufolge zur Bildung von In-Tröpfchen oder zur Desorption von In und damit zu einem verminderten Einbau. Jüngste *first-principles* Berechnungen von J. E. Northrup erklären den verminderten In-Einbau unter H_2 über die Bildung einer stabilen Ga-NH_3 + 3Ga-NH_2 Oberflächen-Terminierung, die unter hohen Wasserstoffpartialdrücken entsteht und für den Einbau von In einen Energieaufwand von mindestens 0,32 eV erfordert [96]. Bei typischen Wachstumstemperaturen für GaInN von 700 - 850°C stehen allerdings nur $k_BT \approx 0,09$ eV zur Verfügung. Zusammenfassend lassen sich folgende Punkte für einen effizienten In-Einbau aufzählen:

- Geringer Wasserstoffpartialdruck (ganz eliminiert werden kann H nicht, da er auch bei der Zerlegung der Prekursoren entsteht)
- Geringe Temperatur und hohe Wachstumsrate (um die Desorption von In zu minimieren)
- Hohes V/III-Verhältnis

Während für die Herstellung langwelliger LEDs mit λ_{PL} > 440 nm der Einsatz von 100% N_2 unabdingbar ist, sind kurzwellige LEDs um λ_{PL} ≈ 400 nm auch mit 5% H_2

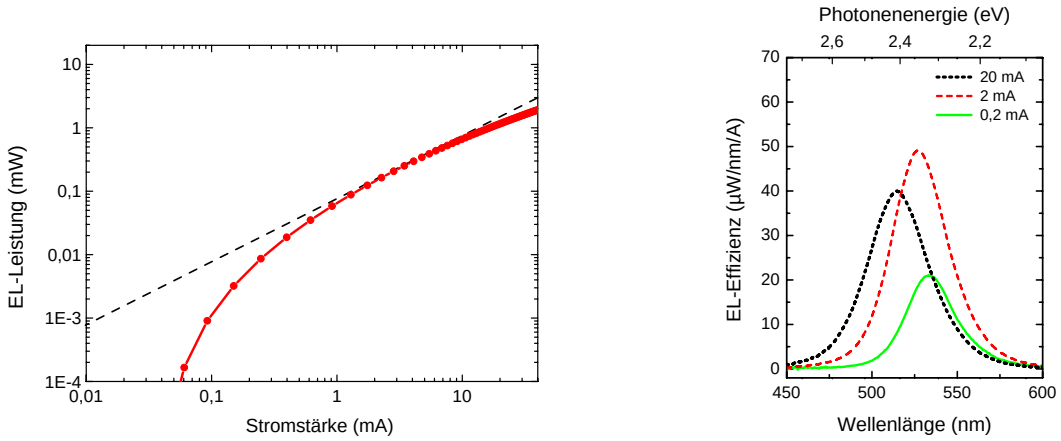


(a) (b)

Abbildung 4.6: *(a) EL-Leistungen bei 40 mA von TQW-LED-Strukturen über der Emissionswellenlänge für 2 verschiedene Trägergasgemische und (b) zugehörige EL-Spektren der 100% N_2 Proben.*

möglich. Abbildung 4.6(a) vergleicht die normierten maximalen EL-Leistungen bei 40 mA der oben eingeführten LED-Strukturen.
Beide Serien zeigen ein Maximum der EL-Leistung, unter 5% H_2 bei 420 nm und ohne H_2 bei ca. 450 nm, und fallen zu kurzen Wellenlängen hin ab, wobei die 5% H_2 -Serie steiler und weiter ins Kurzwellige hin verschoben einbricht. Die Serie mit 5% H_2 zeigt auf der langwelligen Seite schon bei 440 nm einen drastischen Einbruch der EL-Leistung, während die Leistungen unter reinem N_2 von 450 nm bis 550 nm langsamer abfallen.
Die Erklärung liegt im Wachstum des aktiven Bereichs, der bei konstanter Temperatur und Trägergas gewachsen wurde. Beide Kurven brechen auf der kurzwelligen Seite ein, da hier wenig In im QW ist. Dieser flache QW verschlechtert den Ladungsträgereinschluss und macht ein Überschießen der Ladungsträger möglich. Gleichzeitig nimmt mit sinkendem In-Gehalt die nichtstrahlende Rekombination an Versetzungen zu, wie ausführlich in Kapitel 7.2 dargestellt wird. Der steilere Anstieg der Serie mit 5% H_2 ist auf die höhere Kristallqualität vor allem der Barrieren und die niedrigeren Verunreinigungen im GaInN zurückzuführen. Zum einen führt H_2 allgemein zu besserem GaN-Wachstum, was speziell auch für die Barrieren des aktiven Bereichs bestätigt wurde [97, 98, 99], zum anderen berichteten Piner *et al.* [100] von weniger Verunreinigungen durch H, C und O in GaInN bei Zugabe von geringen Mengen H_2 zu N_2. Außerdem bestehen mit dieser Struktur unter 5% H_2 schon langjährige Erfahrung und Optimierung der Wachstumsparameter, während die Veränderung der Wachstumsparameter unter N_2 hauptsächlich aus der Temperaturanpassung mit $\Delta T \approx +50°C$, um auf eine zu 5% H_2 vergleichbare Wellenlänge zu kommen[2], und der Einführung einer WU vor und hinter dem aktiven Bereich, zum Wechsel der Trägergase in den Gaszuführungen und Prekursor-Quellen, bestand. So ist auch verständlich,

[2]Der Temperaturunterschied von $\Delta T \approx +50°C$, der zum Erreichen derselben Emissionswellenlänge unter den verschiedenen Trägergasgemischen nötig ist, gilt nur für LED-Strukturen mit einer Emissionswellenlänge um $\lambda = 400$ nm, siehe Abb. 4.5.



(a) (b)

Abbildung 4.7: *(a) P(I)-Kurve der langwelligen SQW-LED-Struktur GN5282 in dc-Messung bis 40 mA und (b) zugehörige EL-Effizienzspektren bei Strömen zwischen 0,2 mA und 20 mA gemessen mit Pt-Schnelltestkontakten.*

dass die jeweiligen absoluten Maxima der EL-Leistung bei 40 mA mit 6,4 mW für 5% H_2 und 1,1 mW für reines N_2 so weit auseinander liegen; besonders die in Abschnitt 4.4 eingehend diskutierte Mg-Diffusion ist hierbei zu berücksichtigen, die nur für ein 5% H_2-Gemisch und ohne WU optimiert wurde.
Der drastische Einbruch für Wellenlängen $\lambda_{PL} > 420$ nm für die Serie mit H_2 lässt sich zwanglos durch den grenzwertigen In-Einbau und die dadurch verbundene tiefe Wachstumstemperatur von $T_G = 760°C$ mit folgender schlechter Materialqualität erklären. Der Leistungsabfall der Serie mit reinem N_2, der erst bei höherem In-Gehalt beginnt, wird weniger durch eine Limitierung des In-Einbaus als vielmehr durch die große Gitterfehlanpassung zwischen den GaN-Barrieren und den GaInN-QWs verursacht. Außerdem besteht bei diesen hohen In-Gehalten die Gefahr der Entmischung und Phasenseparation des GaInN, wenn die Temperatur zum Wachstum der p-Kontaktschichten wieder auf über 1000°C angehoben wird. Die Folgen dieser schlechteren Materialqualität sind auch an den EL-Spektren in Abb. 4.6(b) sichtbar. Mit zunehmender Wellenlänge verbreitern sich alle EL-Peaks, jedoch wird ab der 500 nm Emission zusätzlich der Effizienzeinbruch sichtbar, so dass bei $\lambda_{PL} = 550$ nm und $T_G = 760°C$ nur noch verschwindende Effizienzen gemessen werden.
Um eine möglichst langwellige aber gleichzeitig effiziente LED herzustellen, wurde aufgrund dieser Erkenntnisse eine Einfach-QW(SQW)-LED-Struktur entworfen, um die negativen Einflüsse durch reines N_2 und die niedrige Temperatur auf die Materialqualität gering zu halten. Zur Kompensation der, aufgrund der nötigen WU, geänderten Mg-Diffusion wurde die Wachstumstemperatur für die p-AlGaN-Elektronenbarriere und die p-GaN-Kontaktschicht von $T_G = 1040°C$ auf 1080°C angehoben. Die Wachstumstemperatur betrug im QW $T_G = 760°C$ und wurde für die Spacer auf $T_G = 850°C$ erhöht. Das III/III-Verhältnis wurde auf dem Standardwert In:Ga = 5:1 belassen, ebenso das V/III-Verhältnis von 4900.
Die Stromabhängigkeit der EL-Leistung dieser LED-Struktur zusammen mit den

Emissionsspektren wird in Abb. 4.7 dargestellt. Die Analyse der $P(I)$-Charakteristik zeigt einen geringen Einsatzstrom von nur 95 μA mit überlinearem Ansteigen der EL-Leistung. Bei Strömen zwischen 1 und 5 mA zeigt sich eine lineare Abhängigkeit der EL-Leistung vom Strom, während die Kurve für größere Ströme dann in ein unterlineares Verhalten abflacht. Die in Abb. 4.7(b) dargestellten spektralen EL-Effizienzen weisen mit steigendem Strom eine Verschiebung der EL-Peakwellenlänge von $\lambda_{\mathrm{EL}} = 533$ nm bei 0,2 mA über $\lambda_{\mathrm{EL}} = 527$ nm bei 2 mA zu $\lambda_{\mathrm{EL}} = 515$ nm bei 20 mA auf. Ein Vergleich der Maximalwerte der spektralen Effizienz bestätigt das Abfallen der Effizienz für 20 mA Injektionsstrom. Maximale EL-Leistungen im on-wafer Schnelltest und bei 40 mA Injektionsstrom waren $P_{\mathrm{EL}} = 1{,}9$ mW bei 515 nm und 2,4 mW für eine andere bei 508 nm emittierende Diode.
Für die Verschiebung der Wellenlänge zu geringeren Werten gibt es zwei mögliche Erklärungen. Zum einen ist sie direkte Folge des QCSE, der bei langwelligen LEDs auf Basis von GaInN durch den hohen In-Gehalt und die damit verbundenen hohen Piezopolarisationsfelder sehr stark ist. Zum anderen ist es die durch In induzierte Ladungsträgerlokalisierung, die entweder aufgrund von In-Gehaltsfluktuationen, QW-Schichtdickenvariationen oder Loch-Einfang an atomaren In-N-Kondensaten entsteht. Diese Ladungsträgerlokalisierung ist auch der Grund, weshalb die, durch den QCSE bedingte, lokale Separation von Elektron- und Lochwellenfunktion, die zu einem kleinen Übergangsmatrixelement führt, nicht zu ineffizienter strahlender Rekombination führt und die Probe einen geringen Einsatzstrom zeigt[3]. Die Verschiebung der Emissionswellenlänge mit steigendem Strom ist nun für beide Effekte auf die größere Anzahl an injizierten Ladungsträger zurückzuführen, die im einen Fall zur Kompensation des Polarisationsfeldes und im anderen zur Auffüllung der lokalisierten Zustände führt.
Mit der Kompensation des Feldes steigt allerdings auch das Übergangsmatrixelement der Elektron- und Lochwellenfunktion, womit auch die Effizienz der strahlenden Rekombination steigen sollte, was im Gegensatz zur experimentellen Beobachtung steht: Die externe Quanteneffizienz η_{EQE} sinkt bei GaInN-basierten LEDs mit steigendem Strom, so dass bei 20 mA die EL-Effizienz wieder abnimmt. Dieser mit dem In-Gehalt zunehmende Effekt wird nicht-thermisches Überrollen genannt und ausführlich in Kapitel 6.4 behandelt.

4.4. Einstellung des Mg-Dotierprofils

Anlauf-Effekte (engl.: „memory effect“) und Diffusionsprozesse beeinflussen das oberhalb des aktiven GaInN/GaN-Bereichs einsetzende Mg-Akzeptor-Dotierprofil. Die beim Wachstum von außen einstellbaren Parameter sind dabei der Mg-Fluss und die Wachstumstemperatur T_{G}. Vor allem Rückdiffusion aus der GaN:Mg-Kontaktschicht in die AlGaN:Mg-Elektronenbarriere aber auch in den darunter liegenden QW-Bereich verändern das nominelle Mg-Profil stark. SIMS-Tiefenprofile von Mg, Al und In von drei bei $T_{\mathrm{G}} = 1000$°C abgeschiedenen LED-Strukturen mit Mg-Zielkonzentrationen von $3 \cdot 10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$, $6 \cdot 10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$ und $1 \cdot 10^{20}\,\mathrm{cm}^{-3}$ sind in Abb. 4.8 gezeigt.
Der nominelle Dotierungsverlauf ist durch graue Linien angedeutet. Der verzögerte Anstieg kann auf den *memory effect* zurückgeführt werden, also der Tatsache, dass

[3] Eine ausführliche Diskussion dieser Zusammenhänge wird in Abschnitt 6 und Kapitel7 gegeben.

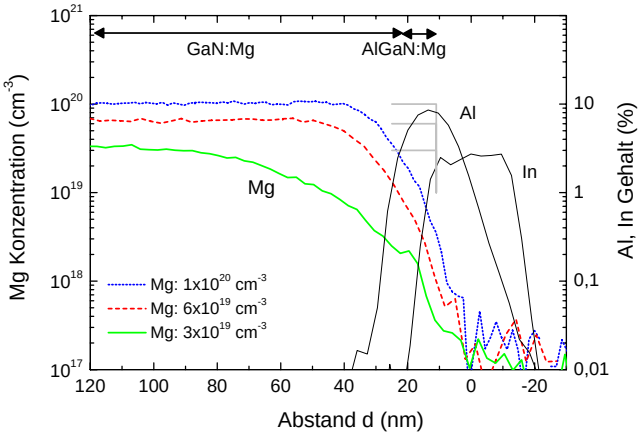
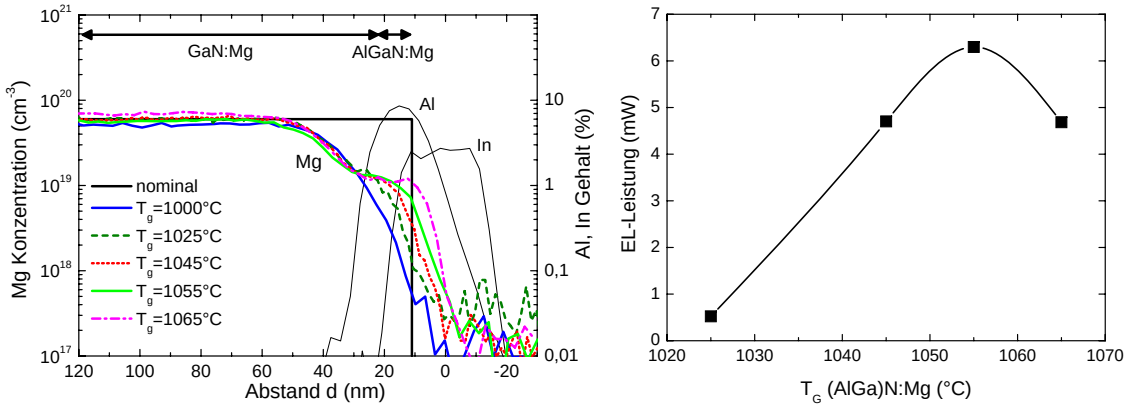


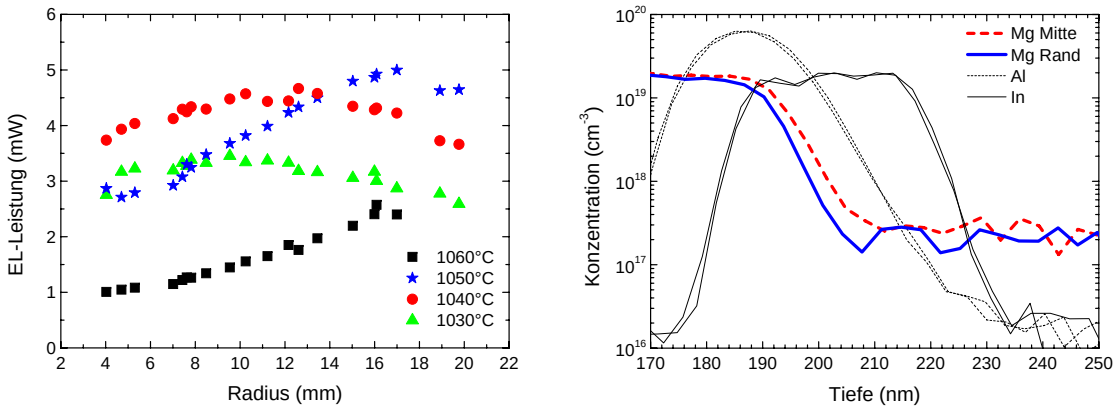
Abbildung 4.8: *Mg-Konzentrationsverlauf in LED-Strukturen, die bei 1000°C gewachsen wurden und unterschiedliche Mg-Zielkonzentrationen haben. Der Nullpunkt der Abszisse liegt im Zentrum des optisch aktiven GaInN-Bereichs, aus [101].*

zunächst Wachstumsoberfläche und Reaktorwände ausreichend mit Mg bedeckt sein müssen, bevor Mg in entsprechender Konzentration in die GaN-Schicht eingebaut wird [102]. Dementsprechend ist auch die Dicke bis zum Erreichen der Sättigung von der Zielkonzentration abhängig. Ein Vergleich der Dotierungsverläufe in Epitaxieschichten aus verschiedenen MOVPE-Anlagen ergab unterschiedliche Steigungen bei gleichen Mg-Zielkonzentrationen. Der entscheidende Parameter ist dabei der Abstand von Gaseinlass zu Substrat im jeweiligen Reaktor, wobei ein kürzerer Abstand schärfere Dotierprofile ermöglicht.
Bei der niedrigen Wachstumstemperatur von 1000°C in Abb. 4.8 gibt es noch keine merklichen Anzeichen für Rückdiffusionseffekte. Die Mg-Konzentration in der Elektronenbarriere bleibt selbst bei der höchsten Dotierkonzentration zu gering.



(a) (b)

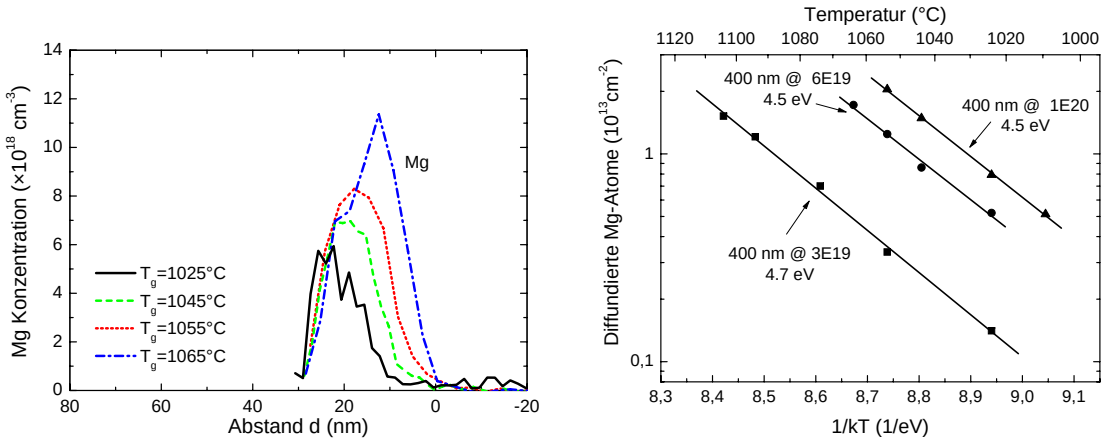
Abbildung 4.9: *(a) SIMS-Messung der Mg, Al und In-Konzentration einer Probenserie mit variierter p-(Al)GaN Wachstumstemperatur und (b) zugehörige EL-Leistungen bei 40 mA mit In-Bumps als p-Kontakt, aus [103].*



(a) (b)

Abbildung 4.10: *(a) Radialverteilung der EL-Leistung bei 40 mA über den Wafer für eine Serie von LED-Strukturen mit unterschiedlicher p-GaN Wachstumstemperatur. (b) Vergleich des Mg-Konzentrationsverlaufs von Mitte und Rand des Wafer einer LED-Struktur auf Saphir, die vergleichbar zu der Probe mit 1050°C in (a) ist.*

Das Erhöhen der Wachstumstemperatur T_G führt zu erhöhter Rückdiffusion der Mg-Atome in die AlGaN:Mg-Barriere und in die GaInN-QW, wie in Abb. 4.9(a) für verschiedene T_G dargestellt. Dabei bildet sich ein Plateau bei einer Mg-Konzentration von etwa $1,4 \cdot 10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$. Schnelltest-LED Ergebnisse zeigen, dass mit wachsender Mg-Diffusion die Effizienz der Elektrolumineszenz aufgrund verbesserter Löcher-Injektion ansteigt und schließlich ein Maximum erreicht. Bei weiterer Erhöhung von T_G nimmt die Effizienz wieder ab, da nun verstärkt Mg-Atome auch in die GaInN-Schichten zurück diffundieren und dort nichtstrahlende Rekombinationszentren bilden [104, 105], siehe Abb. 4.9(b).
Der Einfluss der Rückdiffusion auf die Homogenität der EL-Leistung über einen 2 Zoll Wafer ist in Abb. 4.10(a) dargestellt. Die Wachstumstemperatur im p-(Al)GaN Bereich wurde in 10°C Schritten zwischen T_G = 1030°C und T_G = 1060°C variiert. Die maximale EL-Leistung P_{EL} wird bei 1050°C gemessen und beträgt 5,0 mW mit Pt als p-Kontakt. Die hohe Leistung wird nur am Rand des Wafers erreicht und fällt zur Mitte hin bis auf unter 3 mW ab. Eine Verringerung von T_G auf 1040°C führt zu einer Verringerung von max. P_{EL} auf 4,7 mW, die auf halbem Radius des Wafers erreicht wird. Insgesamt wird mit 3,7 mW in der Mitte und am Rand des Wafers eine homogenere Verteilung der EL-Leistungen erzielt. Eine weitere Reduktion von T_G auf 1030°C führt zum Absinken der El-Leistung P_{EL} aller Dioden des Wafers, mit max. P_{EL} = 3,4 mW. Eine Erhöhung von T_G von 1050°C auf T_G = 1060°C führt ebenfalls zu einer Leistungsabsenkung gegenüber 1050°C auf max. P_{EL} = 2,5 mW bei gleich ausgeprägter Variation über den Wafer.
Bei hohen Temperaturen ist die Variation der EL-Leistungen P_{EL} über den Waferradius besonders ausgeprägt. Der Grund dafür ist die schüsselförmige konkave Krümmung des Wafers während der Epitaxie. Diese führt zu niedrigeren Wachstumstemperaturen am Rand des Wafers als in der Mitte, wo der Wafer aufliegt. Über die weiter oben beschriebene Rückdiffusion des Mg entsteht die Lumineszenzabschwächung in



(a) (b)

Abbildung 4.11: *(a) Differenz der Mg-Konzentrationsprofile: Mg(T_G) - Mg(1000°C). (b) Arrheniusauftragung der diffundierten Mg-Atome über der reziproken Wachstumstemperatur des p-(Al)GaN-Bereichs. Gezeigt sind 3 LED-Serien mit variierter Mg-Zielkonzentration, nach [106, 107].*

der Mitte. Der Unterschied im Mg-Profil zwischen Mitte und Rand des Wafers wird von SIMS-Messungen bestätigt und wird in Abb. 4.10(b) gezeigt. Analog führt eine zu niedrige Temperatur (1030°C) zu unzureichender Löcherinjektion in den aktiven Bereich und ebenfalls zur Lumineszenzabschwächung.
Aus der temperaturabhängigen diffundierten Mg-Konzentration lässt sich eine Aktivierungsenergie E_A für die Diffusion bestimmen. Dazu sind in Abb. 4.11(a) die Differenzkonzentration zwischen dem Mg-Profil bei erhöhter T_G und dem Profil bei 1000°C, mit vernachlässigbarer Diffusion, aufgetragen. Aus der Integration der Mg-Konzentration über die eindiffundierte Tiefe lässt sich die Anzahl der diffundierten Mg-Atome n bestimmen[4]. Zur Bestimmung von E_A ist im Arrheniusplot in Abb. 4.11(b) n über der reziproken Temperatur dargestellt. Um die Allgemeingültigkeit von E_A zu erhöhen, wurde diese Auswertung für 3 LED-Serien mit variierten Mg-Zielkonzentrationen von $3{\cdot}10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$, $6{\cdot}10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$ und $1{\cdot}10^{20}\,\mathrm{cm}^{-3}$ durchgeführt.

Zur Auswertung wurde ein *least-squares* Fit an die Arrhenius-Formel durchgeführt, die thermisch aktivierte Prozesse durch eine Aktivierungsenergie E_A charakterisiert:

$$n \propto \mathrm{e}^{-\frac{E_A}{k_B T}}$$

wobei k_B die Boltzmann-Konstante ist und T die Temperatur in Kelvin.
Für die drei LED-Serien ergeben sich Aktivierungsenergien für die Flächendichte der diffundierten Mg-Atome zwischen $E_A = 4{,}7\,\mathrm{eV}$ und $E_A = 4{,}5\,\mathrm{eV}$. Diese Werte liegen im Bereich der bei Si und GaAs gefundenen Werte für die Mehrzahl der Dotierstoffe [108, 109].
Eine andere Methode um E_A zu bestimmen ist die Analyse des Diffusionskoeffizienten D, der aus dem Tiefenprofil der Dotierstoff-Konzentration für verschiedene

[4]Die Anzahl n der Mg-Atome ist hier als Flächendichte $[\mathrm{Mg}]_{2D}$ angegeben.

Temperaturen gewonnen werden kann. Anwendung findet diese Methode hauptsächlich wenn Dotierstoffe aufgedampft oder implantiert werden und durch nachträgliche thermische Behandlung in den Kristall diffundieren. Es werden dabei, z. B. mittels SIMS, der Verlauf der Dotierstoffkonzentration in Abhängigkeit von der Eindringtiefe im Konzentrationsbereich von etwa 10^{21} bis $10^{16}\,\mathrm{cm}^{-3}$ gemessen. Mit einem Messbereich über $4-5$ Größenordnungen ist dieses Verfahren oft hinreichend genau um das Diffusionsverhalten bestimmen zu können, bzw. die Abweichung von dem unten beschriebenen einfachen Modell analysieren zu können. Im Gegensatz dazu steht bei der Epitaxie, speziell im Falle von GaN:Mg, wo eine Mg-Konzentrations-Obergrenze von einigen $10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$ und eine SIMS-Auflösungsgrenze von $10^{17}\,\mathrm{cm}^{-3}$ vorliegen, nur ein Messbereich über 2 Größenordnungen zur Verfügung.
Mathematisch kann als eine Lösung des ersten Fickschen Gesetzes eine Bestimmungsgleichung für den bereits erwähnten temperaturabhängigen Diffusionskoeffizienten D erhalten werden [108]. Da bei der Epitaxie eine feste Dotierstoffkonzentration C_0 eingestellt wird, die sich im Halbleiterkristall verteilt (*begrenzte Quelle*), wird der Konzentrationsverlauf der diffundierten Mg-Atome durch folgende Gleichung beschrieben [109]:

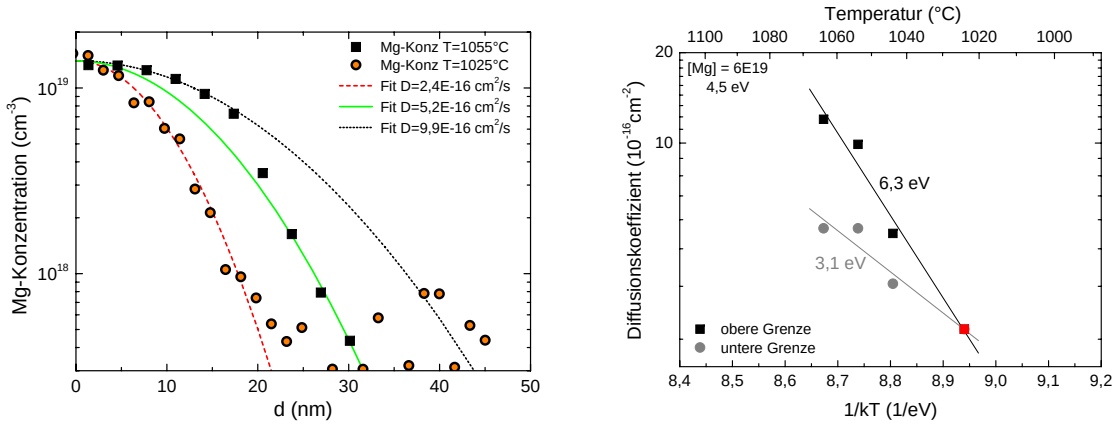
$$C(x,t) = \frac{C_0}{\sqrt{\pi D t}}\,\mathrm{e}^{-\frac{x^2}{4Dt}} \tag{4.1}$$

In Abb. 4.12(a) zeigt sich, dass das Mg-Tiefenprofil bei der niedrigsten von uns untersuchten Wachstumstemperatur, bei der noch Diffusion nachgewiesen wird (1025°C), mit dem einfachen Modell nach Gleichung 4.1 angepasst werden kann. Der Nullpunkt der x-Achse wurde dabei auf den Beginn des Mg-Plateaus gelegt.
Bei erhöhter Wachstumstemperatur kann dagegen nur eine untere [grün in Abb. 4.12(a)] und eine obere Grenze (schwarz gepunktet) für diese Anpassung gegeben werden. Die nach dieser Methode bestimmten Werte für den Diffusionskoeffizienten D werden in Abb. 4.12(b) dargestellt. Über die Temperaturabhängigkeit der Diffusionskoeffizienten

$$D = D_0\,\mathrm{e}^{-\frac{E_\mathrm{A}}{k_\mathrm{B}T}} \tag{4.2}$$

ergeben sich dann 3,1 eV und 6,2 eV als Unter- bzw. Obergrenze für die Aktivierungsenergie $E_\mathrm{A}(D)$. Die für die Flächendichte der diffundierten Atome bestimmte Aktivierungsenergie von $E_\mathrm{A} = 4,5\,\mathrm{eV}$ bildet den Mittelwert der über die Mg-Tiefenprofile bestimmten Grenzen für $E_\mathrm{A}(D)$ und erscheint damit gleich aussagekräftig.

Diese Anpassung durch eine Funktion mit konstantem Diffusionskoeffizienten D muss allerdings als sehr grobe Näherung betrachtet werden, denn:
Der steilere, als von der Anpassungskurve erwartete, Abfall der gemessenen Mg-Konzentration wird bei der Diffusion von Dotieratomen in binären Halbleitern häufig beobachtet und ist auf einen von der Dotierstoffkonzentration abhängigen Diffusionskoeffizienten zurückzuführen [110]. Dadurch wird jedoch die Lösung des ersten Fickschen Gesetzes nur noch numerisch möglich – im Gegensatz zur obigen analytischen Lösung mit einem konstanten Diffusionskoeffizienten. Hintergrund für die Konzentrationsabhängigkeit des Diffusionskoeffizienten ist der genaue Diffusionsprozess, der



(a) (b)

Abbildung 4.12: *(a) Mit SIMS gemessene Mg-Konzentrationsprofile der bei 1025°C und 1055°C gewachsenen Proben mit einer Mg-Zielkonzentration von* $6 \cdot 10^{19}\,cm^{-3}$ *und Anpassungen nach Gleichung 4.1. (b) Aus unterer und oberer Grenze bestimmte Aktivierungsenergien bei der Anpassung über eine Gaussfunktion.*

z. B. für Zink in GaAs ein Zwischengitterplatz-Gitterplatz-Austausch ist [111], der in ähnlicher Form auch bei der Diffusion von Mg in GaN stattfinden könnte. Eine genaue Beschreibung des Prozesses für Zink in GaAs würde den Rahmen dieser Arbeit sprengen und ist z. B. in Referenz [110] zu finden.
Auch die Entstehung des Plateaus ist durch verschiedene Diffusionsprozesse zu erklären. Die bei der Epitaxie eingebauten Mg-Atome sollten hauptsächlich substitutionell auf einem Ga-Platz eingebaut sein, was eine thermodynamisch sehr stabile Position ist, wie Berechnungen von Harafuji *et al.* [112] zeigen. Die Diffusion erfordert jedoch Zwischengitterplätze, die gleichzeitig nur von einer begrenzten Anzahl von Mg-Atome besetzt werden können, bevor die Löslichkeitsgrenze erreicht ist. Eine Möglichkeit ist also, dass Mg-Atome während der Epitaxie gleichzeitig substitutionell auf Gitter- und interstitiell auf Zwischengitterplätzen eingebaut werden und davon auf der untersuchten Zeit- und Temperaturskala nur die Diffusion der Zwischengitteratome beobachtet wird, die in erster Näherung ein Plateau bei der Löslichkeitsgrenze zeigt. Eine weitere Möglichkeit ist, dass die hauptsächlich substitutionell eingebauten Mg-Atome erst auf einen Zwischengitterplatz springen müssen, was nach Harafuji *et al.* [112] nur mit einer geringen Wahrscheinlichkeit stattfindet, bevor sie diffundieren. Im Gegensatz dazu können Dotieratome, die von der Oberfläche eindiffundieren, direkt über Zwischengitterplätze diffundieren, was zum Teil die Abweichung der von uns bestimmten Aktivierungsenergie $E_A = 4{,}5\,\text{eV}$ mit den Literaturwerten von 1,3 eV (Pan *et al.* [113]) und $E_A = 1{,}9\,\text{eV}$ (Benzarti *et al.* [114]) erklären könnte.
Es gibt jedoch noch weitere Gründe, weshalb deren gefundene Werte nicht unbedingt mit den von uns bestimmten Werten vergleichbar sind. Der von Pan *et al.* [113] gefundene Wert wurde an GaN-Proben gemessen, deren Dotierung in Mg-Atmosphäre eindiffundiert wurde und im Bereich der Oberfläche Mg-Konzentrationen von einigen $10^{21}\,\text{cm}^{-3}$ hatte, wenn man von einer detektierbaren Untergrenze von $10^{17}\,\text{cm}^{-3}$

ausgeht[5]. Die Werte von Benzarti *et al.* [114] wurden an MOVPE-gewachsenen GaN-Schichten mit mehrfacher Mg-Dotierung gemessen, wobei der Einfluss von Belegungsrate (*memory effect*) und Diffusion nicht getrennt wurde, siehe hierzu Abb. 4.8.
Obwohl wir im Vergleich zu LED-Strukturen mit deutlich höherem Al-Gehalt die gleiche Aktivierungsenergie finden [107], ist zu berücksichtigen, dass die Diffusion von Mg in GaN bei gleichen Wachstumsbedingungen geringer ist [101]. Da allerdings die in dieser Arbeit untersuchten LED-Strukturen im Mg-dotierten Bereich aus GaN und der AlGaN-Elektronenbarriere (10 nm) bestehen, ist ein Einfluss der AlGaN-Bariere auf die Diffusion nicht auszuschließen. Eine abschließende Beurteilung ist also erst möglich, wenn die Diffusion in GaN:Mg-Filmen statt in komplexen LED-Strukturen untersucht wird.

4.5. Optische Interferenz und Resonanzeffekte im p-Kontaktbereich

Das im QW erzeugte Licht wird rückseitig durch das transparente Substrat ausgekoppelt, wobei im Schnelltest standardmäßig reflektive Kontakte verwendet werden. Die Leitfähigkeit in Mg-dotiertem p-GaN ist durch die hohe Akzeptor-Aktivierungsenergie von $E_\mathrm{A} = 165\,\mathrm{meV}$ und die schlechte Löcher-Beweglichkeit μ_h von $10\,\mathrm{cm}^2/\mathrm{Vs}$ etwa 2 Größenordnungen niedriger als in mit Si-dotiertem n-GaN. Es ist daher notwendig, die Schichtdicken der p-GaN Kontaktschichten gering zu halten, um die seriellen Widerstände und damit die Betriebsspannung der LED zu verkleinern.
Bei Schichtdicken um 100 - 200 nm ist man im Bereich der Wellenlänge $\lambda_\mathrm{GaN} \approx 164\,\mathrm{nm}$ des emittierten Lichtes im Medium GaN. Dadurch muss die Interferenz des am p-Metallkontakt reflektierten Lichts mit direkt Richtung Substrat emittierten Lichts berücksichtigt werden und es ergeben sich optimale p-Kontaktschichtdicken mit hoher Lichtextraktion. Weitere Details zur Lichtextraktion werden in Abschnitt 6.2 erklärt. Als zusätzlicher Parameter geht hier noch der Phasensprung bei der Reflexion am Kontaktmetall mit ein, der allerdings abhängig von den Grenzflächenmaterialien und schwer gesondert zu bestimmen ist [115, 116, 117].
In Abb. 4.13 wird die EL-Leistung in Abhängigkeit von Abstand QW-zu-Metallkontakt für LEDs auf Saphir dargestellt. Die ersten beiden Extraktionsmaxima sind gut zu erkennen. Sie befinden sich bei $\approx 0{,}6\,\lambda_\mathrm{GaN}$ und $\approx 1{,}2\,\lambda_\mathrm{GaN}$. Die Positionen weichen damit etwas von den von Shen *et al.* [117] zu $0{,}67\,\lambda_\mathrm{GaN}$ und $1{,}25\,\lambda_\mathrm{GaN}$ bestimmten Werten ab, was mit der Verwendung von Ag-basierten p-Kontakten anstatt den von uns verwendeten Pt-basierten liegen kann. Die Steigerung der Ausgangsleistung bei Positionierung des QW im ersten Maximum beträgt mit $P_\mathrm{EL} = 8{,}0\,\mathrm{mW}$ im ersten zu $P_\mathrm{EL} = 6{,}1\,\mathrm{mW}$ im zweiten Maximum ca. 30%. Die Steigerung gegenüber dem Minimum beträgt ca. 200%. Die Position des QWs hat also bei den geringen p-GaN-Schichtdicken einen erheblichen Einfluss auf die Ausgangsleistung der LED. Die Reduzierung der p-GaN-Schichtdicke führt außerdem noch durch Mikrokavitätseffekte zu einer Leistungssteigerung, weil die räumliche Nähe eines Spiegels die strahlende

[5] Pan *et al.* zeigen nicht-kalibrierte Mg-Konzentrationen, so dass die absoluten Konzentrationen nur aus dem Konzentrations-Rausch-Verhältnis abgeschätzt werden können.

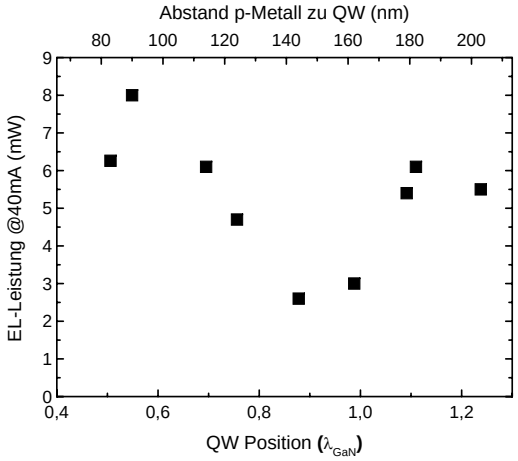


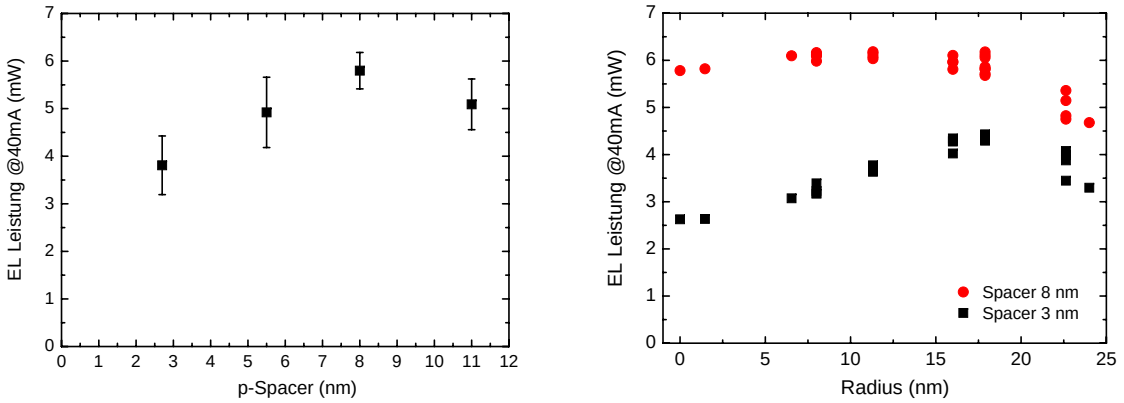
Abbildung 4.13: *EL-Leistung P_{EL} aufgetragen über der Dicke der p-GaN Kontaktschicht. Die Dicke der Kontaktschicht ist in Einheiten der emittierten Wellenlänge im Kristall λ_{GaN} angegeben, wobei $\lambda_{\mathrm{GaN}} = 164\,\mathrm{nm}$ beträgt.*

Lebensdauer von emittierenden Dipolen verkürzt [118, 119].

4.6. Einfluss der Breite des p-GaN-Spacers

Die Effizienz der Elektrolumineszenz wird neben der Form des Mg-Dotierprofils stark von der Lage des p-n-Übergangs relativ zu den QWs bestimmt. Am p-n-Übergang bilden sich durch Diffusion der beweglichen Ladungsträger eine Raumladungszone und dadurch interne elektrische Felder aus. Im LED-Betrieb unter Vorwärtsspannung werden nun Löcher und Elektronen als Überschuss-Ladungsträgerverteilungen in die Raumladungszone injiziert, wo sie rekombinieren. Eine hohe Injektionseffizienz bedeutet, dass die Maxima der Überschuss-Ladungsträger im optisch aktiven Bereich räumlich zusammenfallen.
In Abb. 4.14(a) ist der Einfluss der Breite des p-seitigen GaN-Spacers zwischen QW und Elektronenbarriere auf die EL-Leistung für SQW-LED-Strukturen dargestellt. Schwarze Quadrate stehen für den Mittelwert der EL-Leistung über den Wafer, die vertikalen Balken markieren die maximal und minimal erreichten Leistungen. Bei einer Breite von 3 nm werden maximal 4,5 mW gemessen. Mit Verbreiterung des Spacers steigt die Ausgangsleistung P_{EL} und erreicht ihr Maximum von 6,3 mW bei einer Spacerbreite von 8 nm. Die Leistungssteigerung der Maximalwerte beträgt 40% gegenüber den SQW-Strukturen mit 3 nm Spacer. Stark erhöht wird vor allem die Leistung in der Wafermitte von $P_{\mathrm{EL}} = 2{,}6$ auf 5,8 mW, was zu einer deutlich homogeneren Leistungsverteilung über den Waferradius führt, siehe Abb. 4.14(b).

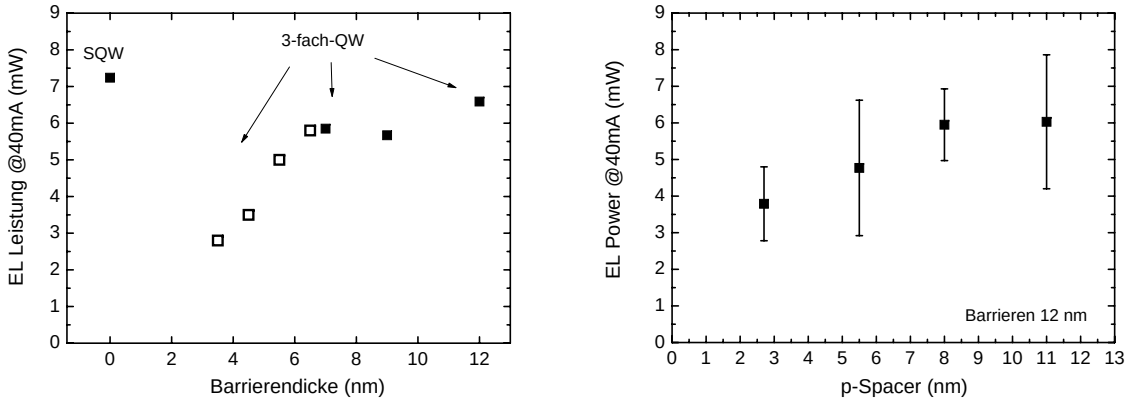
In Abb. 4.15(a) wird die EL-Leistung der SQW-LED-Struktur mit TQW-LED-Strukturen verglichen. Bei den TQW-Strukturen wurde die Dicke der GaN-Barrieren zwischen den InGaN-QWs von 3,5 bis 12 nm variiert. Die p-GaN-Spacerbreite beträgt sowohl bei den SQW- als auch bei den TQW-Strukturen 8 nm. Die offenen Quadrate repräsentieren einen Teil der Serie, die zu einem früheren Zeitpunkt gewachsen



(a) (b)

Abbildung 4.14: *(a) EL-Leistung bei 40 mA von SQW LED-Strukturen mit 170 nm dickem p-GaN aufgetragen gegen die Breite der p-Spacer Schicht. (b) Radiale Leistungsverteilung über den Wafer der Strukturen mit 3 und 8 nm p-Spacerbreite.*

wurden, wobei die gemessenen Leistungen aufgrund anderer p-Kontakte und p-GaN-Schichtdicken über einen, aus dem Vergleich der 7-nm-Proben bestimmten, Faktor angepasst wurden.
Die SQW-Probe zeigt mit einer Maximalleistung von $P_{\mathrm{EL}} = 7{,}2\,\mathrm{mW}$ die höchste Leistung. Die Maximalleistungen der TQW-Proben steigen von $P_{\mathrm{EL}} = 2{,}8\,\mathrm{mW}$ bei 3,5 nm dicken Barrieren steil an bis auf $P_{\mathrm{EL}} = 5{,}8\,\mathrm{mW}$ bei Barrierendicken von 7 nm. Eine weitere Verbreiterung der Barrieren führt nur noch zu einer geringen Erhöhung der EL-Leistung mit einem Maximum von $P_{\mathrm{EL}} = 6{,}6\,\mathrm{mW}$ bei 12 nm Barrierendicke.
Um ein besseres Verständnis der Ladungsträgerinjektion zu erlangen, wird in Abb. 4.15(b) der Einfluss der Breite des p-Spacers auf die TQW-Struktur mit 12 nm dicken GaN-Barrieren zwischen den QWs untersucht.
Im Gegensatz zum Maximum der SQW-Probe bei 8 nm, findet sich bei der TQW-Struktur mit steigender Spacerbreite ein stetiger Anstieg der maximalen EL-Leistung von $P_{\mathrm{EL}} = 4{,}8\,\mathrm{mW}$ bei 3 nm bis zum Maximum von $P_{\mathrm{EL}} = 7{,}9\,\mathrm{mW}$ bei einer Spacerbreite von 11 nm. Die Variation der EL-Leistung schwankt je nach Wafer und zeigt keine Korrelation mit der Spacerbreite. Die TQW-LED-Struktur mit 12 nm Barrierendicke und noch nicht vollständig optimierter p-Spacerbreite ist damit effizienter als die SQW-Struktur.
Offensichtlich sind beim Einsatz von MQW-LED-Strukturen breitere p-Spacer als bei SQW-Strukturen nötig, um eine möglichst effiziente strahlende Rekombination zu erreichen. Nicht geklärt werden konnte bis jetzt, ob der Grund dafür eine homogenere Injektion in alle QWs ist, oder ob die Injektion in den obersten QW auf diese Weise verbessert wird. Messungen von Stephan *et al.* [103] an farbkodierten QWs zeigen, dass hauptsächlich der p-seitige oberste QW leuchtet. David *et al.* [120] gehen sogar davon aus, dass ausschließlich der oberste QW spontane Emission zeigt. Auf der anderen Seite berichten neben Pan *et al.* [121] für 400 nm LEDs auch Peter *et al.* [122] für 525 nm LEDs eine Ladungsträgerinjektion in mehrere QWs und damit eine Verbesserung der EL-Effizienz durch Verwendung von MQW-Strukturen. Pan *et al.*



(a) (b)

Abbildung 4.15: *EL-Leistungen bei 40 mA von (a) Einfach- und Dreifach-QW LED-Strukturen mit p-Spacerbreiten von 8 nm. (b) EL-Leistung bei 40 mA von Dreifach-QW LED-Strukturen mit 12 nm breiten GaN-Barrieren aufgetragen gegen die Breite der p-Spacer Schicht. Die Dicke der p-GaN Kontaktschicht beträgt bei allen Strukturen 80 nm und die Leistungen wurden im Schnelltest mit gedampften Pt-p-Kontakten gemessen.*

[121] beobachteten beim Übergang von 5-fach zu 10- und 15-fach-QW-Strukturen eine Erhöhung der EL-Leistung um einen Faktor 2 und 3, weil dadurch der negative Effekt des Überfließens der Ladungsträger aus den flachen QWs durch zusätzliche QWs vermindert werde. Diese hohe Dynamik der EL-Leistung mit der Variation der QW-Anzahl widerspricht deutlich unseren Ergebnissen, ist aber hauptsächlich durch die geringe EL-Leistung der Proben von Pan *et al.* [121] mit 5 mW im Maximum und ca. 2 mW für die 5-fach QW-Probe erklärt, die auf eine geringe Injektionseffizienz bei dieser Struktur schließen lassen. Da keine genauen Angaben zur Verwendung von Spacern oder Dotierungen im aktiven Bereich gemacht werden, kann die zugrundeliegende Ursache der Diskrepanz zu unseren Ergebnissen nicht weiter geklärt werden.
Durch eine zusätzliche (n-)Dotierung im aktiven Bereich könnte auch bei unseren Proben eine weitere Verbesserung der Ladungsträgerinjektion in mehrere QWs erreicht werden, da sie die internen elektrischen Felder beeinflusst und dadurch zu einer gleichmäßigeren Verteilung der Ladungsträger führen kann. Um das Zusammenspiel von Spacerbreite, QW-Anzahl und Dotierprofilen zu klären, sind jedoch weitere Arbeiten nötig.

4.7. Zusammenfassung

Die in diesem Kapitel beschriebenen gezielten Variationen und Optimierungen an den Wachstumsparametern und der epitaktischen Struktur haben zu einer deutlichen Verbesserung der elektrooptischen Eigenschaften der LEDs auf Saphir geführt. So konnte die Elektrolumineszenz-Leistung im Schnelltest von anfangs maximal 3,0 mW, die nur am Rand des Wafers erreicht wurden, bis auf 8,0 mW, homogen über den

ganzen Wafer, erhöht werden.
Entscheidende Punkte für die Erhöhung der strahlenden Ausbeute η_{RE} waren dabei die Verbesserung der GaN-Kristallqualität durch Einführung eines 500-mbar-Anwachsbereichs nach der Nukleation und das Einstellen der Ladungsträgerinjektion auf der p-Seite. Für die Ladungsträgerinjektion waren das Verständnis und Anpassen der Mg-Rückdiffusion und die Verbreiterung des Spacers zwischen (letztem) QW und AlGaN-Elektronenbarriere essentiell. Das Reduzieren der p-Kontaktschichtdicke auf 80 nm brachte eine Erhöhung der optischen Extraktionseffizienz um 30%.
Ein weiterer Aspekt war die Ausdehnung des herstellbaren Emissionswellenlängenbereichs bis in den grünen Spektralbereich ($P_{\mathrm{EL}} = 1{,}9\,\mathrm{mW}$ bei 515 nm). Das Erreichen langer Emissionswellenlängen hängt maßgeblich von der Zusammensetzung des Trägergases während des Wachstums des aktiven Bereichs ab. Um die für den grünen Spektralbereich erforderlichen In-Gehalte zu wachsen, ist es unerlässlich reines N_2 als Trägergas zu verwenden. Selbst kleine Mengen H_2, im Bereich um und unter 5%, führen zu einer Verschlechterung des In-Einbaus, so dass nur noch Emissionswellenlängen von unter 450 nm möglich sind.

5. Wachstum auf Substraten mit reduzierter Defektdichte

Im vorangegangenen Kapitel wurde ausführlich das Wachstum auf Saphir behandelt. Dabei war eine klare Korrelation der EL-Leistungen mit der XRD-Halbwertsbreite und damit mit der Versetzungsdichte der Proben erkennbar. Um die Wirkung einer noch geringeren Defektdichte zu untersuchen, wird in diesem Kapitel auf den Übergang von defektreichem Wachstum auf Saphir zum Wachstum auf defektreduzierten GaN-auf-Saphir-Quasisubstraten (sogenannte *Templates*) und freistehenden GaN-Substraten eingegangen. Dabei wird nach den Besonderheiten und Verbesserungen des Wachstums auf ULD-Templates und freistehendem GaN auch auf die optische Transmission der Substrate eingegangen.

5.1. Übergang von Saphir zu ULD-Templates und freistehenden GaN-Substraten

Im Gegensatz zum Wachstum auf Saphir entfällt beim Wachstum auf ultra-low dislocation GaN-Templates (ULD) oder freistehenden GaN-Substraten (FS-GaN) der komplette Nukleations- und Anwachsschritt und die epitaktische Schicht kann direkt bei der optimalen Wachstumstemperatur abgeschieden werden. Als die ersten HPS-GaN-Substrate verfügbar waren, war eine Vorbehandlung der Substrate vor der Epitaxie nötig, um die nicht zur Epitaxie geeignete (engl.: „epi-ready“) GaN-Oberfläche auf eine ausreichend niedrige Oberflächenrauigkeit zu polieren und von Restverunreinigungen zu säubern [123]. Nach der mechanischen Politur ist es nötig den auch unter der Oberfläche entstandenen Polierschaden (engl.: „sub-surface damage“) zu entfernen. Da keine nasschemischen Ätzlösungen mit homogenem Schichtabtrag für GaN bekannt sind, kamen trockenchemische Verfahren wie das chemisch assistierte Ionenstrahlätzen (engl.: „chemical assisted ion-beam etching“, CAIBE) oder das reaktive Ionenätzen (engl.: „reactive ion etching“, RIE) in Frage [123, 124]. Auch HVPE-gewachsene GaN-Templates erforderten anfangs eine aufwändige Oberflächenpräparation, da beim Wachstum auf exakt orientierten Saphisubstraten pyramidenähnliche Oberflächenstrukturen auftraten [125]. Durch den Übergang auf mit 0,3° leicht fehlorientierte Saphirsubstrate konnte jedoch eine stark verbesserte glatte Oberflächenmorphologie der HVPE-Template-Schichten erzielt werden [126], die viel weniger Polieraufwand erfordert. Um verbleibende Restverunreinigungen zu entfernen, werden die Templates in-situ vor der Epitaxie in einer H_2 /NH_3 -Atmosphäre auf hohe Temperatur von > 1000°C gebracht. Dabei wird das GaN gleichzeitig durch das N-Angebot stabilisiert, aber die GaN-Oberfläche auch angeätzt. Zusammen mit Reak-

tionen des NH_3 mit O und C führt dies zur Reduktion der Restverunreinigungen an der Oberfläche [127].

5.1.1. Wachstum auf ULD-Template

Für die Reinigung der ULD-Templates wurde die Wachstumstemperatur unter H_2 und NH_3 in neun Minuten von 500°C auf 1100°C erhöht. Danach wurde das GaN-Wachstum begonnen. Der TMGa-Fluss wurde in den ersten 10 Minuten von 10 sccm auf 30 sccm erhöht, um anfangs ein höheres V-III-Verhältnis und damit eine höhere Adatom-Beweglichkeit zu erhalten.
Abbildung 5.1 vergleicht die Oberflächenmorphologie eines ULD-Templates vor und nach der Epitaxie einer LED-Schichtenfolge. Während die Grobstruktur des Templates erhalten bleib, sind nach der Epitaxie zusätzlich Pyramiden mit hexagonaler Grundfläche von typisch 10 μm Durchmesser zu beobachten. Sie haben als Kern stets eine deutlich erkennbare Schraubenversetzung und entstehen erst beim Wachstum der Mg-dotierten p-Kontaktschicht.

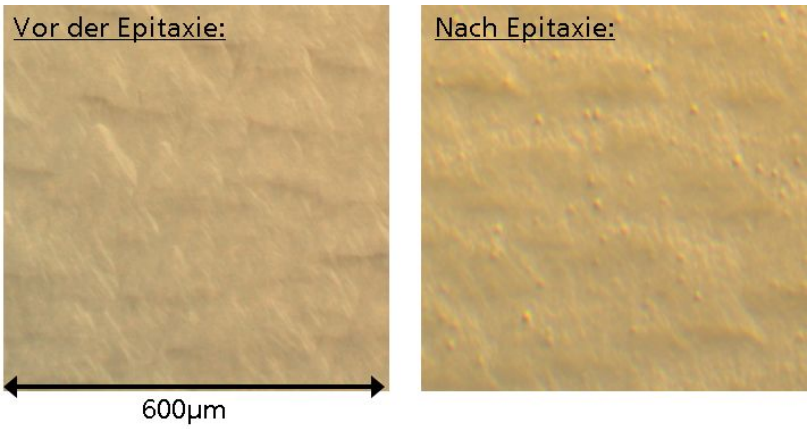


Abbildung 5.1: *Normaski-Aufnahme der Oberfläche eines ULD-Templates vor und nach der Epitaxie einer LED-Struktur.*

Die TDD, die nach der Epitaxie gemessen wurde, beträgt zwischen $9 \cdot 10^7 \mathrm{cm}^{-2}$ (GPD) und $1 \cdot 10^8 \mathrm{cm}^{-2}$ (EPD + TEM) und stimmt damit sehr gut mit der Herstellerangabe von typisch $8 \cdot 10^7 \mathrm{cm}^{-2}$ für das Substrat überein. Dies bedeutet, dass beim Wachstum des aktiven Bereichs keine neuen Versetzungen entstanden sind.

5.1.2. Wachstum auf LPE-Template

Im Rahmen eines Projekts des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF) wurden mehrere mit Niedrigdruck-Lösungszüchtung (LPSG) gewachsene GaN-Templates unseres Projektpartners am Institut für Integrierte Systeme und Bauelementtechnologie (IISB) von uns charakterisiert. Die drei jeweils $1 \times 1\,\mathrm{cm}^2$ großen Templates unterschieden sich in der Art der Oberflächenbehandlung und hatten als Keim eine von uns mittels MOVPE gewachsene GaN-Schicht auf Saphir. Die Evaluation der Templates als Substrat für das GaN-Wachstum wurde durch die Epitaxie

einer Standard-LED-Struktur vorgenommen.
Tabelle 5.1 gibt einen Überblick über die Substrate hinsichtlich der Oberflächenbehandlung und der daraus resultierenden Charakteristika, wie sie vor der Epitaxie mit AFM und PL bestimmt wurden.

Substrat	**Oberflächen-behandlung**	**rms-AFM Rauigkeit (nm)**	**mittl. PL-Wellenlänge**	**max. PL-Intensität**
A	wie gewachsen	0,7	363,4	$1,5 \cdot 10^3$
B	poliert	0,4	363,8	$4,6 \cdot 10^3$
C	poliert + RIE geätzt	0,7	363,5	$1,1 \cdot 10^3$

Tabelle 5.1: *Übersicht der LPE-Template-Charakteristika vor der Epitaxie.*

Die polierte Probe B zeigt mit 0,4 nm die geringste Rauigkeit, der Unterschied zu den anderen beiden Proben mit 0,7 nm ist deutlich. Die Emissionswellenlänge der GaN-Bandkante hat nur eine geringe Variation von 363,4 nm für Probe A bis 363,8 nm für Probe B. Die PL-Intensitäten jedoch variieren deutlich von $1,1 \cdot 10^3$ für Probe C bis $4,6 \cdot 10^3$ für Probe B. Damit zeigt die nur polierte Probe neben der geringsten Rauigkeit, der längsten Wellenlänge auch die höchste Intensität.
Aufgrund der kleinen Größe der Substrate konnte auf allen drei Templates im selben Epitaxie-Run gewachsen werden. Die Oberfläche der Probe A ist nach der Epitaxie homogen und glatt, bei Probe B und C ist eine Seite der gewachsenen Struktur matt. Unter dem Licht-Mikroskop sind bei Probe A allerdings Cracks sichtbar, im Gegensatz zu den behandelten Substraten B und C. Die Topographie auf kleinerer Größenskala wird in Abb. 5.2 anhand von $5 \times 5\,\mu$m AFM-Aufnahmen von vor und nach der Epitaxie verglichen. Die unbehandelte Oberfläche von Probe A zeigt schon vor der Epitaxie Wachstumsterassen (deutlich auf der Originalaufnahme zu sehen), bei Probe B sind Polierriefen sichtbar und Probe C ist unstrukturiert. Auf allen Proben finden sich Partikel, die eine Höhe zwischen 70 und 150 μm für Proben A und B und nur ca. 10 nm für Probe C haben. Die polierten Proben B und C zeigen zusätzlich Löcher, deren Tiefe durch die Geometrie der AFM-Spitze begrenzt und auf Probe B mindestens 4 nm, bei der zusätzlich geätzten Probe C > 20 nm beträgt.
Nach der Epitaxie zeigen alle Proben deutliche Wachstumsterassen, die bei kleinen Scanbereichen um wenige μm eine sehr glatte Oberfläche bilden. Bei größeren Scanbereichen ab $40 \times 40\,\mu$m erhöht sich die Rauigkeit jedoch in Form von dann sichtbaren Pyramiden und Gräben, dabei zeigt Probe C mit 9,9 nm die höchste Rauigkeit, Probe B 6,8 nm und Probe A ist mit 3,9 nm am glattesten.
Bei den Lumineszenz-Eigenschaften zeigt Probe C die höchsten Effizienzen, wie in Tab: 5.2 zu sehen ist. Während Probe B in der PL nicht auswertbar ist, da die GaInN-Emission zu nah an der GaN-Bandkantenemission liegt, zeigt Probe C mit einer maximalen integrierten Intensität der GaInN-Emission von $8,1 \cdot 10^3$ bei 395,5 nm eine fast drei mal höhere Intensität als Probe A mit $2,9 \cdot 10^3$ bei 415,9 nm. Das Verhältnis der EL-Leistungen der Proben B und C beträgt etwa einen Faktor 10, mit 0,09 mW für Probe A und 1,0 mW für Probe C, Probe B zeigt immer noch 0,06 mW.
Offensichtlich wird bei der Politur der Substrate zwar die Rauigkeit der Oberfläche verringert und das Cracken der Epitaxie-Schicht verhindert, gleichzeitig werden

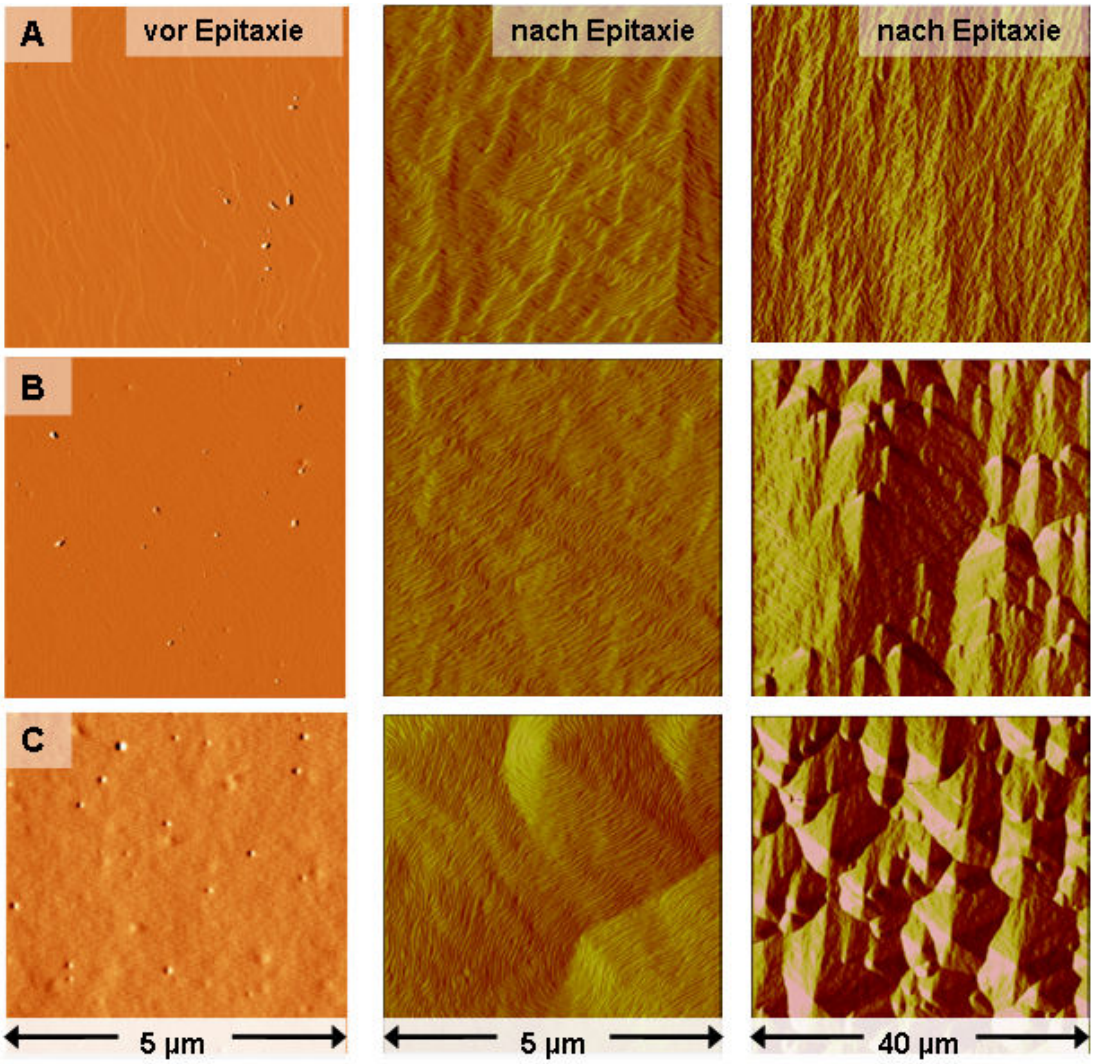


Abbildung 5.2: *AFM-Amplituden-Aufnahmen von LPE-gewachsenen GaN-Templates vor und nach der Epitaxie einer LED-Struktur.*

aber Defekte unterhalb der Oberfläche generiert, wie die etwas höhere EL-Leistung der Probe A andeutet. Die deutlich höheren EL-Leistungen auf der Probe C lassen darauf schließen, dass die zusätzliche RIE-Ätzung zumindest einen Teil dieses Polierschadens abträgt. Da die EL-Leistungen im Vergleich zu unseren LED-Strukturen auf Saphir noch mindestens einen Faktor 6 geringer sind, muss allerdings genauer untersucht werden, ob das Ätzen in der RIE wiederum einen Ätzschaden verursacht. Zu beachten ist außerdem, dass bei der geringen Probengröße von 1 cm^2 Randeffekte eine große Rolle spielen, die durch nicht optimale Wachstumsbedingungen oder Schäden beim Spalten des Wafers entstehen. Es ist daher möglich, dass die EL-Leistungen auf ganzen 2-Zoll-Substraten höher ausfallen. Dies ist unseres Wissens nach die erste LED-Epitaxie auf LPE-gewachsenen Templates, so dass die EL-Leistungen von 1 mW durchaus ermutigend sind.

Substrat	rms-AFM Rauigkeit (nm) $5 \times 5\,\mu$m	rms-AFM Rauigkeit (nm) $40 \times 40\,\mu$m	max. PL-Intensität	max. EL-Leistung (mW)	mittlere λ_{EL} (nm)
A (unbeh.)	0,6	3,9	$2,9 \cdot 10^3$	0,09	405
B (pol.)	0,4	6,8	-	0,06	396
C (pol./RIE)	1,3	9,9	$8,1 \cdot 10^3$	1,0	400

Tabelle 5.2: *Übersicht über die Charakteristika der LED-Strukturen auf LPE-gewachsenen Templates.*

5.1.3. Wachstum auf FS-GaN

Die Wachstumsbedingungen für die LED-Strukturen auf FS-GaN wurden identisch zu denen auf ULD-Templates gewählt.
Abbildung 5.3 zeigt anhand von Normaski-Lichtmikroskop- und AFM-Aufnahmen die Oberflächenmorphologie eines GaN-Substrats vor und nach der Epitaxie der LED-Struktur. Vor der Epitaxie sind auf den Normaski-Aufnahmen Ausbrüche aus der Oberfläche als schwarze Punkte erkennbar, die über die komplette Waferfläche verteilt sind. Die bei der Politur ausbrechenden Stücke sind einige zehn Mikrometer groß und führen zu den ebenfalls deutlich sichtbaren Polierriefen. Nach der Epitaxie zeigt die Oberflächenmorphologie ein uneinheitliches Bild über die gesamte 2 Zoll Fläche. Während in der Nähe des Waferflats eine glatte Oberfläche mit deutlich maskierten Polierriefen und den noch sichtbaren Ausbrüchen zu beobachten ist, wird die Oberfläche in der Nähe des Antiflats von dichtstehenden hexagonalen Pyramiden gebildet, die die anfängliche Struktur komplett überdecken.
Die AFM-Aufnahmen vor der Epitaxie zeigen auch auf kleiner Größenskala deutliche Polierriefen und kleine Ausbrüche im Bereich von 1 bis 5 μm. Die Rauigkeit ist mit 5,9 nm für einen 10-μm-Scanbereich hoch. Nach der Epitaxie werden die kleinen Polierdefekte vollständig überdeckt und über den ganzen Wafer können einzelne parallele Monolagen aufgelöst werden, die Zeichen für das Frank-van-de-Merve- oder *Step-flow*-Wachstum sind. In der Nähe des Flats beträgt die Rauigkeit 1,2 nm und ist durch die etwa 2,5 nm hohen Terrassen (sogenanntes *step-bunching*) im Abstand von 400 nm deutlich erhöht gegenüber den 0,6 nm Rauigkeit im Zentrum des Wafers. Am Antiflat führen die hexagonalen Pyramiden mit einer Höhe zwischen 50 und 100 nm zu einer Rauigkeit von 5,3 nm.
Der Grund für die unterschiedliche Morphologie an verschiedenen Stellen des Wafers ist die variierende Orientierung der Kristallebenen bezüglich der Waferoberfläche. Beim heteroepitaktischen HVPE-Wachstum des GaN-Substrates selbst, entstehen Verspannungen, die auch nach Ablösen des ursprünglichen Substrates (GaAs oder Saphir) erhalten bleiben und zu einer Verbiegung des nun freistehenden GaN-Films führen, siehe Abb. 5.4.
Um daraus epitaxierfähige GaN-Substrate herzustellen, wird die Schichtdicke durch Läppung so weit reduziert, dass Vorder- und Rückseite planparallel zueinander sind [128]. Dadurch entstehen lokal unterschiedliche Fehlorientierungen an der Oberfläche, was beim Wachstum zu den unterschiedlichen Morphologien führt.

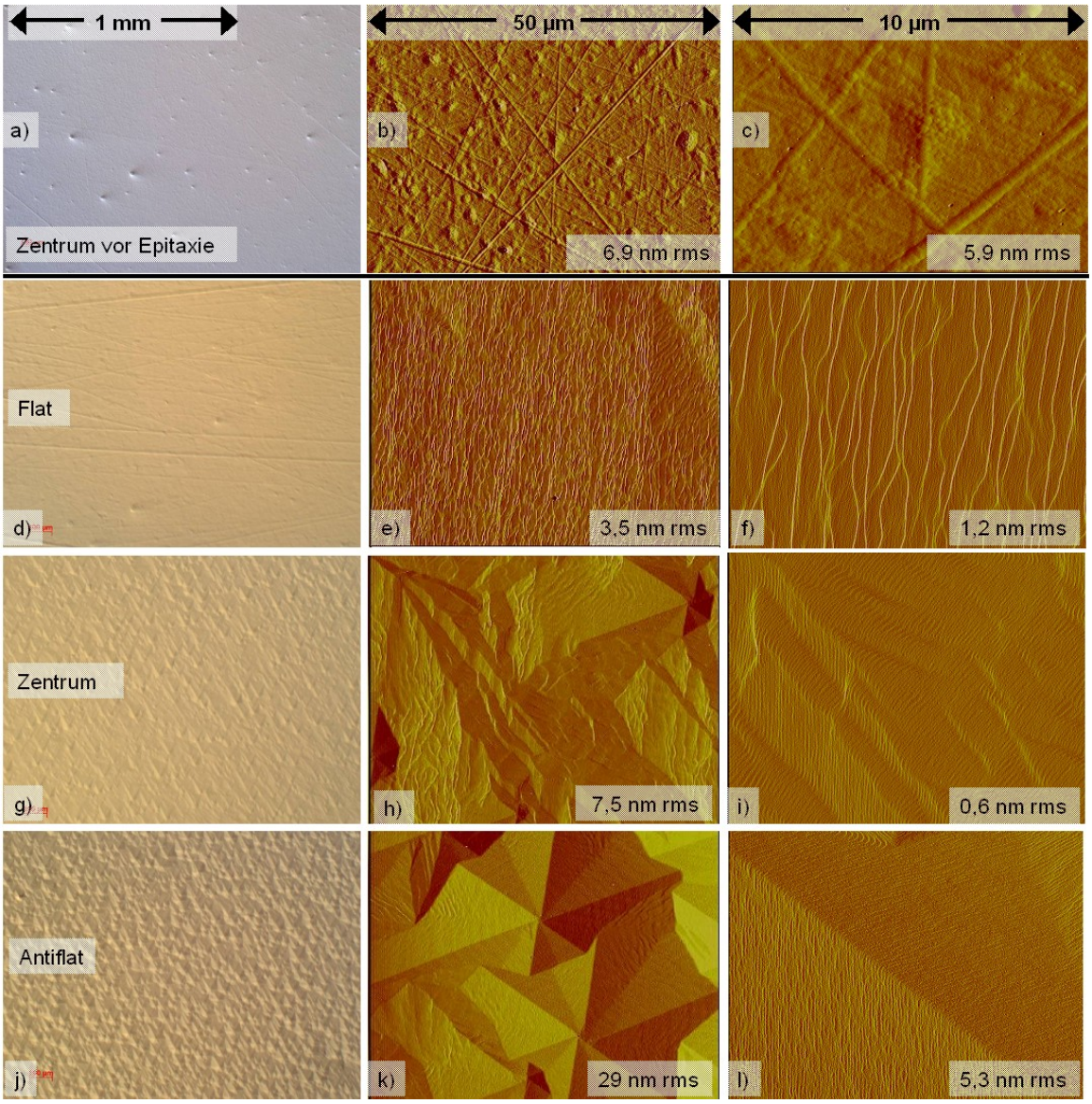


Abbildung 5.3: *Vergleich der Oberflächenmorphologie eines FS-GaN Substrates vor (a, b und c) der Epitaxie einer LED-Struktur und danach (d - l). Die Bildteile (a, d, e, f) entsprechen Normaski-Aufnahmen, (b, c, g, j, h, k, i, l) sind AFM-Amplitudenbilder.*

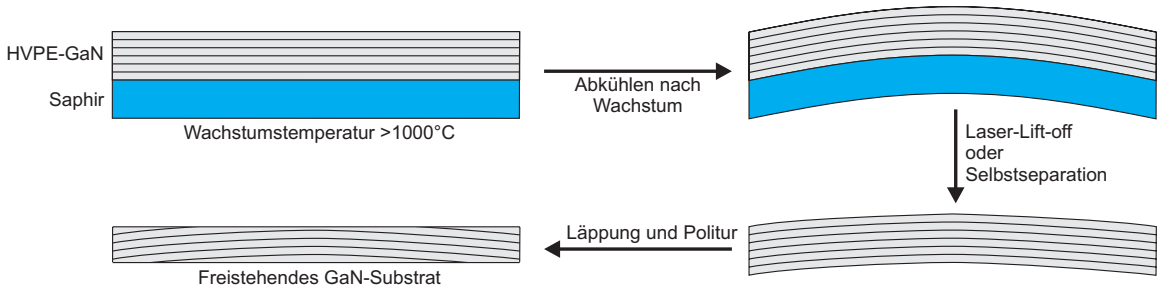


Abbildung 5.4: *Schematische Darstellung des Wafering-Prozesses von freistehenden GaN-Substraten.*

Die TDD der GaN-Substrate wird vom Hersteller je nach Charge mit $(2-6)\cdot 10^7\mathrm{cm}^{-2}$ angegeben. Über EPD wurde an einem 3,6 μm dicken GaN:Si Puffer auf FS-GaN (vom Hersteller mit $6\cdot 10^7\mathrm{cm}^{-2}$ charakterisiert) eine TDD von $6,6\cdot 10^7\mathrm{cm}^{-2}$ bestimmt, die nach Wachstum des aktiven Bereichs auf $1,4\cdot 10^8\mathrm{cm}^{-2}$ anstieg. Zum Vergleich der EPD von Puffer und kompletter LED-Struktur auf dem gleichen Substrat, war allerdings eine Wachstumsunterbrechung mit Ausschleusen und Spalten der Probe erforderlich, was die Wahrscheinlichkeit für Verunreinigungen vergrößert. Die Erhöhung der Defektdichte kann somit zum einen durch das Wachstum des aktiven Bereichs mit den kompressiv verspannten QWs und der tensil verspannten Elektronenbarriere verursacht sein, zum anderen aber auch durch die ex-situ-Probenanalytik zwischen den beiden Wachstumsschritten. Die GPD-Bestimmung der Defektdichte an einem Substrat mit typisch $2\cdot 10^7\mathrm{cm}^{-2}$ als Herstellerangabe ergab einen Wert von $(2,3-4,1)\cdot 10^7\mathrm{cm}^{-2}$ und ist damit, über eine größere Fläche gemittelt, innerhalb der vom Hersteller als Maximalwert angegebenen Spezifikation von $4\cdot 10^7\mathrm{cm}^{-2}$.

5.2. Photolumineszenzspektroskopie der LED-Strukturen im Vergleich

Da die Verbiegung der GaN-Substrate nicht abgebaut, sondern nur *glatt poliert* wird, führt die hohe Temperatur beim Überwachsen der Wafer in der MOVPE zu einer erneuten Verformung. Wie schon anhand von Saphir in Kapitel 4 beschrieben, führt eine Verformung zu lokalen Temperaturunterschieden auf dem Wafer und damit zu lokal geänderten Wachstumsbedingungen. Ein klarer Indikator für die Wachstumstemperatur T_G ist der In-Einbau, der stark temperaturabhängig ist und leicht über die Emissionswellenlänge λ analysiert werden kann. In Abbildung 5.5 werden PL-Mappings von TQW-LED-Strukturen mit identischem Wachstumsbedingungen ab dem Puffer auf Saphir, ULD-Template und FS-GaN miteinander verglichen.
Charakteristisch für die LED-Strukturen auf Saphir ist die im Zentrum des Wafers um $\Delta\lambda\approx 2\,\mathrm{nm}$ kurzwelligere Emission mit verminderter Intensität im Vergleich zum Rand. Im Gegensatz dazu zeigen Epitaxien auf ULD-Templates und GaN-Substraten eine längere Wellenlänge in der Mitte als am Rand des Wafers. Der Unterschied $\Delta\lambda$ zwischen kürzester und längster PL-Emissionswellenlänge λ_PL beträgt bei ULD $\approx 7\,\mathrm{nm}$ und auf FS-GaN $\approx 15\,\mathrm{nm}$. Beide Substrate zeigen auch in der Mitte des Wafers

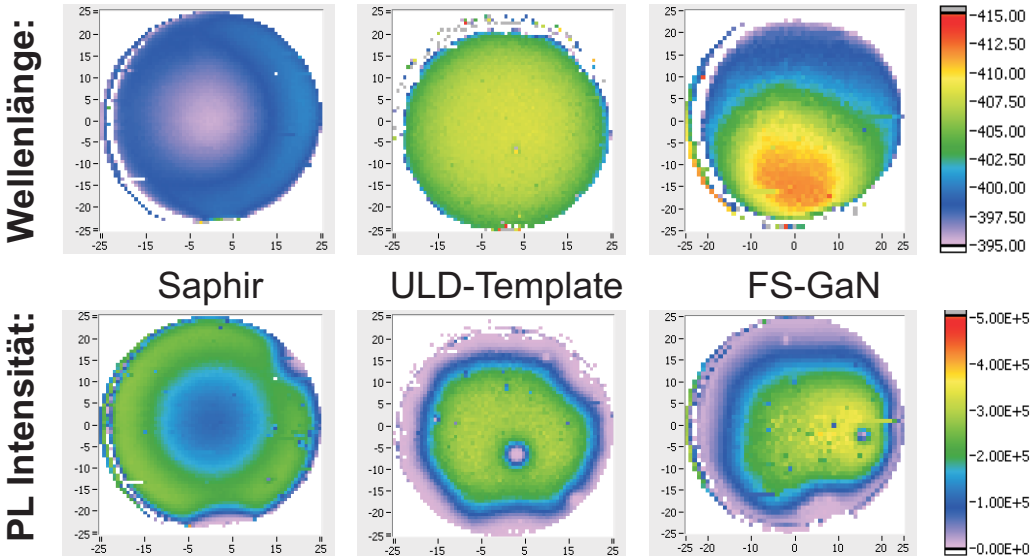


Abbildung 5.5: *PL-Wellenlängen- und PL-Intensitäts-Mapping einer LED-Struktur auf Saphir, ULD und FS-GaN. Die Wafer sind so angeordnet, dass der Flat unten liegt (auf „6 Uhr“).*

die höchste PL-Intensität. Bei ULD ist eine radialsymmetrische Verteilung sowohl der Wellenlänge als auch der Intensität zu beobachten, so dass das Minimum der Wellenlänge mit dem Maximum der Intensität zusammenfällt. Bei FS-GaN hingegen sind die kürzesten Wellenlängen λ_{PL} am Rand in der Nähe des Antiflats zu beobachten und die längsten Wellenlängen im Bereich des Flats. Während die Form des Saphirsubstrats während der Epitaxie des aktiven Bereichs als flache Schüssel und die des ULD-Templates als kuppelförmig beschrieben werden kann, muss man sich das GaN-Substrat als asymmetrische Schüssel oder als *Kartoffelchip* vorstellen. Die maximale PL-Intensität wird jedoch unabhängig von der Wellenlänge in einem breiten mittleren Bereich des Wafers gefunden.

5.3. Optimierung der Pufferschicht beim Wachstum auf FS-GaN

Im Laufe dieser Arbeit wurden FS-GaN-Substrate aus unterschiedlichen Lieferungen des Herstellers verwendet. Die Substrate sind entweder einseitig poliert[1] (SSP), doppelseitig poliert (DSP) oder doppelseitig poliert mit zusätzlich einer 3 μm dicken MOVPE-gewachsenen GaN:Si-Schicht auf der Vorderseite (DSP-E) verfügbar. Zwischen den einzelnen Lieferungen zeigten sich zum Teil unterschiedliche Charakteristiken hinsichtlich der Oberflächenbehandlung und EL-Leistung, weshalb die Wafer einer Lieferung im Folgenden als Charge bezeichnet werden.
Die Fehlorientierung der GaN-Oberfläche ist bei allen gelieferten FS-GaN Substra-

[1] Einseitig poliert heißt hier, dass die Substrate nach der doppelseitigen Politur rückseitig wieder angeätzt werden, um eine raue Rückseite zu erhalten.

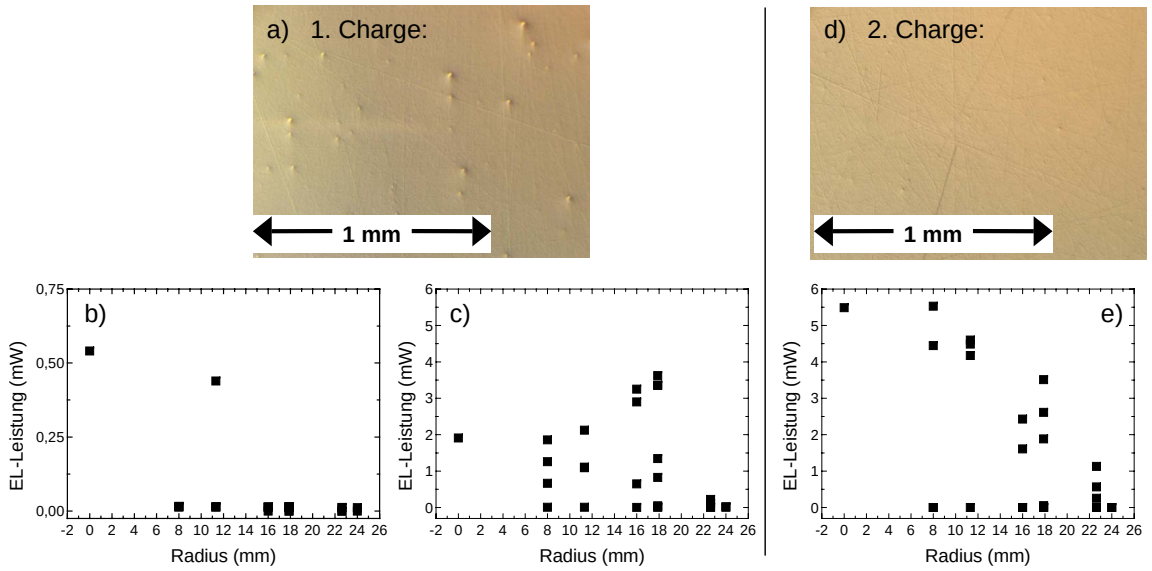


Abbildung 5.6: *Normaski-Aufnahme der polierten Oberfläche von SSP FS-GaN-Substraten der (a) ersten und (d) zweiten Charge mit der Radialverteilung der EL-Leistung für die drei ersten Epitaxien [Probe 1 - 3, Bild (b),(c) und (d)] auf FS-GaN.*

ten vorhanden, nicht genauer spezifizierbar, aber abhängig vom einzelnen Wafer und nicht von der Chargennummer. Dies bedeutet, dass die resultierende Variation der Emissionswellenlänge $\Delta\lambda_{\mathrm{PL}}$ nach der Epitaxie von vergleichbarer Größe ist, jedoch die lokale Verteilung (z.B. Flat oder Antiflat) von λ_{PL} und der Oberflächenmorphologie, variiert.

In Abbildung 5.6 sind Normaski-Aufnahmen der FS-GaN-Oberfläche der ersten und zweiten Charge [5.6(a),(d)], sowie die EL-Leistungen von LED-Strukturen auf entsprechenden SSP-Substraten verglichen [5.6(b),(c),(e)]. Als LED-Struktur wurde die in Kapitel 4.1 beschriebene Standardstruktur mit einem 1 μm dicken GaN:Si-Puffer verwendet. Die LED-Strukturen von Abb. 5.6(b) und (c) wurden auf Substraten der ersten Charge gewachsen, wobei das Substrat von Probe 1 [Bild (b)] zuvor eingehend charakterisiert und das von Probe 2 [Bild (c)] direkt aus der Verpackung in den Reaktor eingeschleust wurde.

Das Mapping von Probe 1 zeigt eine schlechte Ausbeute von nur 2 funktionierenden Dioden mit einer maximalen EL-Leistung von $P_{\mathrm{EL}} = 0{,}5\,\mathrm{mW}$. Probe 2 zeigt mit sechs nicht funktionierenden Dioden eine höhere Ausbeute mit ebenfalls erhöhten Maximalleistungen von $P_{\mathrm{EL}} = 3{,}7\,\mathrm{mW}$. Die deutlich schlechtere EL-Charakteristik der Probe 1 kann durch das frühere Auspacken und Charakterisieren außerhalb des Reinraumes verursacht sein, wodurch sich Verunreinigungen auf der Oberfläche angelagert haben können. Bei den folgenden Epitaxien auf FS-GaN wurden deshalb die Substrate erst unmittelbar vor dem Einschleusen in den Reaktor ausgepackt und nicht außerhalb des Reinraumes charakterisiert.

Abbildung 5.6(d) zeigt die Oberfläche der FS-GaN Wafer der zweiten Charge. Im Vergleich zur ersten Charge (Abb. 5.6(a)) ist eine geringere Anzahl von Ausbrüchen sichtbar, bei gleich bleibend gut erkennbaren Polierriefen. Das in Abb. 5.6(e) dar-

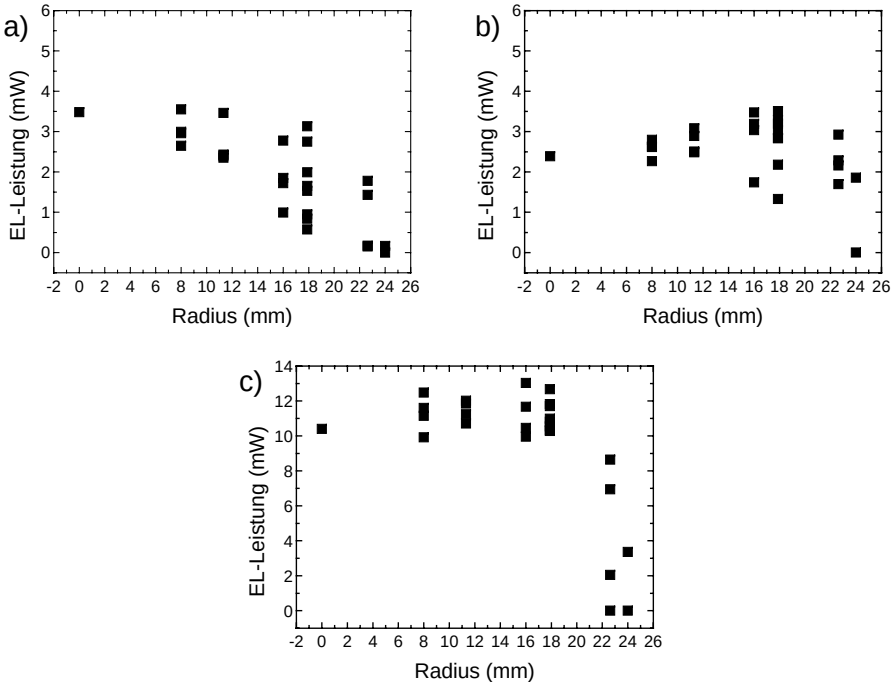


Abbildung 5.7: *EL-Leistung-Mappings von LED-Strukturen auf doppelseitig poliertem FS-GaN-Substrat mit 3 µm dickem GaN:Si-Puffer vom Hersteller [Probe 4, Bild (a)] und 5 µm dickem GaN:Si-Puffer vom IAF [Probe 5, Bild (b)], sowie einseitig poliertem FS-GaN mit 4 µm dickem GaN:Si Puffer vom IAF [Probe 6, Bild (c)].*

gestellte Mapping zeigt die EL-Leistungen der Probe 3, die auf diesem Substrat gewachsen wurde und die die gleiche LED-Struktur wie die vorherigen Proben aufweist. Obwohl sich die verbesserte Politur der zweiten FS-GaN Charge in einer höheren EL-Leistung von maximal $P_{\mathrm{EL}} = 5{,}5\,\mathrm{mW}$ bemerkbar macht, ist die Ausbeute mit fünf Dioden, bei denen keine EL messbar ist, noch verbesserungsfähig.
In Abb. 5.7(a) ist das EL-Mapping der LED-Struktur der Probe 4 auf einem DSP-E Substrat der zweiten Charge dargestellt. Die im Vergleich zu Probe 3 niedrige EL-Leistung von maximal $P_{\mathrm{EL}} = 3{,}5\,\mathrm{mW}$ ist durch die schlechtere optische Extraktionseffizienz η_{ex} der polierten Rückseite erklärt. Nebeneinander liegende Dioden zeigen vergleichbare Helligkeit und es sind keine Ausfälle zu beobachten. Die geringe lokale Variation der EL-Leistung und die hohe Ausbeute von nahezu 100% sind also dem vom Hersteller aufgewachsenen 3 µm dicken Puffer zu verdanken. Um dies zu verifizieren, wurde Probe 5 [Bild (b)] auf einem DSP-Substrat gewachsen und dafür der mit MOVPE gewachsene GaN:Si-Puffer von standardmäßig 1 µm auf 4 µm Dicke vergrößert. Auch bei dieser Probe funktionieren alle Dioden und die Maximalleistung beträgt 3,5 mW. Damit ist der positive Einfluss des dickeren Puffers bestätigt und als Pufferdicke für folgende Epitaxien wurde 5 µm gewählt.
In Abb. 5.7(c) ist das EL-Mapping der Probe 6 dargestellt, die auf einem SSP Substrat der zweiten Charge abgeschieden wurde. Die epitaktische Schichtenfolge entsprach der LED-Struktur mit 5 µm Pufferdicke, allerdings wurden alle Wachstumstemperaturen um 10°C angehoben. Sowohl die Ausbeute als auch die EL-Leistung mit P_{EL}

= 13,0 mW als Maximalwert sind hervorragend, nur am äußersten Rand des Wafers sind Leistungen unter 10 mW und Ausfälle zu finden. Der Einfluss der um 10°C erhöhten Wachstumstemperatur ist als eher gering einzustufen, so dass die Steigerung der EL-Leistung P_{EL} um fast einen Faktor vier gegenüber den Proben auf doppelseitig poliertem FS-GaN hauptsächlich von der geänderten Extraktionseffizienz η_{ex} der geätzten Rückseite verursacht wird, siehe Kapitel 6.2.1.

5.4. Zusammenfassung

Der in diesem Kapitel beschriebene Übergang vom Wachstum der LED-Strukturen auf Saphir-Substraten zum Wachstum auf defektreduzierten Substraten führte zu einer weiteren Verbesserung der elektrooptischen Eigenschaften der LED-Strukturen. Mit einer maximalen EL-Leistung von 13 mW bei 40 mA im Schnelltest für eine LED-Struktur auf einem einseitig polierten FS-GaN-Substrat konnte in neuer Bestwert der EL-Leistung erzielt werden.
Das Verwenden einer 5 μm dicken GaN:Si-Pufferschicht beim Wachstum auf FS-GaN-Substraten führte zusammen mit einer vom Hersteller verbesserten Substratpolitur zu einer hohen Ausbeute an funktionierenden LEDs mit homogenen elektrooptischen Charakteristiken über die Waferfläche. Die Versetzungsdichte in den LED-Strukturen konnte durch den Einsatz von ULD-Templates bzw. FS-GaN-Substraten von etwa $1 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ auf $8 \cdot 10^7$ bzw. $2 \cdot 10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ gesenkt werden. Allerdings führt die variierende Orientierung der Kristallebenen bezüglich der Waferoberfläche bei FS-GaN-Substraten während der Epitaxie der LED-Strukturen zu über den Wafer deutlich variierenden Wachstumsbedingungen, die sich in einer Variation der Emissionswellenlänge von bis zu 15 nm äußern, während es auf ULD-Templates und Saphir nur 7 bzw. 2 nm sind.

6. Effizienz von Leuchtdioden

Der Leistungswirkungsgrad η_{WPE} einer Leuchtdiode ist neben dem Preis der für den Erfolg in der Allgemeinbeleuchtung entscheidende Parameter einer LED. Er beschreibt das Ergebnis von verschiedenen einzelnen Effizienzen und kann aus direkten Messwerten bestimmt werden. Da zur Verbesserung des Wirkungsgrades das Verständnis der einzelnen Effizienzen nötig ist, werden sie in diesem Kapitel eingehend behandelt.

6.1. Externe Quanteneffizienz

Die Grundvoraussetzung für einen hohen Leistungswirkungsgrad η_{WPE} ist immer eine hohe interne Quanteneffizienz η_{IQE}, die durch die Kristallqualität und Struktur des aktiven Bereichs bestimmt ist. Sie ist damit der zentrale Parameter, der durch die Epitaxie kontrolliert wird, kann aber nicht direkt gemessen werden. Zuverlässig direkt messbar sind nur die EL-Leistung sowie die Spannung und die Stromstärke am Bauteil. Mit diesen Messwerten kann die externe Quanteneffizienz η_{EQE} und der Wirkungsgrad η_{WPE} bestimmt werden. Die externe Quanteneffizienz η_{EQE} ist für uns dabei der bessere Parameter zur Beschreibung der Effizienz der LED-Struktur, da durch die Schnelltestmessung entstehende Spannungsverluste in η_{EQE} vernachlässigt werden und Stromverluste durch Leckströme bei LED-Betriebsströmen um 40 mA klein sind. Wie schon in Abschnitt 3.3.1 beschrieben, setzt sich die externe Quanteneffizienz wie folgt zusammen:

$$\eta_{EQE} = \frac{\Phi_{\mathrm{phot}} q}{I_{\mathrm{d}}} = \eta_{\mathrm{ex}} \times \eta_{\mathrm{IQE}} \times \eta_{\mathrm{inj}} \tag{6.1}$$

Im Rahmen dieser Arbeit wird noch die *strahlende Ausbeute* η_{RE} (engl.: „radiative efficiency“, RE) als

$$\eta_{\mathrm{RE}} = \eta_{\mathrm{IQE}} \times \eta_{\mathrm{inj}} \tag{6.2}$$

definiert. Sie beschreibt das Produkt aus *interner Quanteneffizienz* η_{IQE} und *Injektionseffizienz* η_{inj}, da beide im Elektrolumineszenz-Betrieb kaum experimentell getrennt bestimmt werden können.

6.2. Optische Extraktionseffizienz

Beim Vergleich von LED-Strukturen auf unterschiedlichen Substraten variiert nicht nur die Versetzungsdichte in den epitaktischen Schichten, sondern auch die

$$\alpha_c = \arcsin\left(\frac{n_2}{n_1}\right)$$

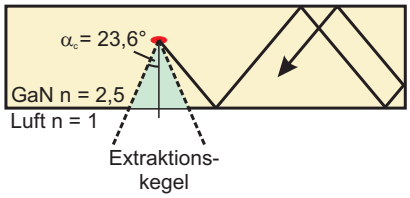


Abbildung 6.1: *Snellius'sches Brechungsgesetz und schematische Zeichnung der Lichtextraktion aus einem GaN-Substrat.*

Extraktionseffizienz η_{ex}. Durch die rückseitige Lichtauskopplung muss sowohl der Brechungsindex n des Substrats als auch die Struktur der Rückseite beachtet werden. Beim Übergang einer elektromagnetischen Welle von einem optisch dichteren (n_1) zu einem optisch dünneren Medium (n_2) tritt nach dem *Snellius'schen Brechungsgesetz* an der Grenzfläche Totalreflexion auf, wenn der Winkel α zwischen Flächennormalen und einfallendem Strahl größer ist als der kritische Winkel α_c:
Das innerhalb α_c einfallende Licht wird ausgekoppelt, der Rest über Totalreflexion im Medium geführt und letztendlich durch Absorption ausgelöscht.

Vereinfachte Betrachtung

Unter der Annahme, dass der Transmissionskoeffizient T für alle α gleich ist, kann die Auskopplung für eine isotrop strahlende Lichtquelle vor einer ebenen Grenzfläche mit einem Extraktionskegel beschrieben werden, siehe Abb. 6.1. Der Anteil des pro Kegels extrahierten Lichts η_{keg} beträgt dann [129]:

$$\eta_{keg} = \frac{1 - \sqrt{1 - (n_2/n_1)^2}}{2} \times \frac{4 n_1 n_2}{(n_1 + n_2)^2}$$

Für die in unseren LED-Strukturen vorkommenden Grenzflächen bedeutet dies folgende Werte:

Grenzfläche Medium 1/Medium 2	**Brechungsindizes** n_1/n_2	**kritischer Winkel** α_c	**Extr. pro Kegel** η_{keg}
GaN / Luft	2,5 / 1	23,6°	3,4%
GaN / Saphir	2,5 / 1,8	46,1°	14,9%
Saphir / Luft	1,8 / 1	33,7°	7,7%

Tabelle 6.1: *Kritische Winkel und Intensität einer isotropen Lichtemission beim Durchgang durch Grenzflächen einer LED-Struktur.*

Durch die Grenzfläche GaN/Saphir würde also der 4,5-fache Lichtfluss im Vergleich zu GaN/Luft aus der Schicht transmittiert werden. Davon werden aus dem für Wellenlängen um 400 nm transparenten Saphir (bei angenommen wieder isotro-

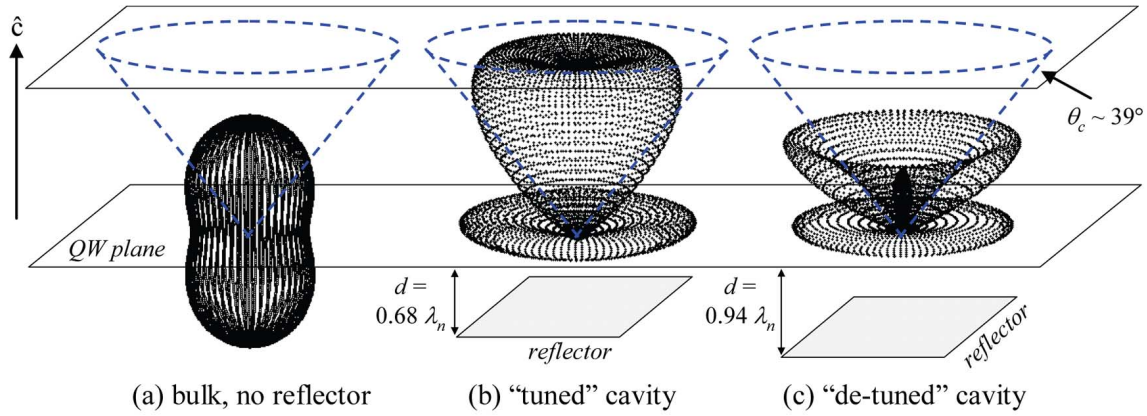


Abbildung 6.2: *Berechnete Lichtverteilungen in verschiedenen LED-Geometrien [130]. Der kritische Winkel ist für den Übergang GaN/Silikonverguss dargestellt.*

per Lichtverteilung) 15,4%[1] durch die Grenzfläche Saphir/Luft ausgekoppelt, also $\eta_{\text{keg}}(\text{GaN/Saphir}) = 0,149 \cdot 0,154 = 2,3\%$. Die verbleibende Lichtmenge wird im Saphir und der GaN-Schicht lateral geführt, über die Ränder ausgekoppelt oder in der LED-Struktur absorbiert. Bezieht man in dieser einfachen Betrachtung einen reflektiven Kontakt mit Reflektivität R mit ein, so erhöht sich η_{ex} um einen Faktor $(1 + R)$. Für eine LED auf Saphir mit reflektivem Kontakt mit $R = 70\%$ ergibt sich also η_{ex} zu $2,3\% \cdot 1,7 \approx 4\%$. Bei rückseitig aufgerautem Saphir ist $\eta_{\text{keg}}(\text{Saphir/Luft}) > 7{,}7\%$, und sollte so η_{ex} noch steigern.
Entgegen diesen Ergebnissen, zeigen experimentelle Daten keine Erhöhung der gemessenen EL-Leistung beim Vergleich von LED-Strukturen auf DSP Saphir mit rückseitig geläpptem Saphir. Die EL-Leistung auf rauem Saphir war 4,6 mW bei 403 nm, während sie auf glattem Saphir 5,1 mW bei 397 nm betrug.

Realistische Betrachtung

Die Unterschiede zwischen Experiment und vereinfachter Berechnung lassen sich auf die Annahme der isotropen Lichtverteilung zurückführen. Eine reale Berechnung ist allerdings sehr komplex und erfordert uns unbekannte Größen, wie zum Beispiel die winkelabhängige Reflektivität an der Kontakt/GaN-Grenzfläche. Die Ergebnisse solcher berechneten Lichtverteilungen nach [130] sind in Abb. 6.2 dargestellt.
So ist die Emission eines GaInN-QWs nicht isotrop, sondern die Dipole liegen *in-plane*, was zur einer Emission $\propto 1 + \cos^2 \alpha$ führt [Abb. 6.2(a)]. Zusätzlich wird die Lichtverteilung durch den Einsatz reflektiver Kontakte abgeändert. Neben der Reflektivität R des p-Kontakts hat dabei, wie schon in Abschnitt 4.5 beschrieben und in Abb. 6.2(b,c) dargestellt, der Abstand des p-Kontakts zum aktiven Bereich einen sehr großen Einfluss auf die Extraktionseffizienz. Durch Interferenz entstehen im GaN Emissionsmaxima und -minima, die abhängig vom Abstand des p-Kontakts noch innerhalb oder schon außerhalb des kritischen Winkels α_c liegen können. α_c ist mit 23,6° für die

[1] Der Anteil eines Kegels η_{keg} beträgt 7,7% auf eine isotrope Lichtverteilung im gesamten Raum bezogen, hier darf jedoch nur der untere Halbraum als Referenz genommen werden, so dass sich η_{keg} verdoppelt.

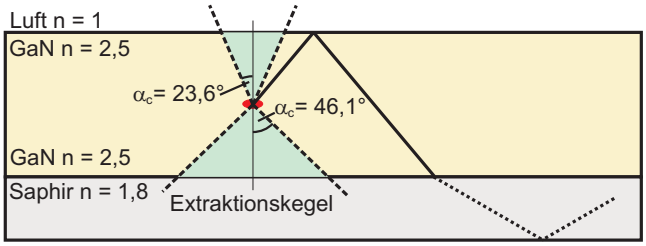


Abbildung 6.3: *Schematische Darstellung der Lichtextraktion bei GaN/Saphir-LEDs.*

GaN/Luft Grenzfläche deutlich kleiner als für GaN/Saphir mit 46,1° und Saphir/Luft mit 33,7°. Da die Extraktionsmaxima auch bei optimiertem p-Kontaktabstand immer noch einen Kegelwinkel in diesem Bereich beschreiben, ist davon auszugehen, dass die GaN/Saphir-Extraktionseffizienz höher ist, als die des DSP-FS-GaN-Substrat, siehe Abb. 6.3.
Eine ähnliche Argumentation gilt auch für den Vergleich der LED-Strukturen auf poliertem mit rauem Saphir: wenn ein Großteil der Lichtemission innerhalb α_c emittiert wird, dann führt die raue Rückseite mit diffuser Reflexion zu einem Verlust durch Ablenkung eines Teils der Strahlen in Richtung überkritischer Winkel $\alpha > \alpha_c$.
Durch die schwer zu bestimmende Extraktionseffizienz η_{ex} ist es also nicht möglich, rein aus dem Vergleich der EL-Leistungen von LED-Strukturen auf verschiedenen Substraten auf Unterschiede in der internen Quanteneffizienz η_{IQE} zu schließen.

6.2.1. Optische Extraktionseffizienz beim Einsatz von FS-GaN-Substraten

Aufrauung der N-face GaN Rückseite

Im Gegensatz zu GaN-auf-Saphir gibt es bei FS-GaN-Substraten die Möglichkeit durch Strukturieren der Rückseite einen direkten Einfluss auf η_{ex} zu nehmen, da die entscheidende Grenzfläche GaN/Luft hier frei liegt. Bei einer glatten GaN-Oberfläche werden *Lichtstrahlen* für Winkel $> 23{,}6°$ totalreflektiert und das Licht in der GaN-Schicht weitergeführt [Abb. 6.4(a)]. Durch eine raue Oberfläche wird der ankommende *Lichtstrahl* diffus gestreut, wodurch der Verlust durch Lichtführung und Absorption (im GaN-Kristall, Grenzfläche, Metallkontakt) deutlich minimiert und mehr Licht ausgekoppelt wird [Abb. 6.4(b)].
Obwohl GaN chemisch sehr stabil ist, kann es nasschemisch geätzt werden. Dabei ist es aber bisher nicht möglich, einen homogenen isotropen Schichtabtrag zu erhalten, so dass die Morphologie der Oberfläche nach dem nasschemischen Ätzen abhängig von der Kristallausrichtung der Oberfläche ist. Durch einfaches Ätzen in Kali- (KOH) oder Natronlauge (NaOH) ist es ist so möglich, bei GaN-Kristallen z. B. die Polarität der Oberfläche in *c*-Richtung (Ga-face oder N-face) zu unterscheiden [18]. Auf der Ga-face Seite des Kristalls können durch Ätzen in diesen Laugen oder heißer Phosphorsäure (H_3PO_4) einzelne Versetzungen durch Ätzgruben sichtbar gemacht werden [79]. Weyher *et al.* [131] zeigten, dass der Ätzmechanismus an N-face Kristallflächen

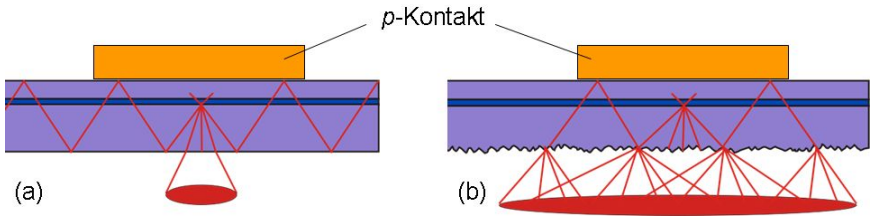


Abbildung 6.4: *Schematische Darstellung der Lichtführung in einer LED-Struktur auf GaN-Substrat mit glatter und rauer Rückseite.*

ein anderer ist und dass sich statt dem Auftreten einzelner Ätzgruben kegelförmige Strukturen ausbilden. Sowohl Ng *et al.* [132] als auch Gao *et al.* [133] untersuchten den Ätzmechanismus an N-face Flächen genauer und fanden hexagonale Pyramiden, deren Seitenflächen aus $\{10\bar{1}\bar{1}\}$ Ebenen bestehen. Die Dichte der Pyramiden sinkt mit steigender Temperatur, Konzentration der Ätzlösung und Ätzdauer, was aus dem Zusammenschließen von mehreren kleinen zu wenigen großen Pyramiden resultiert [132]. Dabei vergrößert sich die Grundfläche und Höhe der Pyramiden.
Da die Rückseite der FS-GaN-Substrate eine N-face-Oberfläche ist, eignen sich diese Ätzverfahren sehr gut zur Aufrauung dieser Rückseite und ermöglichen so die Erhöhung der Auskoppeleffizienz. Um den Einfluss der Rückseitenstruktur von GaN-Substraten auf die Extraktionseffizienz η_{ex} zu untersuchen, wurden mit einer Pipette einzelne Tropfen einer wässrigen 1 molaren KOH-Lösung bei Raumtemperatur auf die polierte N-face-Rückseite von Probe 4, die in Abschnitt 5.3 beschrieben wurde, gegeben. Die Tropfen wurden zu unterschiedlichen Zeiten aufgebracht und zusammen in einem Wasserbad abgespült. Auf eine ganzflächige Ätzung musste verzichtet werden, weil für die auf der Vorderseite deponierten Kontakte keine Passivierung gegenüber der Ätzlösung gefunden wurde.
Die lokale Ätzung führte zur Aufrauung der Rückseite, wie in Abb. 6.5(a) anhand der matten Stellen zu sehen ist, und ermöglichte den direkten Vergleich der ausgekoppelten EL-Leistung vor und nach der Ätzung. In Abb. 6.5(b) ist die relative Erhöhung der EL-Leistung dargestellt, wobei die Ätzdauer zu den einzelnen Dioden über die kreisförmige Markierungen zugeordnet werden kann. Mit steigender Ätzdauer nimmt die EL-Leistung zu, so dass nach 67 min eine Erhöhung von η_{ex} um den Faktor 1,9 gemessen werden kann.
Ein Vergleich der Rückseitenmorphologie von 67 min lang angeätzter Rückseite mit der ungeätzten wird in Abb. 6.5(c) durch Raster-Elektronen-Mikroskop(REM)-Aufnahmen bei 15000-facher Vergrößerung dargestellt. Im geätzten Bereich sind spitze hexagonale Pyramiden zu erkennen, die eng zusammenstehen und oft verbunden sind. Dazwischen sind Bereiche mit glatter N-face Fläche zu erkennen. Im ungeätzten Bereich dagegen ist die unstrukturierte N-face Fläche zu sehen, die auf Nanometerskala rau wirkt.
Eine quantitative Abschätzung dieser Extraktionseffizienz-Erhöhung zur Bestimmung der optimalen Pyramidengröße ist schwierig. Deshalb wurde der experimentelle Weg über längere Ätzdauern gewählt, um die maximal erreichbare Leistungserhöhung zu bestimmen, und daraus auf eine optimale Pyramidengröße schließen zu können. In Abb. 6.6 sind die Ergebnisse dieses Versuchs zusammengefasst.

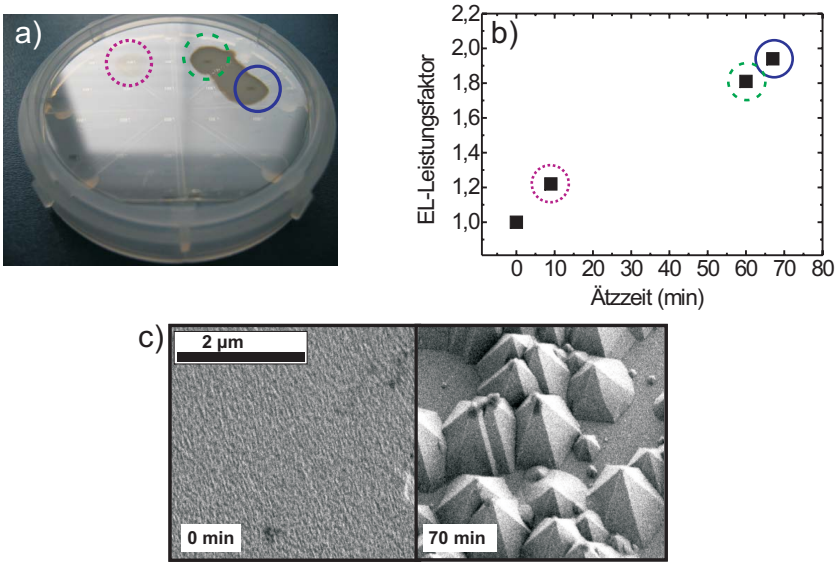


Abbildung 6.5: *(a) Fotografie der Rückseite eines lokal angeätzten FS-GaN Wafers, (b) Erhöhung der Lichtleistung über der Ätzdauer und (c) REM-Aufnahmen von ungeätzter und geätzter Rückseite bei 15000-facher Vergrößerung unter einem Winkel von 29°.*

Bei langen Ätzdauern von länger als zwei Stunden ist der Ansatz über Tropfen ungeeignet, da die Ätzlösung eintrocknet. Gleichzeitig wird die Oberfläche durch die mikro- und nanoskopische Strukturierung die Oberfläche hydrophil und nachgeträufelte Tropfen der Ätzlösung verlaufen sofort. Deshalb ist es nicht möglich eine genaue Ätzdauer für die Rückseiten der einzelnen Dioden anzugeben, die Gesamtätzdauer lag jedoch bei 180 min und konnte nicht mehr verlängert werden, da sonst die Vorderseite mit der Ätzlösung in Kontakt gekommen wäre.
In Abb. 6.6(b) ist die Erhöhung der EL-Leistung, und damit von η_{ex}, aller Dioden angegeben, mit einer maximalen Steigerung um einen Faktor 2,2. Der EL-Leistungsunterschied zwischen Probe 6 (einseitig poliertes Substrat) und Probe 4 lag jedoch bei einem Faktor ≈ 4, siehe Abb. 5.7. Ein möglicher Grund für diese Diskrepanz ist die immer noch unterschiedlich strukturierte Rückseite. Wie in Abb. 6.6(c) und (d) dargestellt ist, sind die Pyramiden auf der Rückseite der Probe 6 etwa einen Faktor 2 - 3 größer als bei der Diode mit maximaler Leistungssteigerung auf Probe 4 und können damit eine nochmalige Steigerung von η_{ex} bewirken.
Da die Passivierung der Vorderseite nicht zufriedenstellend erzielt werden konnte und die Anzahl der FS-GaN Substrate begrenzt war, blieb eine weitere Untersuchung der Steigerung von η_{ex} durch Ätzen der N-face Rückseite aus. Als mögliche Fortführung wird die Verwendung einer Säure-basierten Ätzlösung, wie z. B. H_3PO_4, vorgeschlagen, bei der die Passivierung der Vorderseite mit SiO_2 möglich sein sollte.

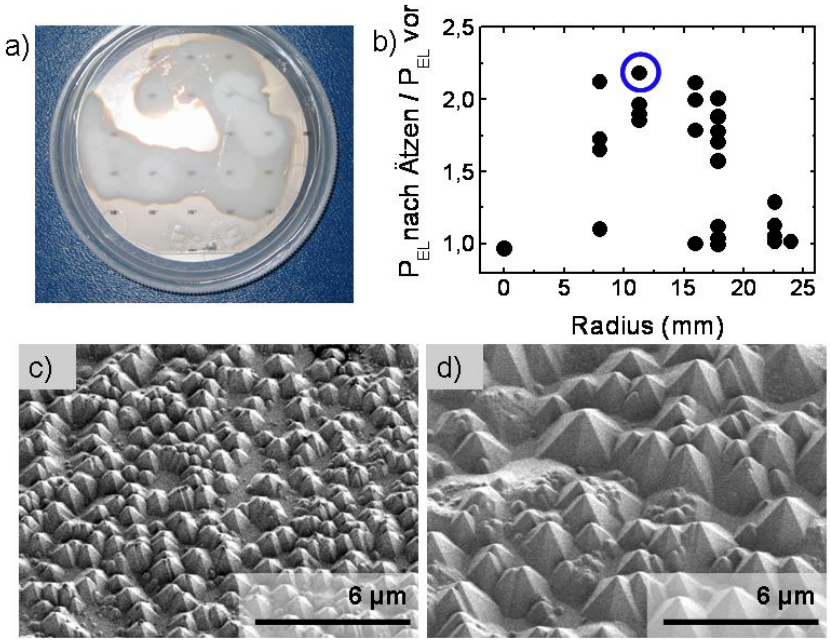


Abbildung 6.6: *(a) Fotografie der Rückseite eines lokal angeätzten FS-GaN Wafers, (b) Erhöhung der Lichtleistung einzelner Dioden über dem Waferradius und REM-Aufnahmen von geätzter Waferrückseite bei 5000-facher Vergrößerung unter einem Winkel von 29° für (c) Probe 4 mit EL-Leistungsfaktor 2,2 und (d) Probe 6.*

6.2.2. Lithographischer Mesa-LED-Prozess

Anstatt des Schnelltests ist auch ein lithographischer Vollprozess für die Wafer-Vorderseite verfügbar. Das Prinzip der Lichtextraktion ist dabei unverändert, es werden also in beiden Fällen reflektive Kontakte mit rückseitiger Lichtauskopplung verwendet. Die Hauptunterschiede zum Schnelltest bestehen von elektrooptischer Seite in anderen Kontaktmaterialien, der Mesa-Ätzung und dem viel kürzeren Abstand des n-Kontakts zum p-Kontakt, von prozesstechnischer Seite bedeutet er jedoch sehr viel mehr Aufwand.
Als p-Kontaktmetall wird Ni/Au in den Dicken 6 nm/300 nm verwendet, das eine reduzierte Reflektivität von 36% bei 400 nm gegenüber dem Pt-Schnelltest mit 48% aufweist. Durch Temperung bei 580°C für 8 min unter N_2 und 2 min unter N_2O wird der Kontakt ohmsch mit einem spezifischen Kontaktwiderstand ρ_C von etwa $2 \cdot 10^{-2}\,\Omega\mathrm{cm}^2$. Die Mesa-Ätzung (Tiefe 200 - 300 nm) dient zum Entfernen der p-GaN-Schicht und Freilegen der n-GaN-Fläche, damit der n-Kontakt aus Ti/Al/Ni/Au (15/220/40/100 nm mit $\rho_C \approx 2 \cdot 10^{-6}\,\Omega\mathrm{cm}^2$ nach 10 min bei $T \geq 700°\mathrm{C}$) angebracht werden kann. Sie verhindert Leckströme in der p-GaN-Schicht und begrenzt die vom Strom durchflossene LED-Fläche. Zusammen ermöglicht dies die Messung bei kleinen Strömen und die Bestimmung einer definierten Stromdichte. Der dritte Vorteil des lithographischen Prozesses ist der geringe und definierte p-n-Kontakt-Abstand, der die Vorwärtsspannung im Vergleich zur Schnelltestmessung, durch den Wegfall des seriellen Widerstands auf der n-Seite (n-Kontaktabstand 5 - 50 mm), reduziert.
Darüber hinaus bieten lithografisch prozessierte LED-Chips die Möglichkeit zum Flip-

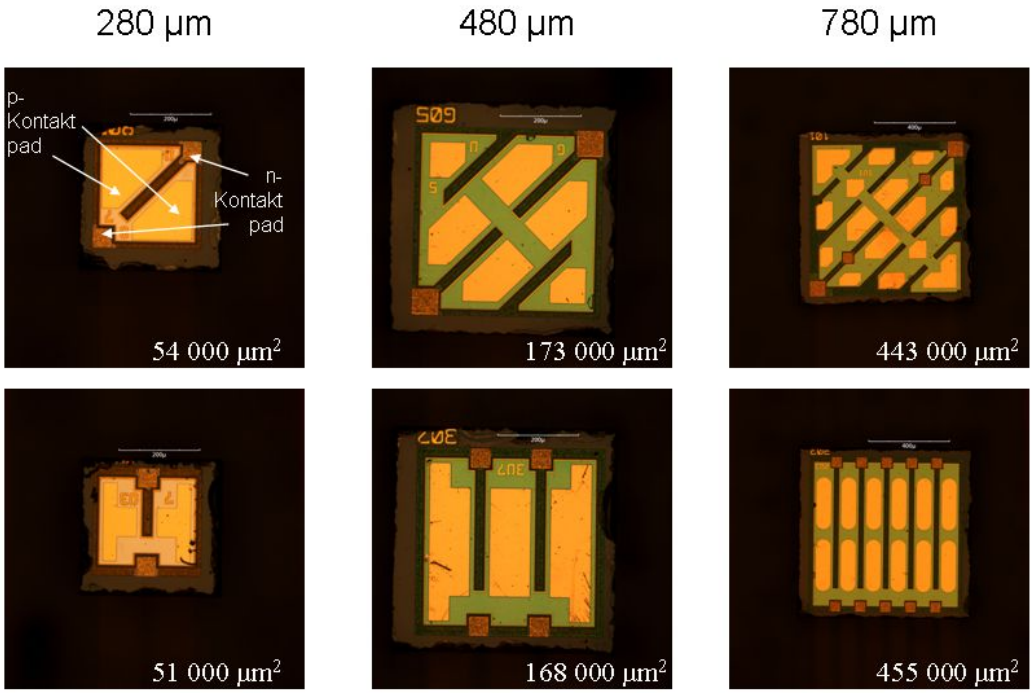
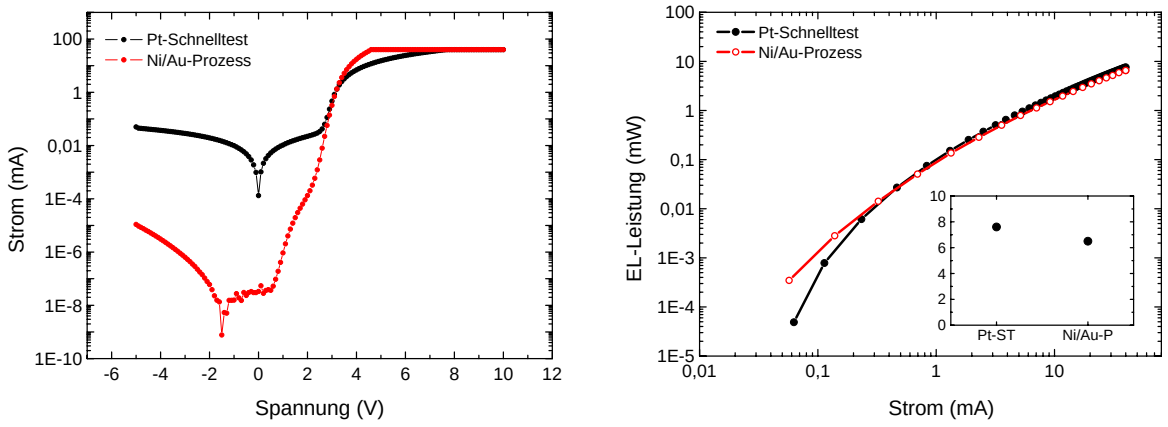


Abbildung 6.7: *Lichtmikroskop-Aufnahmen von LEDs nach lithographischer Prozessierung. Gezeigt sind diagonale und vertikale Bauformen in drei verschiedenen Größen in verbundener Ausführung.*

Chip-Aufbau. Der Flip-Chip-Aufbau (auch „epi-side-down“ genannt) bezeichnet bei GaN-LEDs das Auflöten der LEDs mit der Epitaxieschicht, genauer mit dem schon aufgebrachten reflektiven p-Kontakt, nach unten. Dies ermöglicht durch den geringen Abstand des aktiven Bereichs zum metallischen Lot eine effiziente Entwärmung des Chips.
Abbildung 6.7 zeigt die auf dem Maskensatz „UVLED-01“ verfügbaren Bauteilformen, bei denen die einzelnen p-Kontakt-Segmente elektrisch leitend verbunden sind. Die kleinste Kontaktgröße mit 280 μm Kantenlänge ist in der Fläche mit den Schnelltest-Kontakten vergleichbar, die größeren Bauformen eignen sich zum Aufbau von großflächigen Power-LEDs.
Die geringere Reflektivität des NiAu-p-Kontakts führt zu einer niedrigeren EL-Leistung für prozessierte LEDs gegenüber deren EL-Leistungen im Pt-Schnelltest.
Abbildung 6.8(a) vergleicht $I(U)$-Kennlinien von gleichen LED-Strukturen auf Saphir mit Pt-Schnelltestkontakten und nach lithographischem Vollprozess. Unter Rückwärtsspannung und unter niedrigen Vorwärtsspannungen $< 2{,}5\,\mathrm{V}$ führt das Prozessieren der LEDs zu einer Reduktion von Leckströmen um 2- 5 Größenordnungen, was auf die Mesa-Ätzung und die direkte Kontaktierung der n-Seite zurückzuführen ist. Die sichtbare Verschiebung des Nulldurchgangs (Minimum in der halblogarithmischen Darstellung) der $I(U)$-Kennlinie zu -1,8 V für die Mesa-geätzte Probe ist vermutlich auf Defektzustände im aktiven Bereich zurückzuführen, an denen Ladungsträger eingefangen werden können, sogenannte *Traps*. Bei diesem Einfang entstehen relativ langsam abklingende Lade- und Entladeströme, die sich durch die automatisierte



(a) (b)

Abbildung 6.8: *(a) $I(U)$- und (b) $P(I)$-Kennlinien von TQW-LED-Strukturen auf Saphir im Pt-Schnelltest und nach der lithographischen Prozessierung. Im Inset von (b) werden die EL-Leistungen bei 40 mA verglichen.*

Messung der $I(U)$-Kennlinie (mit relativ kurzem Zeitabstand zwischen Spannungsänderung und Strommessung) als Leckströme mit verschobenem Nulldurchgang äussern.
Bei Vorwärtsspannungen $> 3{,}2\,\mathrm{V}$ wird der geringere serielle Widerstand der Mesa-LEDs deutlich, indem die Strombegrenzung von 40 mA schon bei 4,5 statt 7,5 Volt erreicht wird.
Der Einfluss der Prozessierung auf die EL-Charakteristik wird in Abb. 6.8(b) verglichen. Während die Reduktion der Leckströme bei geringen Injektionsströmen $< 0{,}1\,\mathrm{mA}$ zu einer deutlichen Steigerung der EL-Leistung P_{EL} um fast einen Faktor 10 für die prozessierte LED führt, wird die EL-Leistung bei Strömen $> 1\,\mathrm{mA}$ durch die geringere Reflektivität des NiAu-p-Kontakts um ca. 20% reduziert.

6.2.3. Industrieller Dünnfilm-Flip-Chip-LED-Prozess

Es war im Rahmen des BMBF-geförderten Projekts Nanolux möglich, 3 Saphirwafer mit am IAF gewachsenen LED-Strukturen bei dem Projektpartner OSRAM OS GmbH mit einem aktuellen OSRAM ThinGaN®-Prozess prozessieren zu lassen. Dieser State-of-the-art Chip-Prozess führt zu einer Extraktionseffizienz η_{ex} um 70% [134] und ermöglicht über den Vergleich der EL-Leistungen eine Abschätzung der Extraktionseffizienz η_{ex} unserer Schnelltest- und Vollprozesse.
Wichtige Merkmale des ThinGaN®-Prozesses sind neben der Verwendung von hochreflektiven Ag-basierten Kontakten die Flip-Chip-Montage, der Laser-Lift-off-(LLO)-Prozess und die Aufrauung der dadurch exponierten N-face n-GaN-Oberfläche. Abbildung 6.9 zeigt schematisch den Aufbau eines ThinGaN®-Chips.
Die Flip-Chip-Montage ermöglicht eine effiziente Entwärmung des Chips und sorgt somit für die Skalierbarkeit zu größeren Chipflächen. Mit Hilfe des LLO-Prozesses wird das Saphir-Substrat von der epitaktischen GaN-Schicht abgelöst. Dabei wird

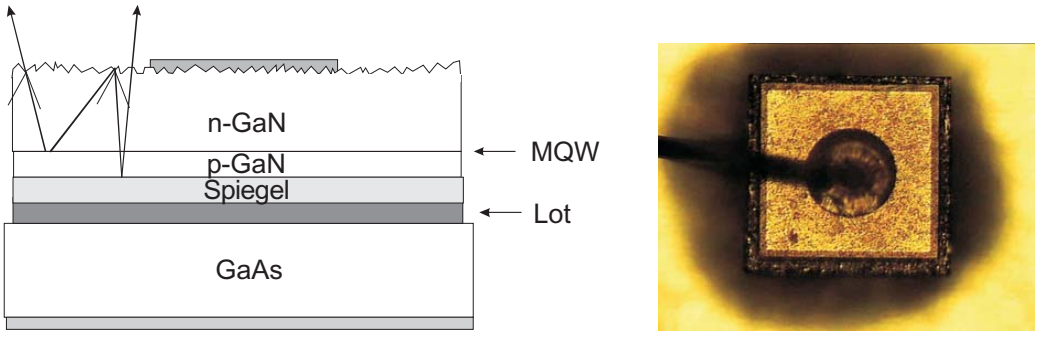


Abbildung 6.9: *(a) Schematischer Aufbau einer mit dem ThinGaN®-Prozess hergestellten LED und (b) Lichtmikroskop-Aufnahme auf die prozessierte N-face n-GaN-Oberfläche, nach [134].*

die Zersetzung des GaN an der Grenzfläche zum Saphir erreicht, indem es mit einem energiereichen Laserimpuls rückseitig durch das Saphirsubstrat bestrahlt wird. Die Emissionswellenlänge des Lasers (Excimer oder frequenzverdreifachter Nd:YAG) wird dabei so gewählt, dass sie energetisch über der Bandlücke von GaN und unter der von Saphir liegt. Die absorbierte Strahlungsleistung führt zur thermischen Zersetzung des GaN und der Ablösung des Saphirwafers. Damit ist die N-face-Oberfläche des n-GaN freigelegt, die über chemische oder photoelektrochemische Verfahren stark anisotrop angeätzt und damit aufgeraut werden kann, siehe Abschnitt 6.2.1.
Die Kontaktierung der n-Seite wird über ein mittig positioniertes rundes Lötpad erzielt, wobei die Dicke (bei unseren Strukturen ca. 4,5 μm Restdicke nach dem LLO und Ätzschritt) der n-GaN-Schicht für die Stromaufweitung bei Stromdichten um 50 Acm^{-2} für die $300 \times 300\,\mu\mathrm{m}^2$ großen Chips ausreichend ist, und die raue n-GaN-Oberfläche somit nicht mit einem transparenten Kontakt bedeckt werden muss.
Abschließend wurden die LED-Chips in 5-mm-Standard-Radial-Gehäusen vergossen und vermessen.
Es handelt sich um TQW-LED-Strukturen mit einer 180 nm dicken p-GaN-Kontaktschicht und einem 5 μm dicken Si-dotierten Puffer. Die Dotierung und Verbreiterung des Puffers war nötig, um zum einen eine vertikale Kontaktierbarkeit zu gewährleisten und zum anderen um genügend Schichtdickenreserve für den LLO-Prozess und die Ätzung zur Schicht-Aufrauung bereitzustellen.
Abbildung 6.10(a) vergleicht die Kennlinien einer ThinGaN®-LED mit einer Messung an Pt-Schnelltestkontakten eines identisch gewachsenen Wafers. Zusätzlich ist die $I(U)$-Kennlinie der Vollprozess-LED aus Abb. 6.8 dargestellt, die allerdings einen dünneren und undotierten Puffer hat. Der Spannungsunterschied zwischen Pt-Schnelltest- und NiAu-Prozess bei 40 mA ist durch den reduzierten n-Bahnwiderstand im dickeren, dotierten Puffer in diesem Falle geringer. Die $I(U)$-Kennlinie der ThinGaN®-LED zeigt in Vorwärtsrichtung bei kleinen Spannungen leicht reduzierte Leckströme im Vergleich zum NiAu-Prozess, in Rückwartsrichtung jedoch einen Anstieg um etwa eine Größenordnung. Dies ist vermutlich durch den negativen Einfluss der Si-Dotierung auf die Koaleszenz der Pufferschicht und damit auf die Kristallqualität in Verbindung mit der Ätzung zur Aufrauung verursacht. Die Strombegrenzung auf 40 mA ist bei

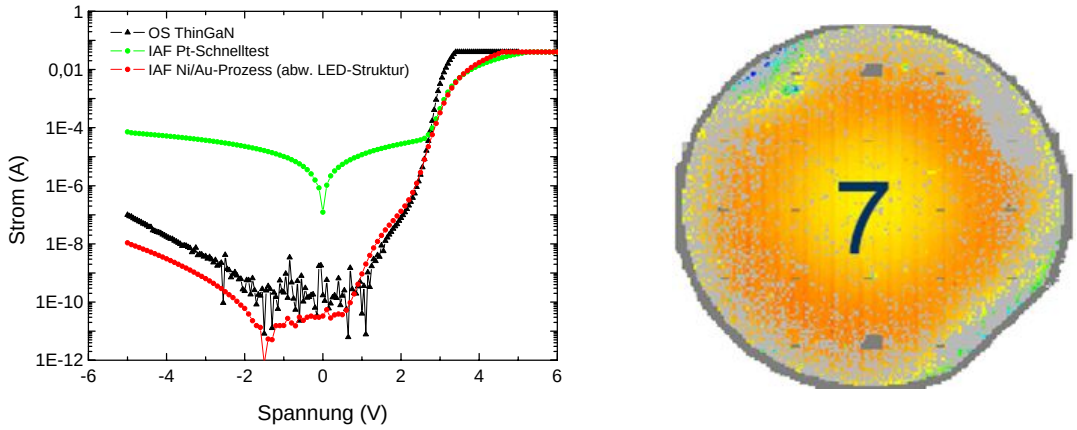
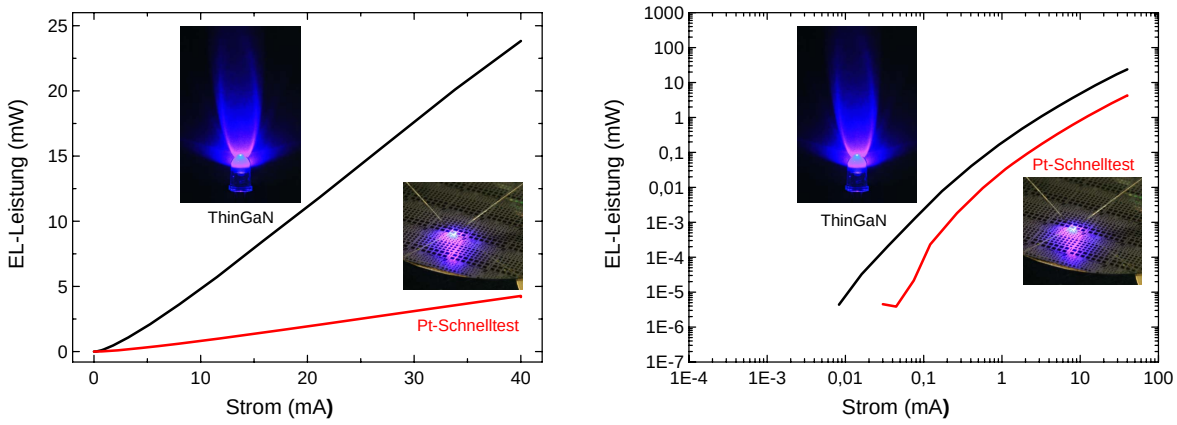


Abbildung 6.10: *(a) I(U)-Kennlinien von LEDs im Pt-Schnelltest, im NiAu-Vollprozess und im ThinGaN®-Prozess, wobei die LED mit NiAu-Kontakt eine* abweichende *LED-Struktur hat. (b) Ausbeute des ThinGaN®-Prozesses dargestellt als Wafermapping.*

3,4 V in Vorwärtsrichtung erreicht und zeigt damit den nochmals reduzierten Bahnwiderstand auf der n-Seite, durch vertikale Kontaktierung und einer Strecke von etwa 4 μm im n-GaN im Vergleich zum lateralen Chip-Design mit einer Strecke $>30\,\mu$m im n-GaN.
Die Ausbeute an funktionierenden Dioden ist in Abb. 6.10(b) dargestellt. Sie ist in Anbetracht der nicht optimierten Pufferbedingungen und der Herstellung in einem nicht zur Massenproduktion gedachten MOVPE-Reaktor als sehr gut zu bezeichnen.
In Abb. 6.11 werden die $P(I)$-Kennlinien von LEDs im Pt-Schnelltest mit ThinGaN®-LEDs verglichen. Die EL-Leistungssteigerung durch die verbesserte Extraktionseffizienz η_{ex} beträgt einen Faktor 5,5 und führt zu einer EL-Leistung für die ThinGaN®-LED von 11 mW bei 20 mA bzw. 24 mW bei 40 mA. In der logarithmischen Darstellung [Abb. 6.11(b)] liegen die Kurven ab Strömen von 0,1 mA in konstantem Abstand, was bestätigt, dass die Leistungsverbesserung rein durch die erhöhte Auskoppeleffizienz η_{ex} verursacht wird.
Für die mit dem ThinGaN®-Prozess hergestellte LED beträgt die externe Quanteneffizienz η_{EQE} 18% bei 20 mA und 20% bei 40 mA, was durch die niedrigen Spannungsverluste zu Leistungswirkungsgraden η_{WPE} von je 17% und 18% führt. Da die Extraktionseffizienz η_{ex} des ThinGaN®-Aufbaus von etwa 70% bekannt ist [134], lässt sich die strahlende Ausbeute η_{RE} der LED bestimmen, was 26% bei 20 mA und 29% bei 40 mA ergibt. Abhängig von der Injektionseffizienz η_{inj} stellt dies eine untere Grenze für die interne Quanteneffizienz η_{IQE} dar, da im Falle einer geringeren Injektionseffizienz $\eta_{\mathrm{inj}} < 1$ die interne Quanteneffizienz höher ist: $\eta_{\mathrm{IQE}} = \eta_{\mathrm{RE}}/\eta_{\mathrm{inj}}$.
Durch den Faktor 5,5 aus dem Leistungsvergleich zwischen Pt-Schnelltest und ThinGaN®-LED lässt sich, unter der Annahme einer durch die verschiedene Prozessierung unveränderten strahlenden Ausbeute η_{RE} und mit Kenntnis der 70% Extraktionseffizienz des ThinGaN®-Aufbaus, die Extraktionseffizienz η_{ex} unseres Pt-Schnelltest zu $70\%/5{,}5 \approx 13\%$ bestimmen. Für den NiAu-Vollprozess ergibt sich η_{ex} zu etwa 11%. Diese Werte gelten jedoch nur für LEDs auf Saphir. Während für LEDs



(a) (b)

Abbildung 6.11: *P(I)-Kennlinien von TQW-LEDs im Pt-Schnelltest (rot) und als ThinGaN®-LED (schwarz), in (a) linearer und (b) logarithmischer Darstellung.*

auf ULD nur ein vernachlässigbarer Unterschied zu erwarten ist, bleibt die Extraktionseffizienz η_{ex} für LEDs auf FS-GaN unbestimmt, so dass aus der EL-Leistung nicht auf die strahlende Ausbeute η_{RE} geschlossen werden kann. Da die Kenntnis der internen Quanteneffizienz oder der strahlenden Ausbeute jedoch wichtig für den Vergleich verschiedener LEDs ist, wird im nächsten Abschnitt auf alternative Bestimmungen der internen Quanteneffizienz eingegangen.

6.3. Bestimmung der internen Quanteneffizienz

Im Vergleich zu den anderen III-V-Verbindungshalbleitern zeigen LEDs mit den Inhaltigen Verbindungen der Gruppe-III-Nitride hohe interne Quanteneffizienzen η_{IQE} trotz der hohen Versetzungsdichten im Bereich von $10^8 - 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$. Der Grund dafür ist eine Ladungsträgerlokalisierung, die verhindert, dass die Elektronen und Löcher die Versetzungen als nichtstrahlende Rekombinationspfade erreichen. Die Ursache der Lokalisierung wird kontrovers diskutiert, jedoch ist fast allen die Idee von Potentialfluktuationen im QW gemeinsam, die in Abb. 6.12 dargestellt werden.

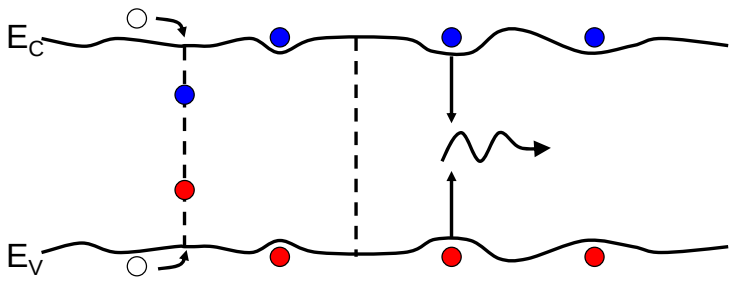


Abbildung 6.12: *Schematische Darstellung der Lokalisierung von Elektronen im Leitungsband und Löchern im Valenzband durch Potentialfluktuationen.*

Durch die Mischungslücke im $Ga_{1-x}In_xN$ und durch TEM-Aufnahmen motiviert galten lange In-Kompositionsfluktuationen als Grund für die Potentialfluktuationen [135, 136]. Es wurde jedoch gezeigt, dass die bei der TEM-Beobachtung eingesetzte hochenergetische Elektronenbestrahlung selbst zu diesen In-Fluktuationen führen kann [137] und dass daher QW-Breitenschwankungen bzw. QW-Diskontinuitäten der Grund für die Lokalisierung sind [138]. Von anderer Seite sehen Hangleiter *et al.* [139] an den $\{1\bar{1}01\}$-Seitenflächen von (an den Versetzungen entstehenden) *V-pits* niedrigere Wachstumsraten, was dort zu kleineren QW-Breiten führt. Durch die dadurch verursachte höhere Quantisierungsenergie werden die Ladungsträger vom Erreichen des Versetzungskerns abgehalten. Viele dieser Modelle basieren auf Effekten, die mit der Nanostruktur (wie QW-Breite, QW-Diskontinuität) verbunden sind, aber auch dicke GaInN-Schichten zeigen hohe Effizienzen. Chichibu *et al.* [24] untersuchten daher über Positronen-Anhilation unterschiedlichste Proben und fanden die Lokalisierung von Löchern (bzw. Positronen in ihrem Experiment) an atomaren Kondensaten von In mit N (In-N-In-Ketten) mit Diffusionslängen $< 4\,\mathrm{nm}$ als zugrundeliegenden Effekt. Unabhängig vom genauen Mechanismus werden zum Nachweis der hohen Lumineszenz-Effizienzen oft (M)QW-Strukturen ohne p-Kontaktschicht verglichen, so dass keine EL-Daten verfügbar sind. Zur Bestimmung der internen Quanteneffizienz η_{IQE} hat sich deshalb die Methode der temperaturabhängigen Photolumineszenz (TA-PL) etabliert.
Bevor auf diese Methode eingegangen wird, ist es jedoch nötig, die interne Quanteneffizienz η_{IQE} und damit die Rekombinationsprozesse im QW genauer zu verstehen.

6.3.1. Ratengleichung der Ladungsträgerrekombination

Im Folgenden wird eine vereinfachte Übersicht über die Rekombination von Ladungsträgern in Halbleitern gegeben; für weitergehende Details sei auf die entsprechende Literatur verwiesen, zum Beispiel [140].
Die Rekombinationsrate ω pro Einheitsvolumen wird im allgemeinen als proportional zu einem Rekombinationskoeffizienten und zur Frequenz ihrer Kollisionen miteinander, die proportional zum Produkt der jeweiligen Dichten ist, betrachtet. Die nichtstrahlende Rekombination über Defekte wird dabei als Einfang eines Elektrons vom Leitungsband in ein Defektzentrum zusammen mit dem Einfang eines Lochs aus dem Valenzband ins gleiche Defektzentrum betrachtet. Die genauen Eigenschaften des Einfangs über Defekte hängen stark von den Probeneigenschaften ab und werden deshalb üblicherweise über die effektiven Lebensdauern $\tau_{\mathrm{n,p}}$ der Elektronen bzw. Löchern zusammengefasst. Für nicht-entartete Halbleiter mit einem Defektniveau auf Höhe des Ferminiveaus in der Mitte der Bandlücke ergibt sich dann eine effektive Shockley-Read-Hall(SRH)-Rekombinationsrate ω_{SRH}:

$$\omega_{\mathrm{SRH}} = \frac{np - n_0 p_0}{\tau_{\mathrm{p}}(n + n_0) + \tau_{\mathrm{n}}(p + p_0)} \tag{6.3}$$

wobei n, p die tatsächlichen Ladungsträgerdichten von Elektronen bzw. Löchern und n_0, p_0 die Ladungsträgerdichten im thermodynamischen Gleichgewicht, also ohne elektrische Injektion, sind.

Für die strahlende Band-zu-Band-Rekombinationsrate ergibt sich:

$$\omega_\mathrm{r} = Bnp \tag{6.4}$$

mit dem Rekombinationskoeffizienten B der bimolekularen strahlenden Rekombination.
Schließlich ergibt sich für einen nichtstrahlenden Auger-Prozess, bei dem die bei der Rekombination frei werdende Energie auf einen dritten Ladungsträger übertragen wird zu:

$$\omega'_\mathrm{A} = C_{ehh}\, np^2 \qquad \text{oder} \qquad \omega''_\mathrm{A} = C_{eeh}\, n^2 p \tag{6.5}$$

mit den Auger-Koeffizienten C_{eeh} und C_{ehh}.
Bei der Elektrolumineszenz überwiegt die Ungleichgewichts-Ladungsträgerdichte n, p durch elektrische Injektion die Gleichgewichts-Ladungsträgerdichte n_0, p_0 deutlich und es kann in erster Näherung von $n = p$ ausgegangen werden. Als weitere Vereinfachungen werden die Ladungsträger-Lebensdauern von Elektronen und Löchern zu $\tau \equiv \tau_\mathrm{p} = \tau_\mathrm{n}$ gleichgesetzt und der SRH-Rekombinatioskoeffizient als $A \equiv 1/\tau$ definiert. Zusammen mit dem Auger-Koeffizienten $C = C_{ehh} + C_{eeh}$ ergibt sich für die gesamte Rekombinationsrate ω dann der vereinfachte Ausdruck:

$$\omega = An + Bn^2 + Cn^3 \tag{6.6}$$

Die nichtstrahlende Rekombinationsrate ist dabei $\omega_\mathrm{nr} = An + Cn^3$. Anzumerken ist hier, dass neben dem Auger-Prozess auch andere Prozesse über eine Proportionalität zu n^3 beschrieben werden können, siehe auch Abschnitt 7.2.2.
Die gesamte Rekombinationsrate ω hängt wiederum mit dem injizierten Strom I über folgende Kontinuitätsgleichung zusammen:

$$\frac{\eta_\mathrm{inj} I}{qV} = \omega = An + Bn^2 + Cn^3 \tag{6.7}$$

wobei η_inj die Injektionseffizienz, q die Elementarladung und V das Rekombinationsvolumen sind.
Die interne Quanteneffizienz η_IQE beschreibt das Verhältnis von strahlender Rekombinationsrate ω_r zu gesamter Rekombinationsrate $\omega = \omega_\mathrm{r} + \omega_\mathrm{nr}$ im Quantenfilm:

$$\eta_\mathrm{IQE} = \frac{\omega_\mathrm{r}}{\omega_\mathrm{r} + \omega_\mathrm{nr}} = \frac{Bn^2}{An + Bn^2 + Cn^3} \tag{6.8}$$

Es ist leicht ersichtlich, dass die interne Quanteneffizienz η_IQE damit zwar von den Koeffizienten A, B und C, aber vor allem von der Ladungsträgerdichte n abhängt. Das bedeutet aber auch, dass die interne Quanteneffizienz η_IQE abhängig vom injizierten Strom ist, und die Angabe von η_IQE daher immer mit der Angabe einer Stromdichte verbunden sein sollte.
Da geringe Stromdichten zu niedrigen Ladungsträgerdichten n führen, kann für kleine Ströme I die Auger-Rekombination Cn^3 vernachlässigt werden und die nichtstrahlende Rekombination über Defekte bestimmt die interne Quanteneffizienz η_IQE:

$$\eta_\mathrm{IQE} = \frac{Bn^2}{An + Bn^2} \tag{6.9}$$

Dies stellt eine charakteristische Funktion für den Verlauf von η_{IQE} dar und ermöglicht anhand des Vergleichs mit der experimentell gemessenen externe Quanteneffizienz η_{EQE} bzw. der $P(I)$-Kennlinie bei kleinen Stromdichten die Bestimmung der internen Quanteneffizienz η_{IQE} [141], wie im Folgenden gezeigt wird.

6.3.2. Analyse der Lichtleistungs-Strom-Kennlinie

Die Ratengleichung 6.7 unter Vernachlässigung des Auger-Terms Cn^3 lautet:

$$\frac{\eta_{\mathrm{inj}} I}{qV} = \omega = An + Bn^2 \tag{6.10}$$

Bei der Messung der EL-Leistung P_{EL} wird ein Wert proportional zur strahlenden Rekombination Bn^2 gemessen:

$$P_{\mathrm{EL}} = kBn^2 \tag{6.11}$$

wobei k eine Konstante ist, die hauptsächlich vom aktiven Volumen V, der Extraktionseffizienz η_{ex} und der Photonenergie E_{phot} abhängt. Durch Einsetzen von Gleichung 6.11 in Gleichung 6.10 erhält man unter der Annahme $\eta_{\mathrm{inj}}(I) = \mathrm{konst}$:

$$\frac{I}{\sqrt{P_{\mathrm{EL}}}} = a + b\sqrt{P_{\mathrm{EL}}} \tag{6.12}$$

mit

$$a = \frac{qVA}{\eta_{\mathrm{inj}}\sqrt{kB}},\ b = \frac{qV}{\eta_{\mathrm{inj}}}\frac{1}{k}$$

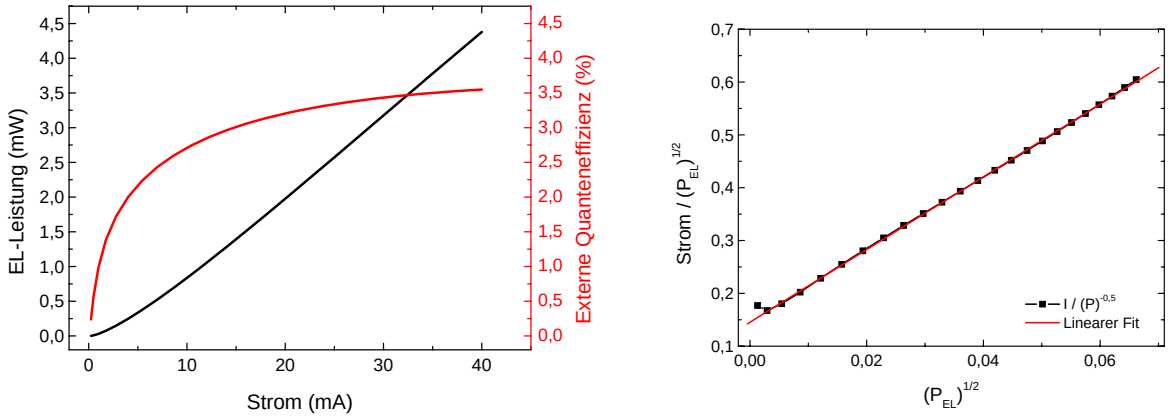
Auf der anderen Seite ergibt sich aus den Gleichungen 6.9 und 6.10:

$$\eta_{\mathrm{IQE}} = \left(1 + \frac{\gamma}{2}\right) - \sqrt{\left(\frac{\gamma}{2}\right)^2 + \gamma} \tag{6.13}$$

mit

$$\gamma = \frac{qVA^2}{\eta_{\mathrm{inj}}BI} = \frac{a^2}{bI}$$

Dies ist nun ebenfalls eine charakteristische Funktion für die interne Quanteneffizienz η_{IQE}, mit der Besonderheit, dass die Parameter bekannt sind (Strom I) oder durch einen Fit bestimmt werden können (a und b), wie im Folgenden gezeigt wird.
Allein die Injektionseffizienz η_{inj} ist nicht genau bestimmt, was zwar durch den Fit von Gleichung 6.12 umgangen wird, trotzdem eine mögliche Fehlerquelle bleibt. Insbesondere im Falle einer möglichen Stromdichteabhängigkeit der Injektionseffizienz fehlt sogar die Grundlage zur Anwendung der vorgestellten Methode insgesamt, da dann der Verlauf der Quanteneffizienz nicht mehr nur vom Zusammenspiel zwischen strahlender und nichtstrahlender Rekombinationsrate abhängt.
Während Ryu *et al.* [141] von einer konstant hohen Injektionseffizienz $\eta_{\mathrm{inj}} > 94\%$ ausgehen, beschreiben Schubert *et al.* [142] die Injektionseffizienz η_{inj} als zusätzlichen



(a) (b)

Abbildung 6.13: *(a) $P(I)$-Kennlinie und externe Quanteneffizienz η_{EQE} einer TQW-LED auf Saphir im Pt-Schnelltest und (b) die Kennlinie zusammen mit linearem Fit als Auftragung von $I/\sqrt{P_{\mathrm{EL}}}$ über $\sqrt{P_{\mathrm{EL}}}$.*

nichtstrahlenden Parameter $f(n)$ mit unbekannter Abhängigkeit von n. Auch in ihrer Betrachtung wird die Injektionseffizienz jedoch erst bei hohen Stromdichten wichtig.

Abbildung 6.13 zeigt die $P(I)$-Kennlinie [Abb. 6.13(a)] und die externe Quanteneffizienz η_{EQE} der LED-Struktur auf Saphir, die identisch zu der mit dem ThinGaN®-Prozess hergestellten LED gewachsen wurde, siehe dazu Abschnitt 6.2.3. Die Auftragung der $P(I)$-Kennlinie nach $I/\sqrt{P_{\mathrm{EL}}}$ über $\sqrt{P_{\mathrm{EL}}}$ [Abb. 6.13(b)] erlaubt im linearen Bereich einen Fit nach Gleichung 6.12:

$$\frac{I}{\sqrt{P_{\mathrm{EL}}}} = a + b\sqrt{P_{\mathrm{EL}}}$$

Durch den Fit erhält man a und b, woraus sich nun $\gamma(I) = a^2/bI$ bestimmen lässt. Nach Gleichung 6.13 ergibt sich damit die interne Quanteneffizienz η_{IQE}, die in Abb. 6.14 dargestellt wird. Bei einem injizierten Strom I von 40 mA beträgt sie demnach etwa 76%.
Zusätzlich ist in Abb 6.14 die gemessene externe Quanteneffizienz η_{EQE} dargestellt. Aus dem Vergleich der Kurvenverläufe von interner Quanteneffizienz η_{IQE} und der gemessenen externen Quanteneffizienz η_{EQE} lässt sich das Produkt $\eta_{\mathrm{ex}}\eta_{\mathrm{inj}} = \eta_{\mathrm{EQE}}/\eta_{\mathrm{IQE}} = 4,7\%$ bestimmen. Unter der Annahme einer Injektionseffizienz $\eta_{\mathrm{inj}} = 1$ ergibt sich die Extraktionseffizienz η_{ex} für diese LED-Struktur zu 4,7%.
Ein Vergleich mit der in Kap. 6.2 sehr grob abgeschätzten Extraktionseffizienz η_{ex} von LEDs auf Saphir zwischen 4% und 8%, ja nach Reflektivität der Kontakte, zeigt, dass die Annahme einer Injektionseffizienz $\eta_{\mathrm{inj}} \approx 1$ wahrscheinlich zu hoch ist. Im Folgenden wird für die Injektionseffizienz η_{inj} deshalb mit Hilfe der Ergebnisse aus dem ThinGaN®-Prozess und dem Vergleich mit dem Pt-Schnelltest ein unterer Grenzwert bestimmt, wie in Tabelle 6.2 zusammengestellt ist.
Aus dem Vergleich mit dem ThinGaN®-Prozess sind die relativ zuverlässigen Wer-

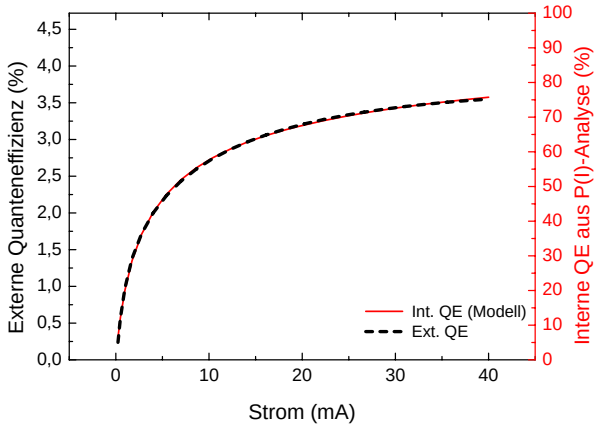


Abbildung 6.14: *Interne Quanteneffizienz η_{IQE} bestimmt aus der Analyse der $P(I)$-Kennlinie im Vergleich mit der gemessenen externen Quanteneffizienz η_{EQE}.*

te von 29% strahlender Ausbeute η_{RE} (was gleichzeitig den Mindestwert der internen Quanteneffizienz η_{IQE} darstellt) und 13% Extraktionseffizienz η_{ex} für unseren Pt-Schnelltest bekannt.

(Mess-)Wert	ThinGaN	Pt-ST	(Mess-)Wert
η_{EQE}	**20**	**3,6**	η_{EQE}
$\eta_{\mathrm{IQE}}[P(I)]$	76	76	$\eta_{\mathrm{IQE}}[P(I)]$
η_{ex}	70	*13*	$\eta_{\mathrm{ex}} = \frac{\eta_{\mathrm{ex}}(\mathrm{ThinGaN})}{5{,}5}$
$\eta_{\mathrm{RE}} = \frac{\eta_{\mathrm{EQE}}}{\eta_{\mathrm{ex}}}$	*29*	$\Longrightarrow$ *29*	$\eta_{\mathrm{RE}}(\mathrm{ThinGaN})$
$\eta_{\mathrm{ex}}\eta_{\mathrm{inj}} = \frac{\eta_{\mathrm{EQE}}}{\eta_{\mathrm{IQE}}}$	*26*	*4,7*	$\eta_{\mathrm{ex}}\eta_{\mathrm{inj}} = \frac{\eta_{\mathrm{EQE}}}{\eta_{\mathrm{IQE}}}$
$\eta_{\mathrm{inj}} = \frac{\eta_{\mathrm{EQE}}}{\eta_{\mathrm{IQE}}\eta_{\mathrm{ex}}}$	*38*	*38*	$\eta_{\mathrm{inj}} = \frac{\eta_{\mathrm{RE}}}{\eta_{\mathrm{IQE}}}$

Tabelle 6.2: *Übersicht über verschiedene Effizienzen (%) bei 40 mA Injektionsstrom für die LEDs im ThinGaN®- und Pt-Schnelltest-Prozess. Direkt gemessene Werte sind fett gedruckt, durch indirekte Verfahren bestimmte Werte normal und Werte, die aus indirekt bestimmten Messgrößen berechnet werden, kursiv. Der Pfeil markiert den Übertrag eines Wertes von einem Prozess zum anderen.*

Die Analyse der $P(I)$-Kennlinie liefert jedoch für beide Proben eine interne Quanteneffizienz η_{IQE} von 76% bei 40 mA, was einer Abweichung zur strahlenden Ausbeute η_{RE} um einem Faktor 2,7 entspricht. Diese Abweichung lässt auf eine Injektionseffizienz $\eta_{\mathrm{inj}} < 1$ schließen, für die hiermit ein unterer Grenzwert von $\eta_{\mathrm{inj}} = \eta_{\mathrm{RE}}/\eta_{\mathrm{IQE}} = 38\%$ bestimmt werden kann.
Da der Wert für die interne Quanteneffizienz η_{IQE} mit 76% bei 40 mA jedoch unrealistisch hoch scheint und die Injektionseffizienz auch die Bestimmung der internen Quanteneffizienz über die $P(I)$-Kennlinie beeinflusst (siehe Gleichung 6.13), wird im

Folgenden auf die Bestimmung der internen Quanteneffizienz über die temperaturabhängige Photolumineszenz eingegangen.

6.3.3. Temperaturabhängige Photolumineszenz

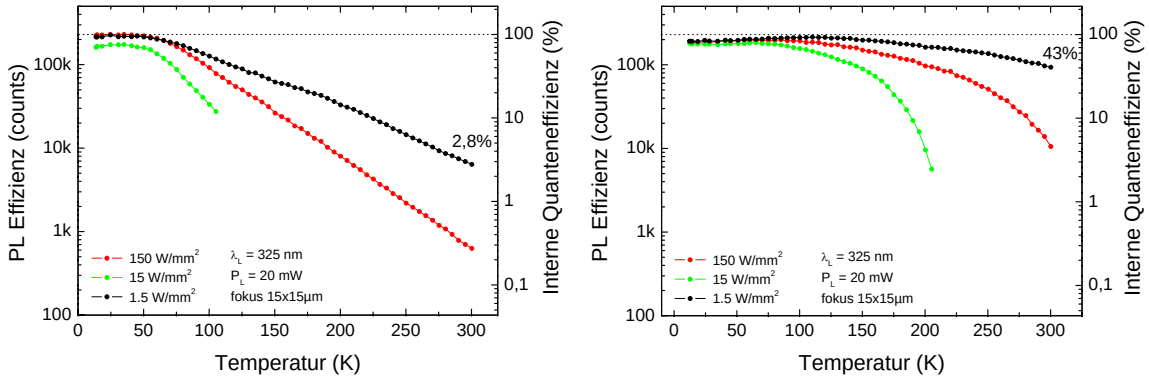
Durch Bezug der PL-Intensität auf die Anregungsleistungsdichte erhält man zunächst die PL-Effizienz η_{PL}. Die Bestimmung der internen Quanteneffizienz η_{IQE} über die Temperaturabhängige-Photolumineszenz(TA-PL)-Methode basiert nun auf dem Vergleich der PL-Effizienz bei Raumtemperatur $\eta_{\mathrm{PL}}(300\,\mathrm{K})$ mit der PL-Effizienz bei tiefen Temperaturen $< 20\,\mathrm{K}$, $\eta_{\mathrm{PL}}(10\,\mathrm{K})$, bei denen ausschließlich strahlende Rekombination, also eine interne Quanteneffizienz von $\eta_{\mathrm{IQE}} = 1$, angenommen wird. Also:

$$\eta_{\mathrm{IQE}} = \frac{\eta_{\mathrm{PL}}(300\mathrm{K})}{\eta_{\mathrm{PL}}(10\mathrm{K})}$$

Dazu sind folgende wichtige Annahmen nötig:

- Die Anzahl der in den QW gelangenden Ladungsträger ist temperaturunabhängig.
- Die Erwärmung der Probe durch den Laser ist vernachlässigbar.
- Die laterale Diffusion der im Laserspot erzeugten Ladungsträger ist vernachlässigbar oder zumindest ausreichend temperaturunabhängig.
- Der Großteil der nichtstrahlenden Rekombinationszentren ist thermisch aktiviert, nur ein geringer Teil ist temperaturunabhängig.
- Bei tiefen Temperaturen T sind alle thermisch aktivierten Rekombinationszentren ausgefroren, also inaktiv.
- Die Zahl der temperaturunabhängigen Rekombinationszentren ist durch hohe Laser-Anregungsleistungsdichten und dadurch erzeugte hohe Ladungsträgerdichten absättigbar.

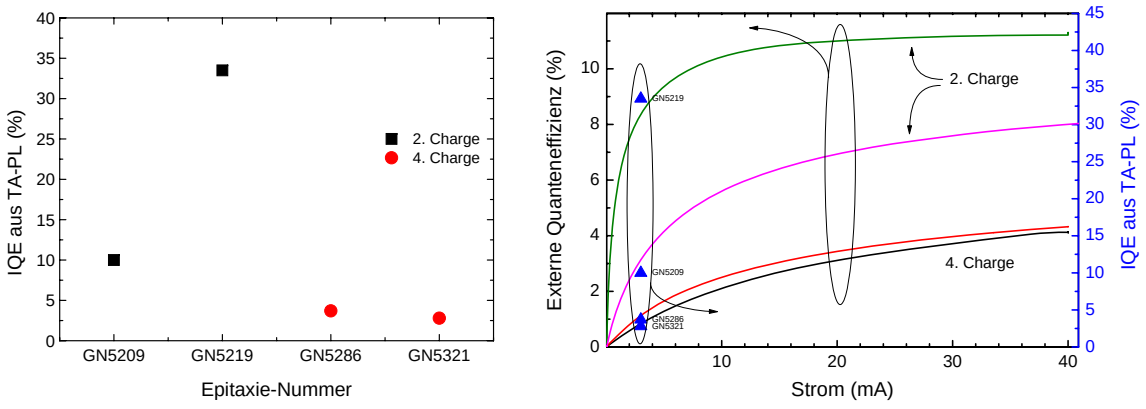
Abbildung 6.15(a) zeigt die Auswertung einer TA-PL-Messung, bei der eine TQW-LED-Struktur auf FS-GaN mit geringer EL-Leistung (4. Charge) auf 13 K abgekühlt und während des Aufwärmens mit drei verschiedenen Laser-Leistungsdichten zwischen 1,5 und $150\,\mathrm{W/cm^2}$ bei 325 nm angeregt wurde.
Bei tiefen Temperaturen zeigen alle PL-Anregungsleistungsdichten ein Plateau der PL-Effizienz, was auf das vollständige Ausfrieren der thermisch aktivierten nichtstrahlenden Rekombinationszentren schließen lässt. Mit steigender Anregungsleistungsdichte steigt die PL-Effizienz und sättigt bei der höchsten Leistungsdichte, was durch die Absättigung der verbliebenen Rekombinationszentren erklärt werden kann. Mit steigender Temperatur sinkt die PL-Effizienz für alle Leistungsdichten und der Vergleich von $\eta_{\mathrm{PL}}(300\,\mathrm{K})$ zu $\eta_{\mathrm{PL}}(10\,\mathrm{K})$ führt für die höchste Anregungsleistungsdichte zu $\eta_{\mathrm{IQE}} = 2{,}8\%$. Diese geringe interne Quanteneffizienz erklärt die niedrige EL-Leistung dieser LED und lässt sich auf das verwendete FS-GaN-Substrat zurückführen, siehe Anhang A.2.



(a) (b)

Abbildung 6.15: *PL-Effizienz aufgetragen über der Temperatur T für drei verschiedene PL-Anregungsleistungsdichten an einer TQW-LED-Struktur auf (a) FS-GaN und (b) an der Schwesterprobe der mit dem ThinGaN®-Prozess hergestellten Probe auf Saphir.*

In Abb. 6.15(b) wird die Anwendung dieser Methode auf eine TQW-LED-Struktur auf Saphir gezeigt, die direkt darauf folgend und mit identischen Wachstumsparametern gewachsen wurde, wie die in den ThinGaN®-Prozess eingeschleuste Struktur, siehe Abschnitt 6.2.3. Die relativ zuverlässige Bestimmung der strahlenden Ausbeute η_{RE} führte zu einer internen Quanteneffizienz η_{IQE} von mindestens 29% bei 40 mA für die ThinGaN®-LED, die Bestimmung mittels $P(I)$-Kennlinie zu 76% und die über TA-PL bestimmte interne Quanteneffizienz η_{IQE} liegt bei 43% für deren Schwesterprobe. Zu beachten ist allerdings, dass durch die mit steigender Temperatur ansteigende PL-Effizienz nicht alle Annahmen für die Methode erfüllt waren (Abb. 6.15(b), 10 - 125 K). Unklar ist noch, welcher Stromdichte bei der Elektrolumineszenz die IQE-Bestimmung aus der TA-PL entspricht.
Zur weiteren Untersuchung der TA-PL-Methode werden in Abb. 6.16(a) die über TA-PL bestimmten internen Quanteneffizienzen η_{IQE} für verschiedene LEDs auf FS-GaN verglichen. Während LEDs auf Substraten der 2. Charge eine interne Quanteneffizienz η_{IQE} zwischen 10 und 34% aufweisen, liegt die interne Quanteneffizienz η_{IQE} für LEDs auf Substraten der 4. Charge im Bereich 3 - 4%, also einen Faktor 10 darunter. Das gibt einen Hinweis darauf, dass die Unterschiede in den EL-Leistungen P_{EL} nicht allein auf die optische Extraktionseffizienz η_{ex} zurückzuführen sind (siehe Anhang A.2). Die externe Quanteneffizienz η_{EQE} dieser Proben ist in Abb. 6.16(b) zusammen mit der über TA-PL bestimmten internen Quanteneffizienz η_{IQE} aufgetragen. Das relative Verhältnis der internen Quanteneffizienzen η_{IQE} zueinander entspricht dabei dem Verhältnis der externen Quanteneffizienzen η_{EQE} bei einem Strom von $I \approx 3\,\mathrm{mA}$. Unter der Annahme, dass die - durch die angelegte Spannung - erzeugte Bandkantenverbiegung bei der Elektrolumineszenz nur vernachlässigbaren Einfluss auf den Rekombinationsmechanismus im Vergleich zur PL hat, ergibt die höchste PL-Anregungsleistung von 150 $\mathrm{W/cm^2}$ also eine Ladungsträgerdichte im QW, die äquivalent zur elektrischen Injektion mit 4 $\mathrm{Acm^{-2}}$ ist (3 mA an Schnelltestkontakt mit 270 μm Kantenlänge).

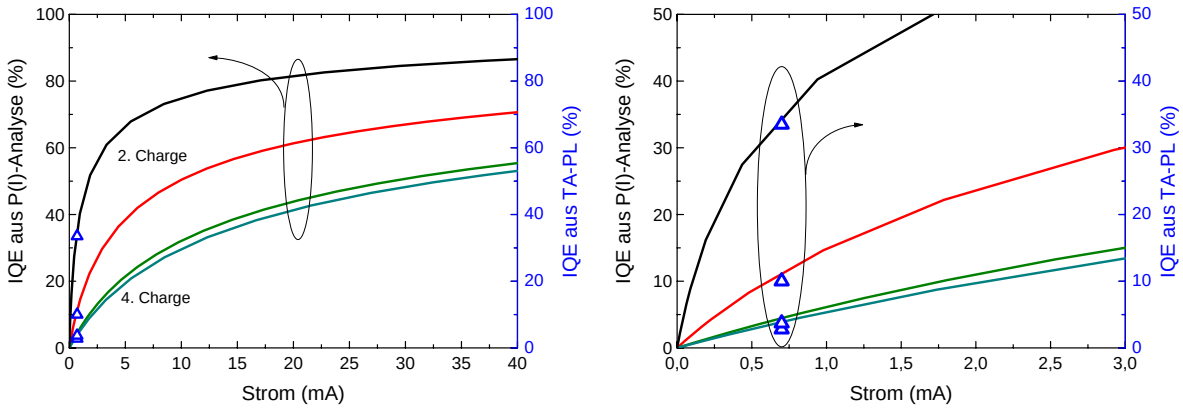


(a) (b)

Abbildung 6.16: *(a) Aus TA-PL bestimmte interne Quanteneffizienz η_{IQE} für TQW-LED-Strukturen auf FS-GaN und (b) Vergleich mit der gemessenen externen Quanteneffizienz.*

6.3.4. Vergleich der Methoden

In Abb. 6.17 werden die per TA-PL bestimmten internen Quanteneffizienzen η_{IQE} mit denen aus der Analyse der $P(I)$-Kennlinie bestimmten Werten wieder für die vier LED-Strukturen auf FS-GaN verglichen. Bei 40 mA erreicht die interne Quanteneffizienz, die aus der $P(I)$-Kennlinie bestimmt wurde, Werte zwischen 50% für Strukturen auf Substraten der 4. Charge und bis zu 90% für Strukturen auf Substraten der 2. Charge. Bei einem Strom von 0,7 mA werden für beide Methoden die gleichen Werte für die interne Quanteneffizienz η_{IQE} ermittelt. Wie beim Vergleich mit der externen Quanteneffizienz η_{EQE} [Abb. 6.16(b)] werden zwar vergleichbare Effizienzen oder Effizienz-Verhältnisse bei niedrigen Strömen erreicht, jedoch sind die Ströme mit 0,7 mA und 3 mA verschieden. Dies kann wiederum auf die Injektionseffizienz η_{inj} zurückzuführen sein.
Es lässt sich festhalten, dass beide Methoden die interne Quanteneffizienz im Vergleich zur strahlenden Ausbeute als deutlich höher abschätzen. Dies kann aber über eine geringe Injektionseffizienz im Bereich von 30 - 40% erklärt werden, siehe Tabelle 6.2.
Die über die TA-PL-Methode bestimmte interne Quanteneffizienz η_{IQE} repräsentiert eine relative Maßzahl für die Effizienzen bei *niedrigen* Stromdichten, während die aus der $P(I)$-Kennlinie bestimmte interne Quanteneffizienz den Verlauf der externen Quanteneffizienz η_{EQE} für LED-Strukturen gut wiedergibt.
Für eine zuverlässige Methode zur Bestimmung der internen Quanteneffizienz η_{IQE} oder zur Vorhersage von EL-Leistungen P_{EL} sollten beide jedoch aufgrund der gefundenen Abweichungen und Unsicherheiten bezüglich der Injektionseffizienz weitergehender auf Konsistenz geprüft werden.



(a) (b)

Abbildung 6.17: *(a) Vergleich der aus TA-PL bestimmten internen Quanteneffizienz mit der aus der Analyse der $P(I)$-Kennlinie bestimmten. (b) Vergrößerung eines Ausschnittes von (a).*

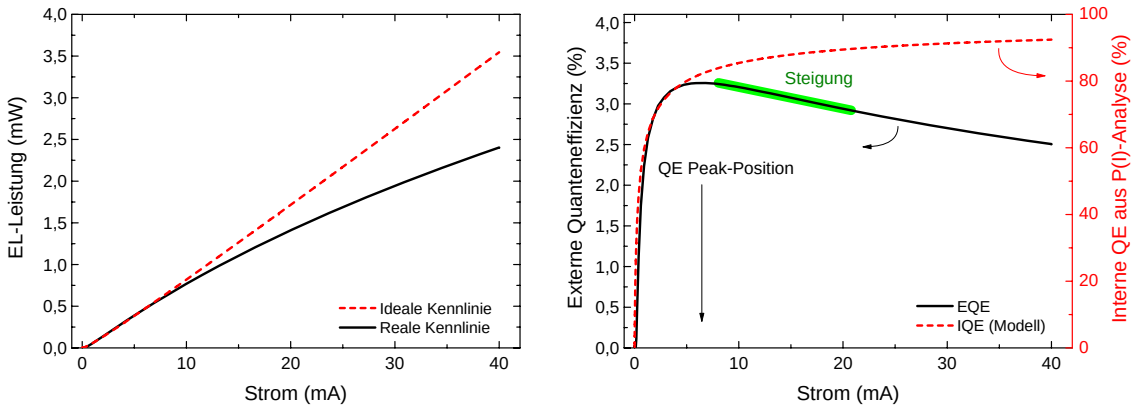
6.4. Efficiency Droop – Das nicht-thermische Überrollen

Zur Vervollständigung der Effizienz-Betrachtung wird nun der Einfluss des Cn^3-Terms der Ratengleichung untersucht, der in den vorangegangenen Abschnitten vernachlässigt wurde. Abhängig vom Auger-Koeffizient C bestimmt die Auger-ähnliche Rekombination bei hohen Ladungsträgerdichten n, also hohen Strömen I, die interne Quanteneffizienz η_{IQE} maßgeblich:

$$\eta_{\mathrm{IQE}} = \frac{Bn^2}{An + Bn^2 + Cn^3}$$

Der Auger-Koeffizient C nimmt mit steigender Bandlücke E_{gap} ab und sollte bei Bandlücken über 2 eV und bei gebräuchlichen Stromdichten um 50 Acm^{-2} keine Rolle spielen. Die GaInN-basierten LEDs zeigen jedoch ein ausgeprägtes *nicht-thermisches Überrollen*[2] der externen Quanteneffizienz η_{EQE} mit steigender Stromdichte j. Dieser Effekt wird in der Literatur zumeist als *Droop* oder *Efficiency Droop* bezeichnet und wird in Abb. 6.18 am Beispiel einer grünen SQW-LED auf Saphir dargestellt.
In der $P(I)$-Kennlinie ist das nicht thermische Überrollen als Abweichen der EL-Leistung P_{EL} von der linearen Kennlinie zu erkennen, Abb. 6.18(a), besonders in der Auftragung als externe Quanteneffizienz η_{EQE} wird die Herkunft des Ausdrucks *Überrollen* deutlich, siehe Abb. 6.18(b). Die wichtigen Parameter zur Beschreibung des Verlaufs der externen Quanteneffizienz sind hier die Stromstärke I_{max} oder Stromdichte j_{max} bei der die maximale externe Quanteneffizienz erreicht wird, fortan auch mit Peak-Stromstärke/-dichte bezeichnet, und die Steigung des Effizienz-Abfallens, siehe Abb. 6.18(b). Die Ursache des nicht-thermischen Überrollens ist noch unklar

[2]Im Gegensatz zum thermisches Überrollen, das auftritt, wenn sich ein Bauteil durch Strominjektion erwärmt und dadurch das Absinken der Effizienz verursacht.



(a) (b)

Abbildung 6.18: *(a) Aus der $P(I)$-Kennlinien-Analyse simulierte im Vergleich zur realen dc-$P(I)$-Kennlinie einer bei 517 nm emittierenden LED und (b) Auftragung als Quanteneffizienz [vgl. Abb. 4.7(a)].*

und Gegenstand aktuellster Forschung:
Von mehreren Gruppen wird der zugrunde liegende Mechanismus in einem Auger-Effekt gesehen. Während Shen *et al.* [143] und Gardner *et al.* [144] einen Band-zu-Band-Auger-Effekt mit $C = (1,4 - 2) \cdot 10^{-30}\,\mathrm{cm^6 s^{-1}}$ aus PL-Messungen ableiten, schließen Hader *et al.* [145] aufgrund theoretischer Berechnungen einen direkten Auger-Prozess im Leitungsband aus, da für diesen Prozess der Auger-Koeffizient nur $C = 3,5 \cdot 10^{-34}\,\mathrm{cm^6 s^{-1}}$ betrage. Sie sehen dagegen einen Phononen- oder Defekt-unterstützten Auger-Effekt als mögliche Ursache. Delaney *et al.* [29] wiederum berechneten die Bandstruktur von GaN und InN unter Einbeziehung auch der zweiten Leitungsbänder. Der Bandabstand zwischen erstem und zweitem Leitungsband beträgt etwa 2,5 eV in GaN und 3,1 eV in InN, wodurch eine Resonanz bei vergleichbaren Bandlücken E_{gap} des aktiven GaInN entsteht, siehe Abb. 2.6(a). Der daraus bestimmte Auger-Koeffizient C für einen Elektron-Elektron-Loch-(eeh)-Auger-Prozess beträgt bis zu $2 \cdot 10^{-30}\,\mathrm{cm^6 s^{-1}}$ und ist damit mit dem von Shen *et al.* [143] bestimmten vergleichbar. Allerdings zeigt der Auger-Koeffizient auf Basis dieser Berechnungen eine relativ schmale Resonanz bei 2,5 eV mit einem Rückgang um eine Größenordnung für Bandlücken $\approx 2,35$ eV, was den experimentellen Ergebnissen widerspricht.
Von anderen Gruppen wird die Ursache des Überrollens auf das Überschießen von Ladungsträgern aus dem aktiven Bereich hinaus, also auf einen Rückgang der Injektionseffizienz η_{inj}, zurückgeführt. Rozhansky *et al.* [146] sehen die AlGaN-Elektronenbarriere durch die piezoelektrischen Felder bei c-plane-LEDs erniedrigt und damit als unwirksam bei hohen Stromdichten. Kim *et al.* [147] und Schubert *et al.* [53] zeigten über Simulation ebenfalls, dass die von den piezoelektrischen Feldern verursachten Grenzflächenladungen zu einem Überschießen von Elektronen führen.
Als ein entscheidender Diskussionspunkt zwischen Anhängern der Erklärungsmodelle von Auger-Effekt und Ladungsträger-Verlust stellt sich die Unabhängigkeit der PL-Effizienzen von Ladungsträger-Transportprozessen dar, mit der Shen *et al.* [143] argumentierten. Schubert *et al.* [148] zeigten jedoch, dass auch bei resonanter PL-

Anregung Ladungsträger aus dem aktiven Bereich entkommen und so auch dort Transportprozesse mitbeachtet werden müssen.
Weitere Modelle für die Ursache des nicht-thermischen Überrollens sind Tunneln der Ladungsträger aus dem QW [149], Delokalisierung von Ladungsträgern und damit Erreichen nichtstrahlender Rekombinationszentren [150] oder die durch die AlGaN-Elektronenbarriere erschwerte Injektion von Löchern [151].
Ausgehend von den verschiedenen Modellen ergeben sich unterschiedliche Ansätze zur Reduktion des Effizienzabfalls. Entscheidend, um die durch einen Cn^3-Term zu beschreibende Rekombination zu unterdrücken, ist die Senkung der Ladungsträgerdichte n im aktiven Bereich, was erfolgreich über die Vergrößerung des aktiven Volumens durch Verwendung von 9 - 20 nm breiten Doppelhetero(DH)- oder verbesserter MQW-Strukturen gezeigt wurde [122, 144, 152]. Aber auch Schubert *et al.* konnten durch den Einsatz von polaritätsangepassten quarternären AlGaInN- [153] oder ternären GaInN-Barrieren [154] zwischen den QWs das Überrollen vermindern.
Eine weitere systematische Untersuchung des Effekts wird im nächsten Kapitel gegeben.

6.5. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die grundlegenden Zusammenhänge von EL-Leistung P_{EL}, interner Quanteneffizienz η_{IQE} und optischer Extraktionseffizienz η_{ex} erarbeitet.
Die optische Extraktionseffizienz η_{ex} des Pt-Schnelltests konnte für LED-Strukturen auf Saphir (und damit auch in erster Näherung für ULD) durch den Vergleich mit dem Flip-Chip-Dünnfilm-Prozess ThinGaN® zu 13% bestimmt werden. Dabei zeigte die LED im ThinGaN®-Prozess eine EL-Leistung von $P_{\mathrm{EL}} = 12\,\mathrm{mW}$ bei $I = 20\,\mathrm{mA}$. Der absolute Wert der optischen Extraktionseffizienz η_{ex} für LED-Strukturen auf FS-GaN bleibt unklar, bestimmbar ist nur das Produkt $\eta_{\mathrm{ex}}\eta_{\mathrm{inj}}$.
Die zwei vorgestellten Verfahren zur Bestimmung der interne Quanteneffizienz η_{IQE} lassen nur eine grobe Abschätzung der internen Quanteneffizienz η_{IQE} zu, wobei die Methode der temperaturabhängigen Photolumineszenz die interne Quanteneffizienz η_{IQE} bei niedrigem Strom zwischen 0,7 und 3 mA erfasst, die Methode der Analyse der $P(I)$-Kennlinie jedoch den Verlauf der externen Quanteneffizienz η_{EQE} gut wiedergibt. Letztere ist jedoch nur anwendbar, so lange die Injektionseffizienz η_{inj} der Ladungsträger in den Quantenfilm konstant, also insbesondere unabhängig von der Stromdichte, ist.

7. Einfluss des Substrattyps auf LED-Charakteristiken

Während im vorangegangenen Kapitel die Quanteneffizienz von LEDs hauptsächlich für kleine Stromdichten behandelt wurde, liegt der Schwerpunkt in diesem Kapitel auf der Quanteneffizienz bei hohen Stromdichten. Dazu wird die externe Quanteneffizienz von LEDs auf den verschiedenen Substraten Saphir, ULD, und FS-GaN verglichen, wobei zusätzlich der Schichtaufbau des aktiven Bereichs variiert wird. Von besonderer Wichtigkeit ist dabei der Einfluss dieser Variationen auf das nicht-thermische Überrollen.

7.1. Allgemeine Betrachtungen

Gepulste Elektrolumineszenz Zum Darstellen und Untersuchen des nicht-thermischen Überrollens bei Nah-UV-LEDs sind höhere Stromdichten als bei LEDs im grünen Spektralbereich notwendig, da das Überrollen mit sinkendem In-Gehalt abnimmt, wie später gezeigt wird. Um eine Erwärmung der LED bei den höheren Stromdichten auszuschließen, werden die $P(I)$-Messungen gepulst durchgeführt. Dazu wurde das integrierte Strompuls-Lichtleistungsmessgerät Keithley 2520 genutzt, dessen kürzeste Pulsbreite 0,5 μs mit maximal 5 A bei 10 V ist.

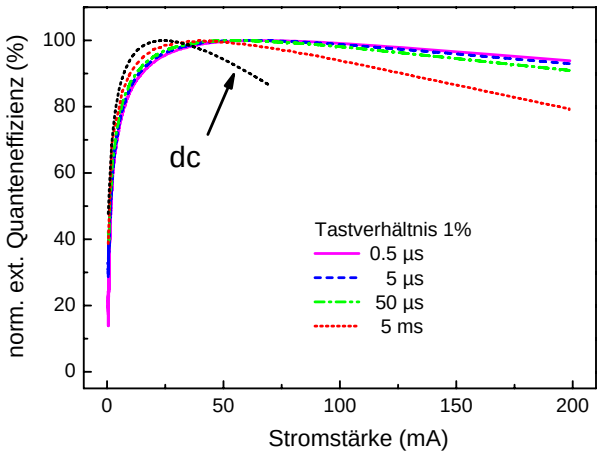


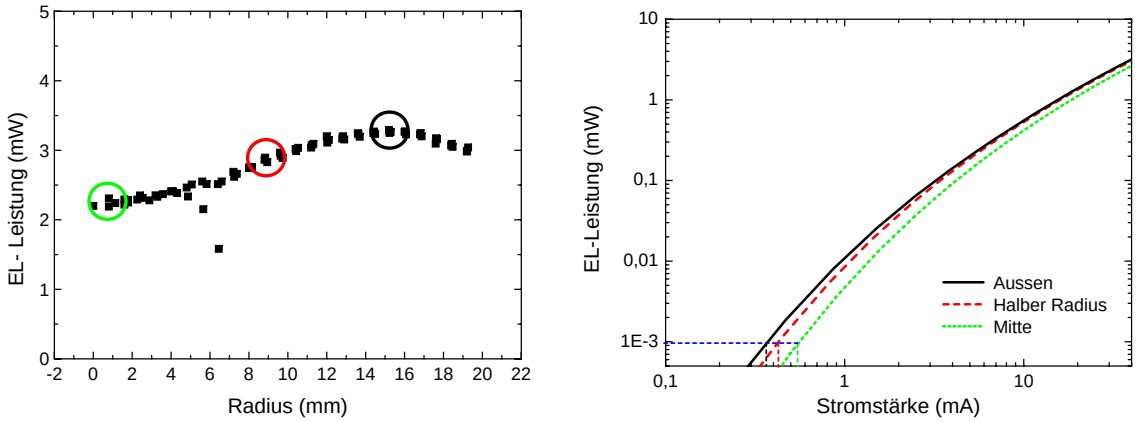
Abbildung 7.1: *EQE bei dc- und gepulster Messung mit verschiedenen Pulsbreiten aufgetragen über der injizierten Stromstärke I.*

In Abb. 7.1 ist der Verlauf der externen Quanteneffizienz für verschiedene Pulsbreiten zwischen dc und 0,5 μs dargestellt. Bereits bei Pulsbreiten von 5 μs und einem

Tastverhältnis von 1% ist eine Verminderung der externen Quanteneffizienz durch Erwärmung des aktiven Bereichs der LED-Struktur festzustellen. Als Parameter für die folgenden Messungen wurde deshalb eine Pulsbreite von 1 μs bei einem Tastverhältnis von 0,1% ausgewählt.

7.1.1. Einfluss von Defekten auf die Quanteneffizienz

Um den Einfluss der Kristallqualität und von Punktdefekten auf das nicht-thermische Überrollen zu untersuchen, wurde eine mit dem NiAu-Vollprozess strukturierte TQW-LED auf Saphir vermessen. Abbildung 7.2(a) zeigt die radiale Verteilung der EL-Leistung über den prozessierten Wafer. Die drei Dioden, deren $P(I)$-Kennlinien in Abb. 7.2(b) gezeigt werden, sind mit Kreisen markiert und liegen über den Waferradius verteilt. Wie in Kapitel 4 beschrieben, ist die verminderte Leistung in der Mitte des Wafers zum einen durch eine geringere Materialqualität der epitaktischen Schicht und zum anderen durch stärker in den aktiven Bereich diffundierende Mg-Atome, die als nichtstrahlende Rekombinationszentren wirken, verursacht. Die $P(I)$-Kennlinien der Dioden sind in Abb. 7.2(b) dargestellt. Die vorgenannten Defekte führen neben der niedrigeren EL-Leistung P_{EL} auch zu einem höheren Einsatzstrom I_{th} von 540 nA anstatt 340 nA bei einer EL-Leistung von 1 μW.



(a) (b)

Abbildung 7.2: *(a) On-Wafer-Mapping der EL-Leistung bei 40 mA für TQW-Mesa-LEDs aus einem NiAu-Prozess. (b) $P(I)$-Kennlinien der in (a) markierten LEDs.*

In Abb. 7.3(a) ist die externe Quanteneffizienz η_{EQE} der Dioden dargestellt. Die maximale externe Quanteneffizienz variiert zwischen 2,3% und 2,8% und ist in Abb. 7.3(b) über den Einsatzstrom aufgetragen. Der Maximalwert sinkt mit steigendem Einsatzstrom.
Ebenfalls über den Einsatzstrom aufgetragen sind in Abb. 7.3(c) die Peak-Stromstärke und in Abb. 7.3(d) die negative Steigung der externen Quanteneffizienz (Stärke des Überrollens). Mit höherem Einsatzstrom I_{th} rollt die externe Quanteneffizienz erst bei höherem Strom über und sinkt danach weniger steil ab.

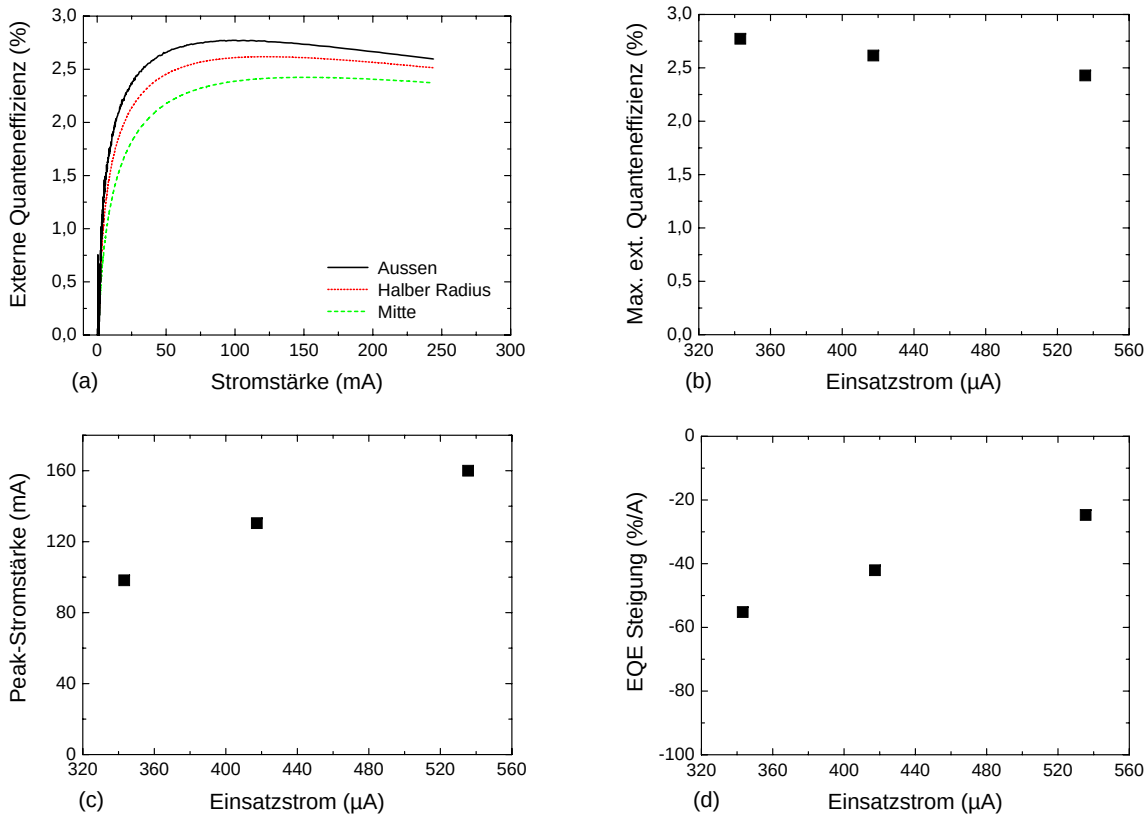


Abbildung 7.3: *(a) Externe Quanteneffizienz der drei LEDs aus Abb. 7.2 aufgetragen über der Stromstärke und die maximale Quanteneffizienz (b), die Peak-Stromstärke (c) und die Steigung des Effizienzabfalls (d) aufgetragen über dem Einsatzstrom.*

Während der Maximalwert der externen Quanteneffizienz durch die höhere Defektkonzentration in der Mitte des Wafers nur um 16% von 2,8% auf 2,4% vermindert wird [Abb. 7.3(b)], beträgt der Einfluss auf die Peak-Stromstärke 68%. Sie wird dabei von 98 mA auf 160 mA verschoben [Abb. 7.3(c)]. Auch die Steigung des Effizienz-Abfalls wird deutlich beeinflusst, sie halbiert sich von -55 %/A auf -25 %/A.
Diese experimentell gefundenen Zusammenhänge folgen auch aus der in Kapitel 6.3.1 vorgestellten Ratengleichung. Aus Gleichungen 6.2 und 6.8 lässt sich die maximale strahlende Ausbeute $\eta_{\mathrm{RE,max}}$ über die Bedingung $d\eta/dn = 0$ bestimmen:

$$\eta_{\mathrm{RE,max}} = \eta_{\mathrm{inj}} \frac{B}{B + 2\sqrt{AC}} \tag{7.1}$$

Über Gleichung 6.7 und Normierung auf die Diodenfläche $I/V = j/d$ folgt daraus die Peak-Stromdichte j_{max} am Maximum der Quanteneffizienz:

$$j_{\mathrm{max}} = \frac{qd}{\eta_{\mathrm{inj}}} \frac{A}{C} \left(B + 2\sqrt{AC} \right) \tag{7.2}$$

Wieder unter der Annahme, dass die Injektionseffizienz η_{inj} konstant ist, folgt aus diesen Bedingungen direkt, dass ein höherer nichtstrahlender SRH-Koeffizient A zu

niedrigerer strahlender Ausbeute $\eta_{\mathrm{RE,max}}$ und höherer Stromdichte j_{max} am Punkt des Überrollens der externen Quanteneffizienz führt.

7.1.2. Ladungsträgerrekombination in der Verarmungszone

In Abb. 7.4 werden die externen Quanteneffizienzen von LED-Strukturen mit variierter QW-Anzahl auf Saphir und ULD verglichen. Da die bei der Messung angelegte Spannung U durch das Messgerät auf $<$10 V begrenzt ist und der serielle Widerstand auf der n-Seite bei Schnelltest-Proben auf Saphir hoch ist, wurde bei dieser Messung der Pt-Schnelltestkontakt mittlerer Größe mit Kantenlänge $l = 120\,\mu$m ausgewählt, um die nötigen Stromdichten j zu erreichen.

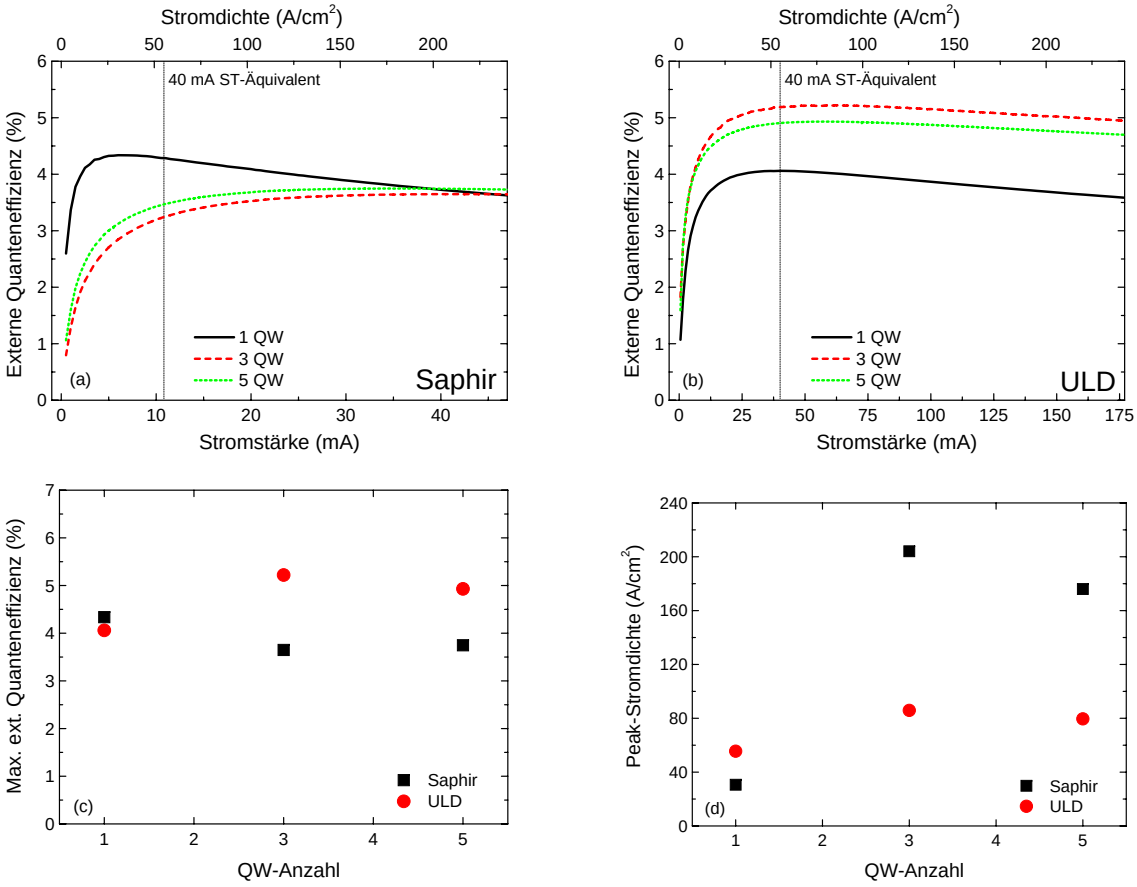


Abbildung 7.4: *Externe Quanteneffizienz im Pt-Schnelltest für Ein-, Drei- und Fünffach-QW-LED-Strukturen auf Saphir (a) und ULD (b), sowie die maximale externe Quanteneffizienz (c) und deren Peak-Stromstärke (d) aufgetragen über die Quantenfilm-Anzahl. Die senkrechte Linie markiert die zum Schnelltest äquivalente Stromdichte.*

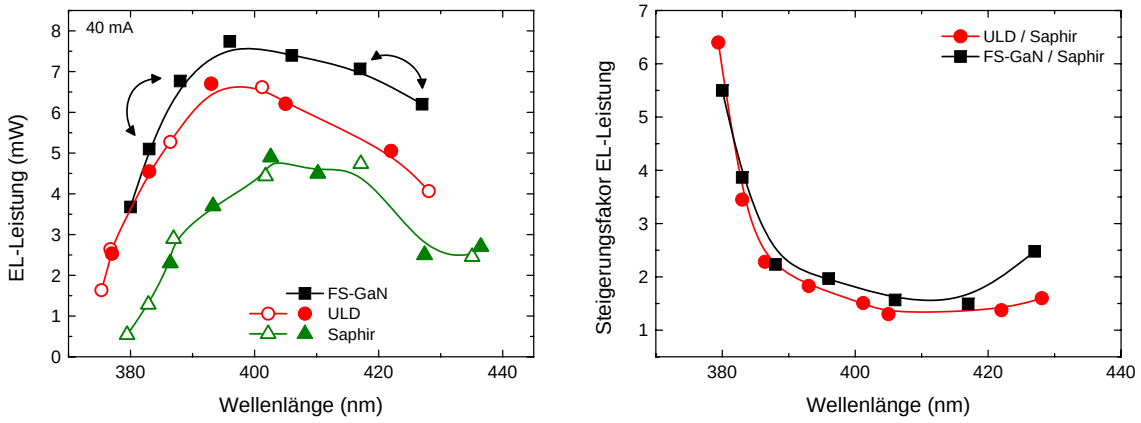
Bei den Dioden auf Saphir zeigt die SQW-Probe über nahezu den gesamten Messbereich die höchste externe Quanteneffizienz. Die Quanteneffizienz steigt bei kleiner Stromdichte stark an, zeigt ein Maximum von 4,3% bei 30 Acm^{-2} und fällt dann langsam wieder ab. Erst bei einer Stromdichte von ca. 200 Acm^{-2} schneidet sie die

Quanteneffizienz der Drei- und Fünffach-QW-Proben, die flacher ansteigen und erst im Bereich des Schnittpunkts das Maximum zeigen.
Bei den LED-Strukturen auf ULD ist der qualitative Verlauf der Quanteneffizienz für die drei Proben ähnlicher und es gibt keinen Schnittpunkt im untersuchten Strombereich. Die Dreifach-QW-Probe zeigt ab einer Stromdichte von ca. $10\,\mathrm{Acm}^{-2}$ die höchste Quanteneffizienz, darunter ist die fünffach-QW-Probe effizienter.
Die gemessenen maximalen externen Quanteneffizienzen sind in Abb. 7.4(c) gezeigt. Die insgesamt effizienteste LED-Struktur ist die Dreifach-QW-Probe auf ULD mit einer maximalen externen Quanteneffizienz von 5,2%, die bei einer Stromdichte von $85\,\mathrm{Acm}^{-2}$ erreicht wird, Abb. 7.4(d). Im Vergleich zu den Proben auf Saphir zeigt auch die Fünffach-QW-Probe auf ULD eine höhere Effizienz, hingegen ist bei den SQW-Proben die Probe auf Saphir die effizientere.
Unter den oben gefundenen Bedingungen für die maximale strahlende Ausbeute $\eta_{\mathrm{RE,max}}$ und die Peak-Stromdichte j_{max} ergibt sich ein interessanter Aspekt: Nimmt man für die Proben auf ULD, entsprechend der geringeren Versetzungsdichte, einen kleineren nichtstrahlenden SRH-Koeffizienten A an, so sollten die Proben auf ULD höhere maximale strahlende Ausbeuten $\eta_{\mathrm{RE,max}}$ und ein früheres Überrollen zeigen. Dies wird auch für die drei- und fünffach-QW-Proben beobachtet, bei den SQW-Proben jedoch nicht.
Eine mögliche Ursache für diese Diskrepanz könnte eine stärkere Diffusion von Mg bei den ULD-Proben als bei den Saphir-Proben sein, was zuerst die Rekombination im ersten bzw. obersten QW beeinflussen würde und somit im Fall der mehrfach-QW-Proben von den anderen QWs kompensiert werden könnte. Eine andere mögliche Ursache wäre, dass die Annahme einer gleich hohen Injektionseffizienz η_{inj} für die Strukturen auf den unterschiedlichen Substraten nicht zutrifft.
Die Möglichkeit der höheren Mg-Diffusion bei ULD-Proben erscheint zwar unwahrscheinlich, da die bessere Kristallqualität den gegenteiligen Effekt haben sollte, allerdings ergibt der Vergleich von optischen und elektrischen Daten (nicht gezeigt), dass Photo- und Elektrolumineszenz-Intensitäten keine homogene Verteilung über die Wafer haben. Dies ist ein Hinweis auf erhöhte Mg-Diffusion, wie in Abschnitt 4.4 gezeigt wurde. Die Möglichkeit der veränderten Injektionseffizienz erscheint jedoch aufgrund der Ergebnisse von Abschnitt 6.3.2 ebenso plausibel. Dort zeigte der Vergleich von strahlender Ausbeute und externer Quanteneffizienz, dass die Injektionseffizienz bei einer Standard-Struktur auf Saphir nur etwa 30-40% beträgt. Es ist also gut möglich, dass die strukturelle Veränderung des aktiven Bereichs einen großen Einfluss auf die Injektionseffizienz hat.
Um diese Sachverhalte genauer zu untersuchen, werden in den nächsten Abschnitten weitere Variationen an der LED-Struktur vorgenommen.

7.2. LED-Strukturen mit variiertem In-Gehalt: Wellenlängenserie

7.2.1. Konstante Stromdichte

Um den Einfluss des In-Gehalts der Quantenfilme auf die Lumineszenz-Effizienz und deren Abfall bei hohen Stromdichten zu untersuchen, wurden auf den drei Substraten Saphir, ULD und FS-GaN LED-Strukturen mit variiertem In-Gehalt zwischen 4% und 14% (bestimmt nach SIMS) und damit Emissionswellenlängen bei 40 mA zwischen 375 und 435 nm gewachsen. Die In-Gehalte wurden über Variation der Wachstumstemperatur des aktiven Bereichs zwischen 760 und 830°C eingestellt, wobei ein 5% H_2/N_2 Trägergasgemisch benutzt wurde, siehe Abb. 4.5.
Die epitaktische Struktur besteht für die Dioden auf ULD und FS-GaN aus einer 500 nm dicken Si-dotierten n-Kontaktschicht mit $[\mathrm{Si}] = 10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$, einem aktiven Bereich aus Dreifach-GaInN-QWs mit einer Dicke von 3 nm, die von 7 nm dicken GaN-Barrieren getrennt werden. Die Dicke der p-GaN-Abstandsschicht beträgt 3 nm. Die Dicke der $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$-Elektronenbarriere ist 10 nm und die der Mg-dotierten p-Kontaktschicht mit einer Mg-Konzentration von $6 \cdot 10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3}$ ist 160 nm. Für die LED-Strukturen auf Saphir wurde eine Standard-Niedertemperatur-Nukleation mit 3 μm nominell undotiertem GaN als Puffer verwendet (siehe Abschnitt 4.2) und zur Verbesserung der lateralen Leitfähigkeit die n-Kontaktschicht um zusätzlich 700 nm Si-dotiertes GaN mit einer Si-Konzentration von $5 \cdot 10^{18}\,\mathrm{cm}^{-3}$ erweitert. Ansonsten entspricht die Schichtstruktur für die LED-Struktur auf Saphir denen auf ULD und FS-GaN. Für die Serie auf FS-GaN wurden Substrate der 4. Charge mit rauer Rückseite verwendet.
Abbildung 7.5(a) stellt die maximalen EL-Leistungen bei 40 mA im Pt-Schnelltest dar. Die mit Pfeilen markierten Messwerte wurden am selben FS-GaN-Wafer bestimmt. Dies war möglich, da die Variation der On-Wafer-Temperatur beim Wachstum des aktiven Bereichs auf FS-GaN zu einer inhomogenen Emissionswellenlängen-Verteilung auf dem Wafer führt (vgl. Abschnitt 5.2). Die offenen Symbole repräsentieren zu einem früheren Zeitpunkt gewachsene Serien, deren EL-Leistung mit In-Bumps gemessen wurde. Um Konsistenz mit den im Pt-Schnelltest gemessenen LED-Strukturen herzustellen, wurden die Messwerte um einen Faktor 1,35 korrigiert (vgl. Tabelle 3.3.3).
Die Serien auf ULD und FS-GaN zeigen ein Maximum der EL-Leistung im Wellenlängenbereich um 395 nm, mit 7,7 mW auf FS-GaN und 6,7 mW auf ULD sowie einen Abfall der EL-Leistungen zu längeren und kürzeren Wellenlängen. Die Serie auf Saphir zeigt eine ähnliche Wellenlängenabhängigkeit, ist jedoch etwas in Richtung größerer Wellenlängen verschoben und zeigt das Maximum von 4,9 mW bei 402 nm. Bei allen drei Serien ist der Abfall auf der kurzwelligen Seite dabei steiler als der zu langen Wellenlängen, wobei die Serie auf FS-GaN auf der kurzwelligen Flanke am steilsten und zu langen Wellenlängen hin am flachsten abfällt.
Die relativen EL-Leistungen der Serien zueinander sind in Abb. 7.5(b) über der Wellenlänge aufgetragen. Im Wellenlängenbereich zwischen 390 und 430 nm liegt die EL-Leistung der Dioden auf ULD einen Faktor 1,3 bis 1,8 über denen auf Saphir. Für



(a) (b)

Abbildung 7.5: *(a) EL-Leistung bei 40 mA für LED-Strukturen im Pt-Schnelltest auf Saphir, ULD und SSP-FS-GaN der 4. Charge aufgetragen über der Emissionswellenlänge. Die mit Pfeilen verbundenen Messwerte stammen von verschiedenen Dioden auf demselben Wafer. Offene Symbole stehen für früher gewachsene Serien, deren EL-Leistungen mit In-Bumps gemessen und hier um einen Faktor 1,35 korrigiert wurden. (b) Faktor der EL-Leistungssteigerung der LED-Strukturen auf ULD und FS-GaN gegenüber den Dioden auf Saphir.*

die Dioden auf FS-GaN sind die Faktoren mit Werten zwischen 1,5 und 1,9 etwa 10% höher, wobei die langwelligste Diode auf FS-GaN einen Faktor 2,5 zeigt. Unter 390 nm steigt das Verhältnis mit sinkender Wellenlänge stark an und liegt für ULD bei einer Emissionswellenlänge von 380 nm bei 6,4. Die Serie auf FS-GaN zeigt den gleichen Anstieg, jedoch beträgt die EL-Leistungssteigerung bei 380 nm nur noch einen Faktor 5,5.
Ursache dieser geringeren Steigerung ist die Absorption der Lichtemission im GaN-Substrat. Wie im Anhang A.1 behandelt wird, steigt der Absorptionskoeffizient der GaN-Substrate schon ab 385 nm deutlich an und führt zusammen mit der Dicke der Substrate von 300 μm zur Abschwächung des durch das Substrat ausgekoppelten Lichts.
Zur Verdeutlichung ist die spektrale Effizienz der gemessenen Dioden auf Saphir und FS-GaN zusammen mit der Transmission eines 900 μm dicken FS-GaN-Substrates in Abb. 7.6(a) dargestellt. Auf beiden Substraten sinkt die spektrale Breite der Emission mit sinkender Peak-Wellenlänge. Bei Saphir weist die spektrale Effizienz ein Maximum bei der Emission um 402 nm auf und fällt zu beiden Seiten wieder ab, was mit dem Verlauf der EL-Leistungen korreliert. Auffällig ist die starke Verbreiterung und geringe Peak-Effizienz der zwei langwelligsten Dioden.
Bei den Dioden auf FS-GaN steigt die spektrale Peak-Effizienz mit sinkender Wellenlänge an und zeigt das Maximum bei 388 nm. Die Diode mit der kurzwelligsten Emission auf FS-GaN mit 380 nm ist deutlich durch die einsetzende Absorption im Substrat beeinflusst und zeigt eine niedrigere Effizienz. In Abb. 7.6(b) sind die Effizienz-Spektren der Serie auf FS-GaN zusammen mit der Transmission des

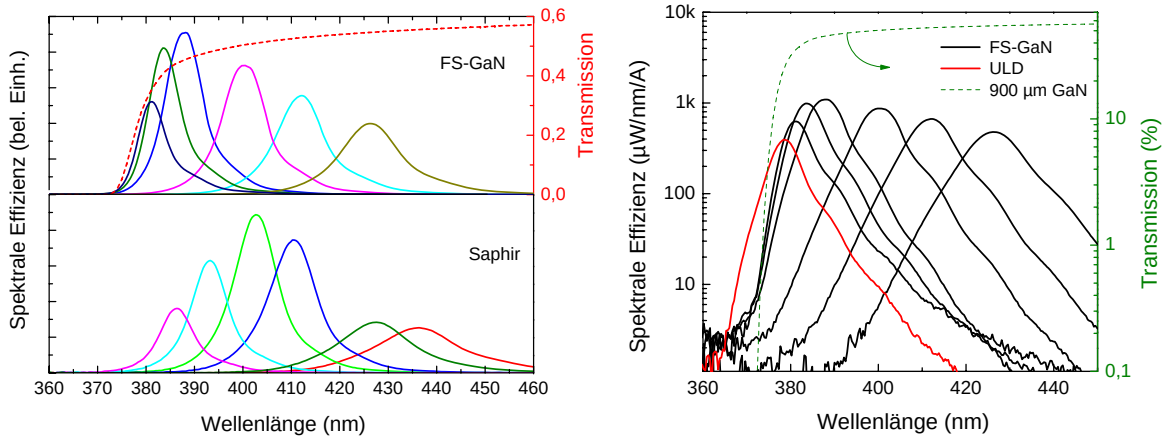


Abbildung 7.6: *(a) Spektrale Effizienz der LED-Strukturen auf Saphir und FS-GaN aufgetragen über der Wellenlänge. Die gestrichelte Linie zeigt die Transmission eines GaN-Substrates mit einer Dicke von 900 µm. (b) Die Daten der LED-Strukturen auf FS-GaN von Bild (a) in halblogarithmischer Darstellung, zusätzlich ist die spektrale Effizienz einer LED-Struktur auf ULD dargestellt.*

dicken GaN-Substrats und der Effizienz einer kurzwelligen LED auf ULD in logarithmischer Auftragung dargestellt. Aus dem Abschneiden der Elektrolumineszenz-Intensität auf der kurzwelligen Seite wird ersichtlich, dass nicht nur die kurzwelligste Diode auf FS-GaN durch die Absorption beeinträchtigt ist, sondern alle Dioden mit Peak-Wellenlängen kürzer als 388 nm. Dies ist unter anderem ein Grund dafür, dass die Diode mit der höchsten spektralen Peak-Effizienz auf FS-GaN (388 nm) nicht auch diejenige mit der höchsten EL-Leistung ist, da sie eine schmalere Linienbreite aufweist.

Interne Quanteneffizienz

Um die spektrale Abhängigkeit der EL-Leistung besser zu verstehen, muss die Ursache für die Leistungsverminderung verstanden werden. Neben der Extraktionseffizienz spielen dabei die Injektionseffizienz und die interne Quanteneffizienz eine Rolle.
In Abschnitt 6.3 wurden zwei Verfahren zur Bestimmung der internen Quanteneffizienz, die Bestimmung aus der temperaturabhängigen Photolumineszenz und aus dem charakteristischen Verlauf der $P(I)$-Kennlinie der Elektrolumineszenz, vorgestellt. Beide wurden auf die Dioden der Wellenlängenserie auf ULD angewandt und werden in Abb. 7.7 mit der EL-Leistung verglichen.
Die aus der temperaturabhängigen Photolumineszenz bestimmte interne Quanteneffizienz zeigen ein Maximum von 71% bei 400 nm und fallen zu beiden Seiten hin ab, auf der kurzwelligen Seite bis auf 19% bei 375 nm und auf der langwelligen Seite bis auf 37% bei 427 nm. Im Gegensatz dazu zeigt die aus der $P(I)$-Kennlinie bestimmte interne Quanteneffizienz bei 3 mA ein relativ schmales Band zwischen 35% und 55%, mit einem leichten Minimum von 35% bei 385 nm und einem Anstieg zu längeren

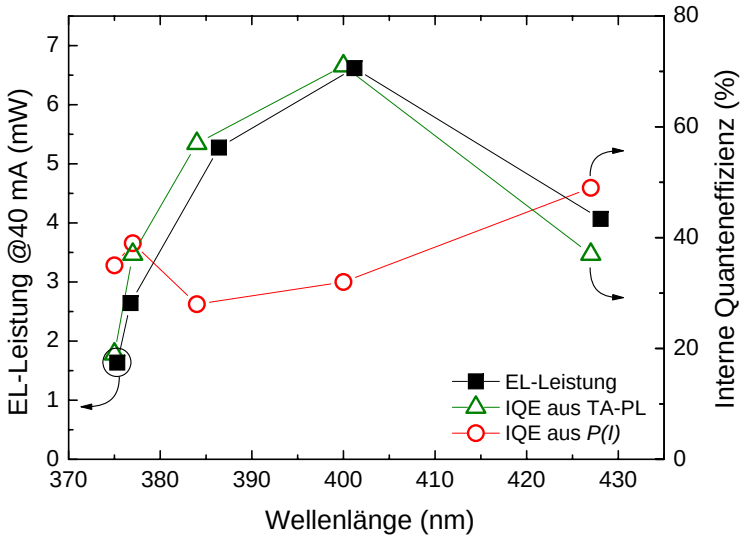


Abbildung 7.7: *EL-Leistung von TQW-LED-Strukturen auf ULD-Substrat im Pt-Schnelltest bei 40 mA verglichen mit der aus temperaturabhängiger Photolumineszenz und aus der $P(I)$-Kennlinie bestimmten internen Quanteneffizienz bei 3 mA.*

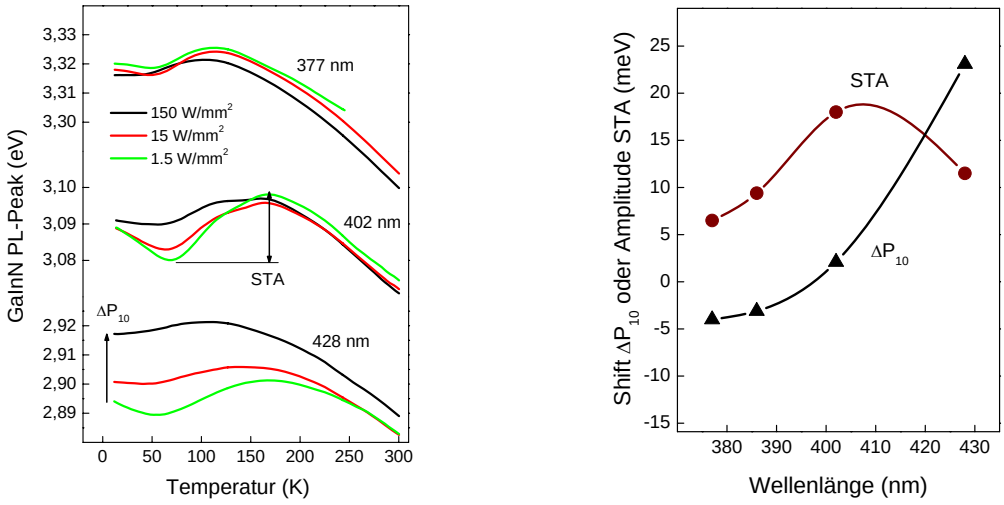
Wellenlängen.
Damit differieren die zwei Verfahren nicht nur in den absoluten Werten, sondern vor allem auch in der qualitativen Beschreibung des Verlaufs. Der Verlauf der aus der temperaturabhängigen Photolumineszenz bestimmten Werte stimmt sehr gut mit den gemessenen EL-Leistungen überein. Wie bereits in Abschnitt 6.3.3 gezeigt, entspricht die optische Bestimmung der internen Quanteneffizienz einem Strom von 3 mA. Für eine schwach angeregte LED-Struktur scheint damit die Annahme einer fast konstanten Extraktions- und Injektionseffizienz naheliegend.
Die aus der $P(I)$-Kennlinie bestimmte interne Quanteneffizienz lässt dagegen keine klare Korrelation mit dem Verlauf der EL-Leistungen erkennen. Eine Erklärungsmöglichkeit ist, dass die Injektionseffizienz η_{inj} zwar bei 40 mA für alle gemessenen Dioden ähnlich ist, aber eine Stromdichte-Abhängigkeit aufweist, die mit der Emissionswellenlänge bzw. dem In-Gehalt des QW variiert. Da eine Voraussetzung für die Bestimmung aus der $P(I)$-Kennlinie eine konstante Injektionseffizienz ist, wären dadurch die Werte der internen Quanteneffizienz verfälscht, da das charakteristische Ansteigen der internen Quanteneffizienz dann nicht mehr vom Verhältnis der strahlenden und nichtstrahlenden Koeffizienten B und A abhängt, sondern von der Zunahme der Injektionseffizienz überlagert ist.
Die absoluten Werte der internen Quanteneffizienz mit einem Maximum von 71% für die Diode mit einer EL-Leistung von 6,6 mW bei 40 mA und 400 nm können wieder mit den Ergebnissen aus dem ThinGaN®-Prozess verglichen werden (vgl. Abschnitt 6.2.3). Die zur dort prozessierten Probe mit einer strahlenden Ausbeute von 29% bei 40 mA vergleichbare LED-Struktur auf Saphir zeigte im Pt-Schnelltest eine EL-Leistung von 4,3 mW. Aufgrund der ähnlichen Auskoppeleffizienz von LED-Strukturen auf Saphir und ULD wird die strahlende Ausbeute für die LED-Struktur auf ULD zu $\eta_{\mathrm{RE}} = 6,6\,\mathrm{mW}/4,3\,\mathrm{mW} \times 29\% = 45\%$ bestimmt.

Die interne Quanteneffizienz η_{IQE} aus der temperaturabhängigen Photolumineszenz ist damit deutlich höher als die strahlende Ausbeute ($\eta_{\mathrm{RE}} = \eta_{\mathrm{inj}} \times \eta_{\mathrm{IQE}}$), woraus die Injektionseffizienz bestimmt werden könnte. Für die Diode mit maximaler EL-Leistung ergäbe sich die Injektionseffizienz zu etwa $45\%/71\% = 63\%$. Die gleiche Berechnung ergibt für die langwelligste Diode einen Wert von 72% und könnte so das leichte Ansteigen der aus der $P(I)$-Kennlinie bestimmten interne Quanteneffizienz für die langwelligste Diode dadurch erklären, dass die Injektionseffizienz stärker ansteigt und dies im Modell als früheres Einsetzen der strahlenden Rekombination gegenüber der nichtstrahlenden fehlinterpretiert wird.
Dies ist allerdings eine sehr spekulative Betrachtung, da bisher davon ausgegangen wurde, dass die interne Quanteneffizienz bei der temperaturabhängigen Photolumineszenz einem Äquivalenzstrom von etwa 3 mA entspricht, in diesem Abschnitt jedoch dem Wert bei 40 mA gleichgesetzt wird. Allerdings ist auf der anderen Seite eine sinkende Injektionseffizienz mit geringerem In-Gehalt durchaus plausibel, da die energetische Tiefe der Quantenfilme geringer wird und so die Ladungsträger schlechter eingefangen und leichter reemittiert werden oder direkt überschießen könnten.

Diskussion

Trotz des möglichen Einflusses der Injektionseffizienz scheint die spektrale Abhängigkeit der EL-Leistung hauptsächlich auf die interne Quanteneffizienz zurückzuführen zu sein, da deren Bestimmung über die temperaturabhängige Photolumineszenz eine gute Übereinstimmung mit der EL-Leistung ergab. Um die damit verbundenen mikroskopischen Mechanismen besser zu verstehen, haben Kunzer *et al.* [155, 156] auch die spektralen Daten der temperaturabhängigen Photolumineszenz ausgewertet. Wie in der Einleitung beschrieben wurde, sinkt in binären Halbleitern die energetische Lage der Photolumineszenz-Emission mit steigender Temperatur nach der phänomenologischen Formel von Varshni (Gleichung 2.1) monoton ab. Der Verlauf der GaInN-Quantenfilm-PL der gemessenen LED-Strukturen weicht davon allerdings ab, denn es wird ein nicht-monotoner S-artiger Verlauf beobachtet, wie in Abb. 7.8(a) dargestellt wird. Die Ursache dafür sind Inhomogenitäten des Quantenfilms, wie z. B. lokale In-Gehalts- oder Quantenfilmbreiten-Variationen[1], die sich als Potentialfluktuationen auswirken und somit innerhalb eines Quantenfilms zur lateralen Lokalisierung freier Ladungsträger führen, und so die Diffusion zu nichtstrahlenden Rekombinationszentren verhindern. Die in Abb. 7.8(a) durch einen Pfeil definierte Amplitude STA (engl.: "S-type amplitude", STA) ist ein Maß für diese laterale Lokalisierung. Sie nimmt unterhalb 400 nm mit sinkender Wellenlänge ab [Abb. 7.8(b)], was durch den geringeren In-Gehalt und die damit verbundenen geringeren Potentialfluktuationen erklärt wird. Dadurch wird die Diffusion der Ladungsträger zu den Versetzungen als nichtstrahlenden Rekombinationszentren erleichtert und die interne Quanteneffizienz verringert sich. Es ist leicht ersichtlich, dass die beim Wachstum auf ULD und FS-GaN verbesserten EL-Ausgangsleistungen

[1] Weitere mögliche Ursachen für die Potentialfluktuationen wurden in Abschnitt 6.3 diskutiert.



(a) (b)

Abbildung 7.8: *(a) Photolumineszenz-Peak-Emissionswellenlänge aufgetragen über der Temperatur für drei LED-Strukturen auf ULD-Substrat mit unterschiedlicher Emissionswellenlänge bei Raumtemperatur. (b) Amplitude STA und Verschiebung ΔP_{10} aus (a) als Funktion der Emissionswellenlänge bei 300 K.*

deshalb eine Folge der Reduktion nichtstrahlender Rekombinationszentren in den Quantenfilmen sind.
Zur Erklärung des Leistungsabfalls bei langen Wellenlängen und hohen In-Gehalten muss ein anderer Mechanismus in Betracht gezogen werden. Durch die piezoelektrischen Eigenschaften der Gruppe-III-Nitrid-Verbindungshalbleiter werden mit steigendem In-Gehalt die Polarisationsfelder im Quantenfilm stärker, da die GaInN-Schicht stärker gegenüber dem GaN verspannt ist. Die direkte Folge davon ist ein zunehmender QCSE, der zur lokalen Trennung von Elektronen und Löchern im Quantenfilm führt. Durch diesen geringeren Überlapp der Elektron- und Lochaufenthaltswahrscheinlichkeiten sinkt die Rate der bimolekularen strahlenden Rekombination und damit die interne Quanteneffizienz.
Ein Maß für die piezoelektrischen Felder ist die in Abb. 7.8(a) durch einen Pfeil definierte Größe ΔP_{10}, die stark vom In-Gehalt des Quantenfilms abhängt. Es handelt sich um die energetische Verschiebung der Photolumineszenz-Emission bei Erhöhung der Anregungsleistung von 1,5 auf 150 W/mm^2, wodurch mehr freie Ladungsträger generiert werden, die das piezoelektrische Feld teilweise abgeschirmen. Aus Abb. 7.8(b) ist ersichtlich, dass ΔP_{10} mit zunehmender Wellenlänge monoton wächst und damit auch die Größe der piezoelektrischen Felder selbst. Ein Grund für die Abnahme der internen Quanteneffizienz oberhalb 400 nm kann deshalb die verstärkte räumliche Separation von Elektronen und Löchern im Quantenfilm durch piezoelektrische Felder sein.
In Abschnitt 4.3 wurde bereits auf die grenzwertigen Wachstumsbedingungen für Wellenlängen ab 420 nm mit der zu niedrigen Wachstumstemperatur, die durch das eingesetzte Trägergasgemisch mit 5% H_2 erforderlich wird, eingegangen. Sie sind

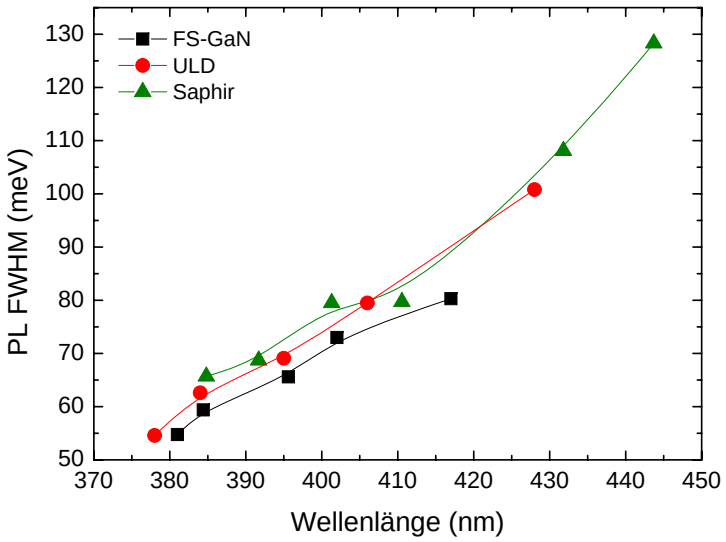
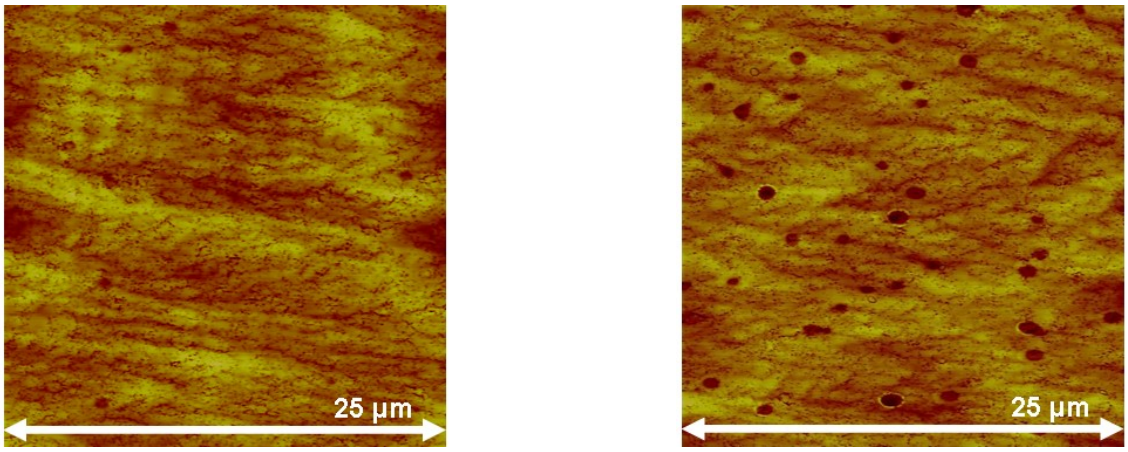


Abbildung 7.9: *Halbwertsbreiten der Raumtemperatur-Photolumineszenz-Spektren bei einer Anregungsleistungsdichte von 150 W/cm² für die LED-Strukturen auf Saphir, ULD und FS-GaN, aufgetragen über der PL-Emissionswellenlänge.*

eine weitere mögliche Ursache für den hier beobachteten Leistungsabfall bei langen Wellenlängen. Der flachere Abfall für die Serie auf FS-GaN würde damit in beiden Fällen auf eine höhere Kristallqualität des aktiven Bereichs im Vergleich zu den Strukturen auf den Saphir-basierten Substraten hindeuten.
Ein weiterer Hinweis auf eine erhöhte Qualität des aktiven Bereichs auf den defektreduzierten Substraten ist durch die Halbwertsbreite der Raumtemperatur-Photolumineszenz-Spektren gegeben, wie in Abb. 7.9 zu sehen ist.
Für alle drei Serien wird mit steigender PL-Emissionswellenlänge eine Zunahme der Linienbreite beobachtet, die allgemein auf die verstärkten Potentialfluktuationen mit steigendem In-Gehalt zurückgeführt wird, z. B. [84, 157]. Der Vergleich der Serien untereinander zeigt bei gleicher Emissionswellenlänge eine (deutliche) Abnahme der Linienbreite von Saphir über ULD zu FS-GaN. Abhängig vom Modell, welchem man folgt, bedeutet dies entweder eine geringere Neigung zu In-Gehaltsfluktuationen oder aber glattere bzw. homogenere Grenzflächen zwischen GaInN-Quantenfilm und GaN-Barriere.
Dazu haben Duxbury *et al.* [158] und Sato *et al.* [159] festgestellt, dass Versetzungen als Nukleationskeime für Phasenseparation und Entmischung im GaInN wirken können. Die größere Halbwertsbreite der GaInN-Photolumineszenz auf Saphir kann also mit der niedrigen Kristallqualität des Puffers auf Saphir erklärt werden.
Bei blau (450 nm) emittierenden Sechsfach-QW-LEDs haben Akita *et al.* [150] das Entstehen von etwa 1 - 3 μm großen nichtstrahlenden Bereichen in Kathodolumineszenz-Aufnahmen beobachtet, die bei einer QW-Breite von 3 nm keinen Einfluss auf die Lumineszenz-Eigenschaften haben, jedoch bei 5 nm QW-Breite zu einem deutlichen Sinken der Elektrolumineszenz-Ausbeute führen. Diese Bereiche entstanden beim Wachstum der p-dotierten GaN-Schicht bei hoher Temperatur und



(a) (b)

Abbildung 7.10: *AFM-Höhenbild von TQW-Teststrukturen mit Emissionswellenlängen von (a) 430 nm und (b) 450 nm.*

wurden nur bei LEDs auf Saphir-Substraten mit hoher Versetzungsdichte gefunden, nicht bei identisch gewachsenen LEDs auf FS-GaN.
Im Rahmen dieser Arbeit wurden TQW-Teststrukturen gewachsen, die statt der AlGaN-Elektronenbarriere und der p-dotierten p-Kontaktschicht nur eine 10 nm dicke GaN-Cap-Schicht auf dem aktiven Bereich haben. In Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Akita *et al.* [150] wurden bei langwelligen Proben mit Emissionswellenlängen von 430 und 450 nm für die jeweilige TQW-Teststruktur das Auftreten von solchen Defekten festgestellt, Abb. 7.10, jedoch ohne dass diese Proben einem Hochtemperatur-Wachstumsschritt ausgesetzt wurden.
An der Probe mit 450 nm Emissionswellenlänge wurde von J. Danhof und C. Vierheilig an der Universität Regensburg ein Photolumineszenz-Oberflächenscan mit hoher Auflösung im Sub-Mikrometer-Bereich (μ-PL) aufgenommen und mit der AFM-Aufnahme verglichen. Dabei konnte eine Korrelation von Bereichen mit lokal hoher Versetzungsdichte in den Bereichen der morphologischen Auffälligkeiten und damit verbundener längerer Emissionswellenlänge (also höherem In-Gehalt) hergestellt werden. Dies ist in Übereinstimmung mit den Berichten von Duxbury *et al.* [158] und Sato *et al.* [159], nach denen Versetzungen als Nukleationskeime für die Entmischung des GaInN wirken können. Ein Hinweis darauf ist auch die stark verbreiterte Linienbreite der Elektrolumineszenz-Spektren in Abb. 7.6(a) für die zwei langwelligsten LED-Strukturen auf Saphir.
Obwohl vergleichbare am IAF gewachsene Teststrukturen auf ULD oder FS-GaN nicht verfügbar sind, ist nach der Veröffentlichung von Akita *et al.* [150] anzunehmen, dass diese morphologischen Defekte im hier untersuchten Wellenlängenbereich auf ULD und FS-GaN nicht vorhanden sind. Deshalb kann davon ausgegangen werden, dass das steigende Verhältnis der EL-Leistungen zwischen Dioden auf FS-GaN und Saphir bei 430 nm auf diese Defekte zurückzuführen ist. Es ist wahrscheinlich, dass das Auftreten der morphologischen Defekte bei den in dieser Arbeit untersuchten LED-Strukturen durch das Wachstum unter 5% H_2 verstärkt wird. Grzanka *et al.*

[157] fanden z. B. eine stetige Zunahme der Quanteneffizienz für Dioden mit steigender Emissionswellenlänge zwischen 395 und 440 nm und auch unoptimierte, am IAF unter 100% N_2 gewachsene, LED-Strukturen zeigten ein Quanteneffizienz-Maximum bei 450 nm, siehe Abschnitt 4.3.

In Übereinstimmung mit der Literatur wird also im kurzwelligen Emissionswellenlängenbereich die Effizienz durch Verwendung der defektreduzierten Substrate gesteigert, da die Versetzungen als nichtstrahlende Rekombinationszentren wirken und der sinkende In-Gehalt eine Lokalisierung der Ladungsträger zunehmend verhindert, siehe z. B. [160, 161, 142]. Im hier betrachteten langwelligen Bereich (>420 nm) dagegen ist die Leistungssteigerung auf die gesteigerte Qualität des GaInN-Quantenfilms zurückzuführen, bei dessen Wachstum Versetzungen als Nukleationskeime für morphologische Defekte wirken und so die interne Quanteneffizienz auf Saphir verringern.

7.2.2. Stromdichteabhängigkeit der Quanteneffizienz

Nach der elektro-optischen Charakterisierung im letzten Abschnitt bei einem konstanten Strom von 40 mA ist in Abb. 7.11 die externe Quanteneffizienz über der Stromstärke für die drei Wellenlängenserien aufgetragen.

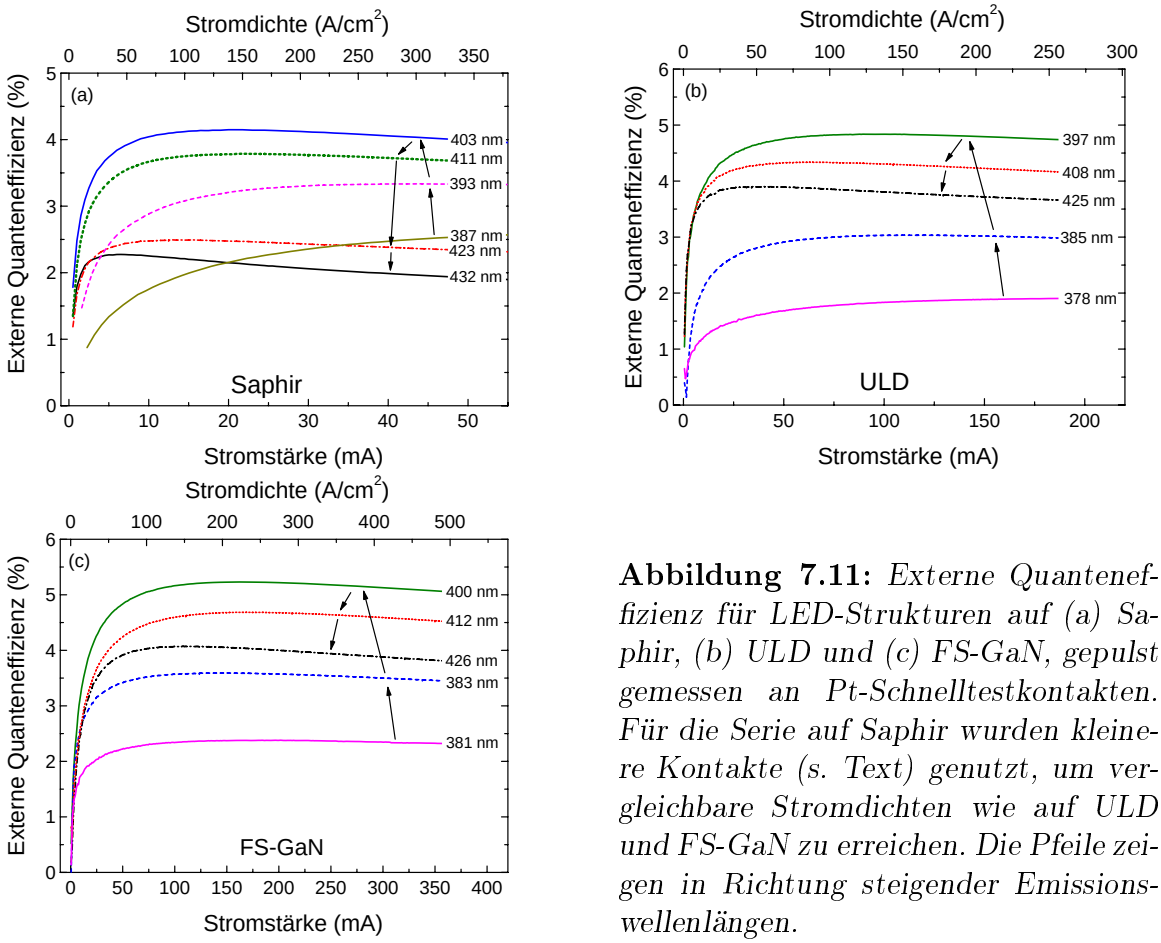
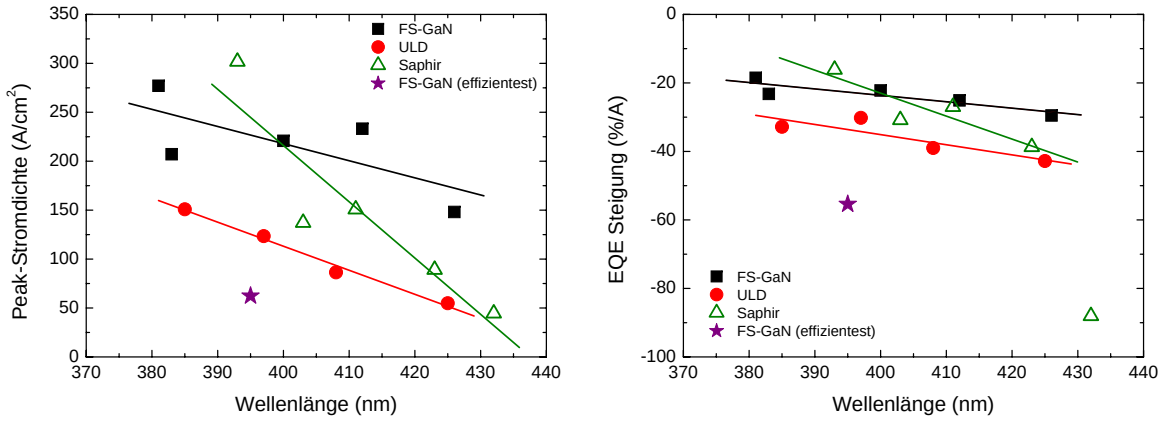


Abbildung 7.11: *Externe Quanteneffizienz für LED-Strukturen auf (a) Saphir, (b) ULD und (c) FS-GaN, gepulst gemessen an Pt-Schnelltestkontakten. Für die Serie auf Saphir wurden kleinere Kontakte (s. Text) genutzt, um vergleichbare Stromdichten wie auf ULD und FS-GaN zu erreichen. Die Pfeile zeigen in Richtung steigender Emissionswellenlängen.*

Bei der Messung der Serien auf ULD und FS-GaN wurden die Schnelltest-Kontakte



(a) (b)

Abbildung 7.12: *Die Peak-Stromdichte (a) und Steigung (b) der externen Quanteneffizienz aufgetragen über der Emissionswellenlänge für die Kurvenverläufe aus Abb. 7.11. Die Linien dienen zur Verdeutlichung von Trends. Zusätzlich sind die Werte der effizientesten LED-Struktur auf einem FS-GaN Substrat der 2. Charge eingetragen.*

mit 270 μm Kantenlänge ausgewählt, auf Saphir die mit 120 μm. Da die aufgedampften Schnelltestkontakte keine Mesa-Strukturierung haben, ist die Bestimmung der Stromdichte mit einer gewissen Ungenauigkeit behaftet und die Quanteneffizienzen daher über der Stromstärke aufgetragen.
Die Auswertung des Kurvenverlaufs hinsichtlich der Peak-Stromdichte und Steigung wird in Abb. 7.12 dargestellt. Die große Streuung der Messwerte für die Serien auf Saphir und FS-GaN ist vermutlich bei ersterem auf die Messung der kleineren Kontakte zurückzuführen, bei denen die Unschärfe der Kanten, die durch das Bedampfen mit einer Schattenmaske entstehen, schwerer ins Gewicht fällt als bei großen Kontaktflächen. Bei zweiterem variieren die Wachstumsbedingungen (bei FS-GaN-Substraten) deutlich über den Wafer, was sich neben der Wellenlänge auch noch in anderen Parametern wie z. B. der QW-Breite auswirken könnte.
Die Peak-Stromstärke der externen Quanteneffizienz für die kurzwelligste Diode der Saphirserie war nicht auswertbar, weil selbst bei der Messung des kleinsten Schnelltestkontakts ($\approx$ 45 μm Kantenlänge) die zum Überrollen notwendige Stromdichte nicht erreicht werden konnte. Bei einer Wellenlänge um 400 nm zeigt die Serie auf Saphir mit 300 $\mathrm{Acm^{-2}}$ das späteste Überrollen, danach die Dioden auf FS-GaN mit etwa 200 - 250 $\mathrm{Acm^{-2}}$ und schließlich ULD mit 125 $\mathrm{Acm^{-2}}$. Die zum Vergleich gezeigte bisher effizienteste LED auf einem FS-GaN Substrat (2. Charge) zeigt das Überrollen bei 62 $\mathrm{Acm^{-2}}$. Bei allen drei Serien sinkt die Peak-Stromstärke I_{max} mit zunehmender Wellenlänge. Dabei ist die Abnahme der Peak-Stromstärke I_{max} mit steigender Wellenlänge für Saphir am höchsten und für FS-GaN am geringsten. Der Wert für ULD liegt dazwischen.
Ein sehr ähnliches Bild findet sich in Abb. 7.12(b) für die Steigung des Effizienzabfalls bei Überschreiten der Peak-Stromdichte. Bei 400 nm ist die negative Steigung auf

Saphir mit -16 %/A am geringsten, gefolgt von FS-GaN und ULD mit etwa -22 %/A bzw. -30 %/A. Die LED-Struktur auf FS-GaN der 2. Charge zeigt -55%/A. Mit steigender Wellenlänge nimmt der Betrag der negativen Steigung zu, dabei ist die Veränderung, analog zur Peak-Stromstärke, für Saphir am ausgeprägtesten und für FS-GaN am geringsten. Die stärkere relative Änderung der Saphirserie führt dazu, dass im langwelligen Bereich ($> 430\,\mathrm{nm}$) die Diode auf Saphir die niedrigste Peak-Stromdichte und die deutlich höchste negative Steigung zeigt.

Diskussion

Im kurzwelligen Bereich bestätigt sich die Erwartung, dass die Dioden mit geringerer Defektdichte früher und ausgeprägter Überrollen (vgl. Abschnitt 7.1), nur bedingt. Die Serie auf FS-GaN mit der niedrigsten Defektdichte von $4 \cdot 10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ liegt mit den Werten zwischen Saphir und ULD, die effizienteste LED auf FS-GaN jedoch zeigt ein deutlich früheres Überrollen. Dass die Dioden auf Saphir bei längeren Wellenlängen bei geringster Stromdichte überrollen, deutet auf eine Änderung der Materialeigenschaften oder des Überroll-Mechanismus hin.
Unter dem Aspekt der grenzwertigen Materialqualität bei langen Wellenlängen aufgrund des eingesetzten 5%igen H_2/N_2-Trägergasgemisches und der niedrigen Wachstumstemperatur ist die Änderung der Kristallqualität als Ursache dieses Verhaltens wahrscheinlich. Die Tatsache, dass die Änderung auf Saphir am stärksten und auf FS-GaN am geringsten ausgeprägt ist, spricht dafür, dass die Versetzungsdichte einen Einfluss auf den relevanten Mechanismus hat.
Auch Cao *et al.* [161, 162] haben das Verhalten des Leistungsabfalls über der Emissionswellenlänge und Versetzungsdichte untersucht. In Übereinstimmung mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit sinkt mit zunehmendem In-Gehalt die Stromdichte, ab der die Quanteneffizienz überrollt [162]. Sie finden eine deutliche Steigerung der internen Quanteneffizienz für 405-nm-LEDs auf FS-GaN im Vergleich zu Saphir, mit einem leicht reduzierten Leistungsabfall bei hohen Stromdichten im Vergleich zur LED auf Saphir [161]. Hingegen bei 465-nm-LEDs zeigt sich bei geringen Stromdichten eine höhere interne Quanteneffizienz für die LED auf Saphir verbunden mit einem starken nicht-thermischen Überrollen. Die blaue LED auf FS-GaN, mit einem nur schwachem Überrollen, ist ab Stromdichten von etwa $20\,\mathrm{Acm}^{-2}$ effizienter als die auf Saphir.
Den Mechanismus, der für das Überrollen der LEDs verantwortlich ist, sehen sie im Auffüllen bzw. Überlaufen von lokalisierten Zuständen, wodurch die Ladungsträger nichtstrahlende Rekombinationszentren erreichen können. Durch den Vergleich der verschiedenen Versetzungsdichten schlossen sie, dass nicht die Versetzungen als nichtstrahlende Zentren wirken, sondern Gitterfehlanpassungs-Defekte zwischen den GaN-Barrieren und dem GaInN-Quantenfilm. Durch den höheren In-Gehalt bei längeren Wellenlängen besteht eine höhere Gitterfehlanpassung, wodurch sich die Zunahme des Leistungsabfalls durch eine erhöhte Defektanzahl erklärt.
Auch Akita *et al.* [150] sehen die Rekombination an Defekten als Grund für das Abfallen der externen Quanteneffizienz von LEDs, die bei 450 nm emittieren. Sie konnten durch den Einsatz von FS-GaN-Substraten und 5 nm breiten Quan-

tenfilmen, die bei gleichen Wellenlängen emittieren wie die Vergleichs-LEDs mit 3 nm Quantenfilm-Breite und deshalb einen niedrigeren In-Gehalt von etwa 10% statt 14% haben, eine deutliche Abschwächung des nicht-thermischen Überrollens und eine höhere Quanteneffizienz erreichen. Sie erklären diese Verbesserung der Hochstromeffizienz durch die Reduktion von nichtstrahlenden Defekten, die aus dem geringeren In-Gehalt der 5 nm breiten Quantenfilme resultiert. Allerdings war es nur auf FS-GaN möglich, Quantenfilme mit 5 nm Breite und guter Qualität zu wachsen, da auf Saphir morphologische Defekte auftraten.
Die experimentellen Ergebnisse von Cao *et al.* und Akita *et al.* stimmen mit den in dieser Arbeit vorgestellten überein. Auch die Korrelation des nicht-thermischen Überrollens mit nichtstrahlender Rekombination an Defekten ist mit unseren Ergebnissen gut vereinbar, da unsere LED-Strukturen mit langen Emissionswellenlängen zunehmend morphologische Defekte aufweisen, wie schon in Abb. 7.10 und der Diskussion auf Seite 111 dargelegt. Cao *et al.* haben zwar für die Entstehung der Defekte durch höhere Gitterfehlanpassung einen etwas anderen Ansatz, als die von uns gefundene zu geringe Wachstumstemperatur, jedoch steht dies in keinem Widerspruch, sondern kann als verstärkender Effekt mit in unsere Erklärung einbezogen werden.
Schubert *et al.* [142] sehen beim Vergleich von Dioden auf Substraten mit unterschiedlicher Versetzungsdichte ebenfalls keinen Zusammenhang zwischen Versetzungsdichte und Ursache des Überrollens, sondern postulieren das Entweichen von Ladungsträgern aus dem aktiven Bereich durch Grenzschicht-Ladungen, die durch die piezoelektrischen Felder und die unterschiedlichen spontanen Polarisationen beim Übergang GaN-Barriere zu GaInN-Quantenfilm oder AlGaN-Elektronenbarriere entstehen, siehe Abschnitt 2.2. Eine geringere Versetzungsdichte führte zu einem Überrollen bei geringeren Stromdichten und einer höheren maximalen internen Quanteneffizienz, analog zu den Ergebnissen in dieser Arbeit in Abschnitt 7.1.1. Auch Schubert *et al.* konnten ihre Ergebnisse im Rahmen des Ratengleichungsmodell durch einen geringeren nichtstrahlenden Koeffizienten A für die Shockley-Read-Hall Rekombination beschreiben, wobei sie statt des Auger-Terms Cn^3 einen Term mit unbekannter Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte verwendeten. Es ist an dieser Stelle anzumerken, dass über die Anwendbarkeit des Ratenmodells keine Unterscheidung zwischen einem Auger-Effekt oder einem anderen stark von n-abhängigen Ladungsträgerverlust-Mechanismus getroffen werden kann, da die Cn^3-Abhängigkeit auch nur eine Vereinfachung für die Beschreibung des Auger-Effekts ist, wie Hader *et al.* darlegt [145].

Zusammenfassend ist also sowohl der Trend eines früheren Überrollens mit steigender Emissionswellenlänge in Übereinstimmung mit der Literatur [163], als auch das frühere Einsetzen des Überrollens mit reduzierter Versetzungsdichte, wie es bei den LED-Strukturen in dieser Arbeit um und unter 400 nm und von Schubert *et al.* [142] bei 440 nm beobachtet wurde. Der Grund für das frühere Überrollen sind reduzierte nichtstrahlende Rekombination und Leckströme, die bei gleicher Stromdichte zu einer höheren Anzahl an, in den aktiven Bereich injizierten, Ladungsträgern führen und dadurch die für den Einsatz des Überrollens notwendige Ladungsträgerdichte bei geringeren Stromdichten erreichen. Dabei ist zu beachten, dass dieses Verhalten nur

für die LEDs auf FS-GaN der zweiten Charge gilt, die LEDs auf FS-GaN der vierten Charge jedoch ein späteres Überrollen als ULD zeigen.
Eine vor dieser Arbeit nicht systematisch untersuchte Abhängigkeit ist die stärkere Zunahme des nicht-thermischen Überrollens mit zunehmender Wellenlänge für LEDs mit hoher Defektdichte gegenüber denen mit geringerer Defektdichte, Abb. 7.12. Dabei zeigen auch die FS-GaN Substrate der vierten Charge eine geringere Abhängigkeit der charakteristischen Parameter des Leistungsabfalls von der Wellenlänge als die LEDs auf ULD und Saphir, was auf eine Korrelation der Ursache des Überrollens mit Versetzungen schließen lässt. Aufgrund der stärkeren Wellenlängenabhängigkeit zeigen die LED-Strukturen auf Saphir bei 430 nm ein früheres Überrollen als die Dioden auf ULD oder FS-GaN, was in Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Cao *et al.* [161] ist.

Fazit

Ausgehend von dieser Abhängigkeit erscheint ein Auger-artiger Effekt oder der Ladungsträgerverlust durch die piezoelektrischen Felder unwahrscheinlich, ein Überlaufen von Lokalisierungszuständen der Ladungsträger mit darauf folgender Defektrekombination im Quantenfilm jedoch plausibel: Im vorhergehenden Abschnitt wurde gezeigt, dass die kristalline Qualität beim Wachstum von GaInN-Quantenfilmen auf defekt-reduzierten Substraten zu höheren In-Gehalten hin besser ist als auf Saphir. Folglich ist die Anzahl der nichtstrahlenden Rekombinationszentren bei hohem In-Gehalt auf FS-GaN und ULD niedriger und das nicht-thermische Überrollen weniger ausgeprägt.

7.3. Vergrößerung des optisch aktiven Volumens: Quantenfilm-Breiten-Serie

Im letzten Abschnitt wurde der Einfluss eines variierenden In-Gehalts der Quantenfilme auf die Effizienz von GaInN-basierten LED-Strukturen untersucht und als mögliche Ursache des nicht-thermischen Überrollens das Überlaufen von Lokalisierungszentren festgestellt. In diesem Abschnitt wird der Aufbau, genauer die Quantenfilm-Breite des aktiven Bereichs, variiert, wobei der In-Gehalt der Quantenfilme mit 9% konstant bleibt. Motivation dazu sind unseren bisherigen Ergebnissen widersprechende Veröffentlichungen, dass das nicht-thermische Überrollen von einem Auger-artigen Effekt verursacht wird. Wie in Abschnitt 6.4 beschrieben wird, führt eine Verringerung der Ladungsträgerdichte n bei gegebener Stromdichte zu einer Verringerung der Verluste durch den Auger-Effekt. Dies wurde erfolgreich von Forschungsgruppen bei den LED-Herstellern Osram OS und Philips-Lumileds durch die Vergrößerung des optisch aktiven Volumens gezeigt [122, 144, 152]. Im Gegensatz zu der Interpretation von Akita *et al.* [150] (siehe Diskussion vorhergehender Abschnitt) lassen sich auch deren Ergebnisse, eine Reduktion des nicht-thermischen Überrollens durch Verdopplung des aktiven Volumens, unter dem Aspekt eines Auger-artigen Effektes erklären. Eine weitere wichtige Erkenntnis war, dass das

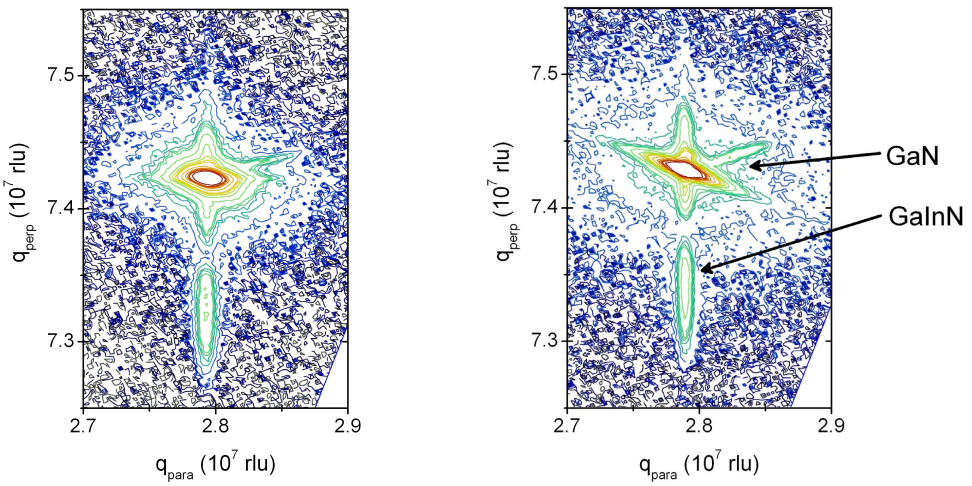
Wachstum von 5 nm breiten Quantenfilmen nur auf FS-GaN und nicht auf Saphir zu hoher Quanteneffizienz führt.
Um den Zusammenhang zwischen Versetzungsdichte, optisch aktivem Volumen und dem nicht-thermischen Überrollen besser zu verstehen, wurde deshalb eine Matrix von je vier Einfach-Quantenfilm-LED-Strukturen mit unterschiedlichen Quantenfilm-Breiten von 3, 6, 11 und 18 nm auf Saphir, ULD und FS-GaN gewachsen. Da bei einer Breite der emittierenden Schicht > 10 nm keine Quantisierungseffekte aufgrund des Ladungsträger-Einschlusses durch die Heteroübergänge GaN-GaInN mehr auftreten, ist es richtiger für diese Proben von einer Doppelheterostruktur (DH) zu sprechen.
Die Schichtstrukturen wurden auf den drei Substraten identisch gewachsen, wobei sich durch die Verbreiterung der GaInN-Schicht auch ein breiterer aktiver Bereich ergibt. Es war notwendig den aktiven Bereich beim Wachstum auf ULD und FS-GaN statt bei 775°C wie auf Saphir-Substraten bei 788°C zu wachsen, um den Temperaturunterschied, der durch die hohe Waferbiegung von ULD und FS-GaN-Substraten verursacht wird, auszugleichen. Für die Serie auf FS-GaN wurden Substrate der 4. Charge mit polierten Rückseiten verwendet.

7.3.1. Kristallqualität der Proben

Hochaufgelöste Röntgenbeugung

Wie in Abschnitt 2.1 erläutert wurde, existiert beim Wachstum einer Schicht mit zum Substrat bzw. zur unterliegenden Schicht verschiedenen in-plane Gitterparametern eine kritische Schichtdicke, ab der die aufwachsende Schicht unter Bildung von Fehlanpassungsversetzungen oder Rissen relaxiert. In der Literatur finden sich für einen In-Gehalt um 10% Werte zwischen 10 nm [164] und über 100 nm [165, 166] für die kritische Schichtdicke. Um eine mögliche Relaxation des GaInN festzustellen, wurden reziproke Gitterkarten des 10.5 HRXRD-Reflexes an den LEDs mit 18 nm breiten DH-Strukturen aufgenommen. Für Saphir und FS-GaN sind diese in Abb. 7.13 dargestellt.
Der GaInN-Peak liegt für beide Substrate auf einer vertikalen Linie mit dem GaN-Peak. Das bedeutet, dass die GaInN-Schicht voll verspannt auf der GaN-Unterlage aufgewachsen ist und keine Relaxation auftritt. Da bei den anderen LED-Strukturen schmalere GaInN-Schichtdicken verwendet werden, kann davon ausgegangen werden, dass auch diese voll verspannt sind.
Der In-Gehalt von 9% wird sowohl durch die Auswertung der reziproken Gitterkarten als auch von ω-2θ-Scans am 00.2 Reflex (nicht gezeigt) bestätigt. Die $\Delta\omega$-Halbwertsbreite des 10.5 Reflexes kann aus den reziproken Gitterkarten extrahiert werden und ergibt $\Delta\omega = 177''$ für GaN auf Saphir und $\Delta\omega = 175''$ für das FS-GaN-Substrat. Dabei muss beachtet werden, dass der Wert für FS-GaN durch die Waferbiegung verfälscht sein kann[2]. Obwohl der Unterschied der Halbwertsbreiten der GaN-Peaks nur gering ausfällt, bestätigen die reziproken Gitterkarten eine deutlich höhere Materialqualität für die auf FS-GaN gewachsene Doppelheterostruktur.

[2]Da ULD-Substrate eine noch stärkere Verbiegung aufweisen, wird hier keine Auswertung der Werte für die 18 nm DH-Struktur auf ULD angegeben.



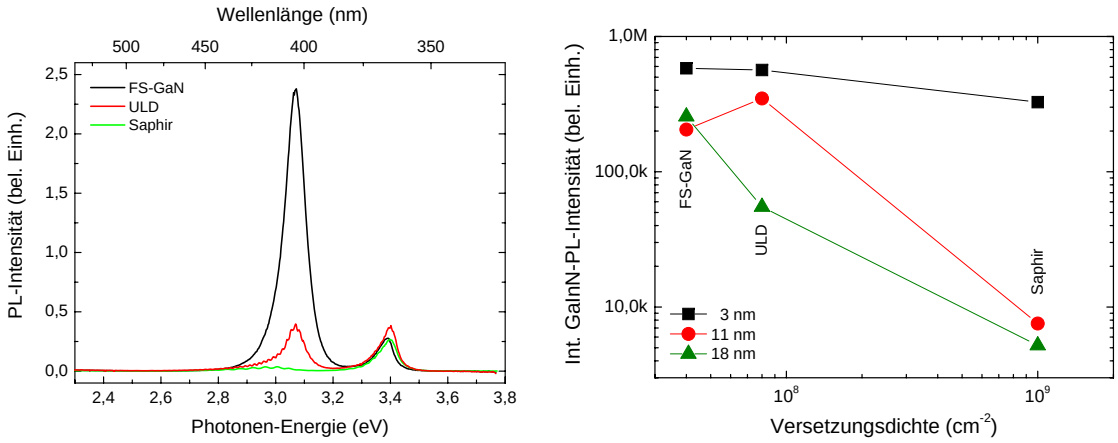
(a) (b)

Abbildung 7.13: *Reziproke Gitterkarten des 10.5 HRXRD-Reflexes von LED-Strukturen mit einer 18 nm breiten Doppelheterostruktur als aktiver Schicht, aufgewachsen auf (a) Saphir und (b) FS-GaN-Substrat.*

Die Halbwertsbreite des 10.5 Reflexes verringert sich von $\Delta\omega = 245''$ für die GaInN-Schicht auf Saphir auf $\Delta\omega = 174''$ für die Schicht auf FS-GaN. Auch dieser Wert muss jedoch aufgrund der Waferbiegung als oberer Grenzwert für die Linienbreite angesehen werden, so dass die reale Steigerung der Kristallqualität noch höher sein kann.

Photolumineszenz-Spektroskopie

Die deutlich höhere Qualität der GaInN-Schichten auf defektreduzierten Substraten ist auch bei der Photolumineszenz-Spektroskopie zu beobachten. Abbildung 7.14(a) vergleicht die Photolumineszenz-Spektren bei Raumtemperatur der LED-Strukturen mit 18 nm breiten Doppelheterostrukturen auf Saphir, ULD und FS-GaN.
Die PL-Emission von der GaN-Barriere und den GaN-Kontaktschichten ist für alle drei Proben bei 3,40 eV zu sehen und zeigt für Saphir und FS-GaN vergleichbare PL-Effizienz, für die Probe auf ULD eine etwas höhere. Der Peak der GaInN-Emission ist bei 2,96 eV für die Probe auf Saphir und bei 3,07 eV für diejenigen auf ULD und FS-GaN zu beobachten. Die zugehörigen Halbwertsbreiten sind 146 meV für Saphir und 63 bzw. 76 meV für ULD und FS-GaN. Die GaN-Emission dominiert das Spektrum bei der Probe auf Saphir, die Probe auf ULD zeigt vergleichbare PL-Effizienz für die GaN-Schichten und den GaInN-Film, und die Emission aus dem GaInN-Film dominiert bei der Probe auf FS-GaN.
Die integrierte GaInN-PL-Intensität der Proben mit 3, 11 und 18 nm dicker aktiver Schicht ist in Abb. 7.14(b) dargestellt. Die PL-Intensität der Proben mit 3 und 18 nm sinkt mit steigender Versetzungsdichte. Während das Verhältnis der Intensitäten auf Saphir und FS-GaN für die 3 nm breiten QW-Strukturen etwa 2 ist, beträgt der Faktor bei den 18 nm breiten Dopppelheterostrukturen etwa 50. Bei den Proben mit 11 nm



(a) (b)

Abbildung 7.14: *(a) Photolumineszenz-Intensität bei einer Anregungsleistungsdichte von 150 W/cm² und Raumtemperatur, aufgetragen über der Photonenenergie für LED-Strukturen mit 18 nm DH-Breite auf Saphir, ULD und FS-GaN. (b) Integrierte PL-Intensität der GaInN-Emission von LED-Strukturen mit 3, 11 und 18 nm QW-/DH-Breite aufgetragen über der Versetzungsdichte der Proben.*

DH-Breite zeigt sich allerdings kein kontinuierlich sinkender Verlauf der GaInN-PL-Intensität mit der Versetzungsdichte, die maximale Intensität liefert die Probe auf ULD. Die Intensität der Probe auf ULD und FS-GaN ist dabei etwa 50 bzw. 30 mal höher als die der Probe auf Saphir.
Sowohl das Verhältnis von GaInN-Schicht- zu GaN-Schicht-Emission wie auch die integrierte GaInN-PL-Intensität zeigen die beachtliche Steigerung der Lumineszenz-Effizienz bei sinkender Defektdichte. Damit ist die über Röntgenbeugung beobachtete gesteigerte Kristallqualität vor allem der GaInN-Schicht bestätigt. Bei den breiten Doppelheterostrukturen scheint die GaInN-Schichtdicke, die die höchste PL-Effizienz zeigt, von der Versetzungsdichte abzuhängen, mit 11 nm beim Wachstum auf ULD und 18 nm für die LED-Strukturen bei FS-GaN.

7.3.2. Elektrolumineszenz-Charakteristik

Simulation mit SiLENSe

Zum besseren Verständnis der experimentellen Ergebnisse der elektrooptischen Charakterisierung an den LED-Strukturen der Quantenfilm-Breiten-Serie werden an mehreren Stellen dieses Kapitels Vergleiche mit simulierten Ergebnissen angestellt. Zur Simulation wurde das Softwaremodul SiLENSe des SimuLED Pakets der Firma STR Group genutzt.
SiLENSe simuliert auf Basis der eingegebenen Schichtabfolge über Lösung der Poisson-Gleichung in z-Richtung den Bandverlauf, wobei die spontane wie auch die piezoelektrische Polarisation der Gruppe-III-Nitrid-Verbindungshalbleiter mit einbezogen werden. Dabei kann der Relaxationsgrad der einzelnen Schicht separat definiert werden. Auf Basis des errechneten Bandverlaufs wird der Ladungsträgertransport

über ein Drift-Diffusions-Modell simuliert. Über Kontinuitätsgleichungen fließt dabei die Ladungsträger-Rekombinationsrate ein, die auf Basis eines Ratenmodells bestimmt wird. Dieses unterscheidet sich zu dem in Abschnitt 6.3.1 gegebenen nur in der getrennten Einbeziehung von Elektronen- (n) und Lochladungsträgerdichte (p) mit den jeweiligen Ladungsträgereigenschaften. Die nichtstrahlenden Koeffizienten A für SRH-Rekombination und C für Auger-ähnliche Rekombination werden dazu getrennt für die jeweiligen Ladungsträger vom Anwender selbst definiert. Mit Hilfe dieses Ratenmodells lässt sich so der Verlauf der strahlenden Ausbeute über der Stromdichte $\eta_{\mathrm{RE}}(j)$ simulieren, was jedoch selbst an einfachen Probenserien keine zufriedenstellende Übereinstimmung mit experimentellen Kurven ergeben hat. Deshalb wurde im Folgenden auf die Simulation von $\eta_{\mathrm{RE}}(j)$ mittels SiLENSe verzichtet.
In einem nachgeschalteten optischen Zusatzmodul können die Wellenfunktionen der Ladungsträger im Quantenfilm und die Emissionsspektren der LED-Struktur berechnet werden. Dazu werden im Bereich des Quantenfilms die Schrödinger-Gleichungen in Effektiver-Masse-Näherung für Elektronen und Löcher gelöst, wobei der Bandverlauf diesmal selbst-konsistent als Lösung der gekoppelten Poisson-Gleichung mit dem Drift-Diffusion-Modell berechnet wird. Dies bedeutet Iteration bis zum Erreichen eines stabilen Gleichgewichts, um folgendem Problem gerecht zu werden: die sich aus dem Bandverlauf und dem Drift-Diffusions-Modell ergebende Verschiebung von Ladungsträgern hat direkten Einfluss auf die Ladungsverteilung, aus der wiederum durch Lösung der Poisson-Gleichung der Bandverlauf entsteht.
Zur Berechnung des Spektrums wird ausschließlich der strahlende Rekombinationskanal zwischen im Quantenfilm eingeschlossenen Elektron- und Lochniveaus betrachtet, andere Kanäle wie die Rekombination von freien oder an Dotierstoffen gebundenen Ladungsträgern werden vernachlässigt. Aus dem Überlapp der Elektron- mit den Lochwellenfunktionen und der Besetzung der Energieniveaus wird dann die Intensität der einzelnen Übergänge berechnet und die Summe als Emissionsspektrum ausgegeben. Im Gegensatz zur vorher beschriebenen Simulation von $\eta_{\mathrm{RE}}(j)$ werden bei der Berechnung des Emissionsspektrums Einflüsse durch den Einschluss der Ladungsträger im Quantenfilm, wie der QCSE, mitberücksichtigt.

Elektrische Charakterisierung

Die Probenmatrix wurde erst ausführlich mit Pt-Schnelltestkontakten charakterisiert und zu einem späteren Zeitpunkt als Mesa-LEDs mit NiAu-p-Kontakten prozessiert. Abbildung 7.15 vergleicht die $I(U)$-Kennlinien der 3-nm-LED-Strukturen auf Saphir, ULD und FS-GaN. Der Leckstrom unter Sperrspannung I_{R} liegt bei -5 V für die SQW-LED auf FS-GaN bei ca. 300 pA. Für die SQW-LED auf ULD und auf Saphir werden $I_{\mathrm{R}} = 29$ nA gemessen. In Vorwärtsrichtung zeigt sich bis etwa 2,5 V ein Leckstrom I_{L}, der bei 1,5 V für die Probe auf Saphir 52 nA, für ULD und FS-GaN 2 nA beträgt. Bei Spannungen $> 2{,}5$ V steigt der Diodenstrom exponentiell an, bevor er durch die seriellen Widerstände (Kontaktwiderstände, Bahnwiderstände n- und p-Seite) ohmsches Verhalten zeigt und schließlich bei 40 mA die Strombegrenzung erreicht. Die Spannung bei 40 mA beträgt für die LED auf Saphir 4,1 V, für die LED auf ULD bei 4,9 V und für die Diode auf FS-GaN 4,4 V.
Die Leckströme der Dioden auf FS-GaN sind um 1 bis 2 Größenordnungen gerin-

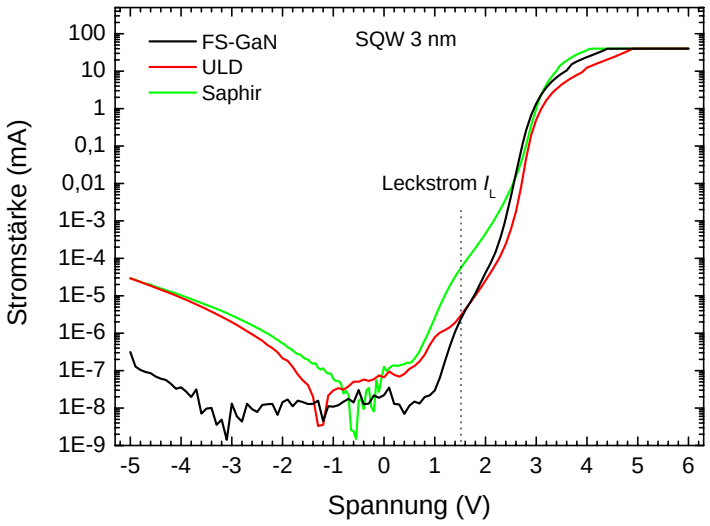


Abbildung 7.15: *$I(U)$-Kennlinien von Mesa-SQW-LEDs mit 3 nm QW-Breite im NiAu-Prozess auf Saphir, ULD und FS-GaN.*

ger als die der Dioden auf ULD und Saphir. Sowohl Cao *et al.* [161, 167] als auch Ferdous *et al.* [168] berichten ähnliche Ergebnisse bei der Variation der Versetzungsdichte. Durch temperaturabhängige EL-Messungen schlossen Cao *et al.* [167], dass die Leckströme ihrer LED auf Saphir über einen Tunnel-Prozess ablaufen. Gleichzeitig fanden sie auch Schrauben- und gemischte Versetzungen als elektrisch aktive Leckpfade. Ferdous *et al.* [168] sehen einen exponentiellen Anstieg des Rückwärtsstroms mit der Versetzungsdichte und schlossen auf einen Ladungsträger-Hopping-Prozess über Defektzustände entlang der Versetzungslinien.
Aus der Konsistenz der Leckströme I_L der vorliegenden Arbeit mit den Ergebnissen von Cao *et al* [167], die bei Dioden auf FS-GaN bis 2,6 V einen dominierenden Tunnelstrom und darüber einen exponentiellen Diodenstrom berichten, können Rückschlüsse auf den Ladungsträgertransport-Mechanismus geschlossen werden. Sie können den Diodenstrom auf FS-GaN mit einem klassischen Drift-Diffusions-Modell beschreiben, während sie auf Saphir auch in Vorwärtsrichtung von defektassistiertem Tunneln ausgehen. Als Maßzahl dafür dient der Idealitätsfaktor n_i, der aus der Shockley-Gleichung $I = I_0 \exp(qV/n_\mathrm{i}k_\mathrm{B}T)$ bestimmt werden kann. Er liegt bei allen in der vorliegenden Arbeit untersuchten Dioden zwischen 2,4 und 3,3 und kann damit nicht mit dem klassischen Drift-Diffusions-Modell, welches Idealitätsfaktoren zwischen 1,0 und 2,0 erfordert, beschrieben werden, sondern deutet auf Tunnelprozesse hin.
In Rückwärtsrichtung zeigen die Proben auf ULD entgegen der Erwartung nahezu gleich hohe Leckströme I_R wie die Proben auf Saphir. Eine mögliche Fehlerquelle könnte in der Prozessierung der Strukturen liegen, da die hohe Waferbiegung Ungenauigkeiten, zum Beispiel der optischen Kontaktlithographie, verursacht. Eine weitere Möglichkeit sind Defektzustände oder *Traps* als Leckpfade im aktiven Bereich, auf die die Verschiebung des Stromstärken-Minimums in Richtung $U < 0$ hindeutet, siehe dazu auch Abschnitt 6.2.2.
Der Vergleich der $I(U)$-Kennlinien der 3 nm breiten Quantenfilm-LEDs mit denen der 18 nm breiten ist in Abbildung 7.16 gegeben. Besonders für die LEDs auf Saphir ist

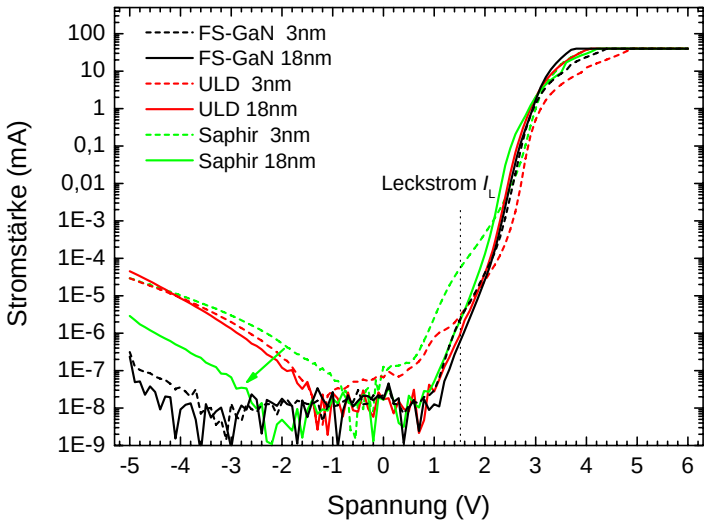


Abbildung 7.16: *$I(U)$-Kennlinien von SQW-LEDs im NiAu-Prozess auf Saphir, ULD und FS-GaN mit 3 und 18 nm breiten GaInN-Schichten.*

ein deutlicher Rückgang der Leckströme zu beobachten, mit der Reduktion des Rückwärtsstroms I_R und des Leckstroms I_L um eine Größenordnung. Auch die LEDs auf FS-GaN zeigen niedrigere Leckströme beim Übergang von 3 nm QWs zu 18 nm Doppelheterostrukturen, allerdings ist der Effekt, wegen der schon niedrigen Leckströme bei 3 nm QWs, hier gering. Auf ULD-Substrat ist in Vorwärtsrichtung eine deutliche Verringerung des Leckstroms I_L, nicht jedoch des Rückwärtsstroms I_R, zu finden. Dies ist kein singulärer Effekt, da auch prozessierte TQW-LED-Strukturen auf ULD (nicht gezeigt) sehr ähnliche Kennlinien wie die hier gezeigte 18 nm DH-Struktur aufweisen. Allgemein lässt sich daraus schließen, dass ein vergrößerter Abstand von p- zu n-Dotierung zu einer Verminderung von Leckströmen führen kann. Dies gilt zumindest für die hier betrachteten Abstände, die für die 3-nm-Strukturen etwa 18 nm betragen und für die 18-nm-Struktur 33 nm.

Spektrale Charakterisierung

In diesem Abschnitt wird der Einfluss der QW-Breiten-Variationen auf die Emissionsspektren der LED-Strukturen untersucht. Abbildung 7.17 zeigt die Emissionswellenlängen der effizientesten Dioden auf dem jeweiligen Wafer bei einer Stromdichte von 36 Acm^{-2}, was 20 mA entspricht.
Durch den konstanten In-Gehalt und die verschiedenen QW-Breiten zeigen die Proben einer Serie unterschiedliche Emissionswellenlänge, weil bei QW-Breiten im Bereich der de-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger Quantisierungseffekte auftreten. Dieser Effekt ist für QW-Breiten unterhalb 6 nm ausgeprägt. Um die Abhängigkeit von der QW-Breite zu verdeutlichen, sind in Abb. 7.17 zusätzlich SQW-LED-Strukturen auf Saphir und ULD mit 1,5 nm QW-Breite dargestellt, die aber im Folgenden nicht weiter diskutiert werden.
Die LEDs der Serie auf FS-GaN zeigen die kürzesten Wellenlängen, die LEDs auf Saphir die längsten und die Dioden auf ULD liegen dazwischen. Bei 3 und 18 nm

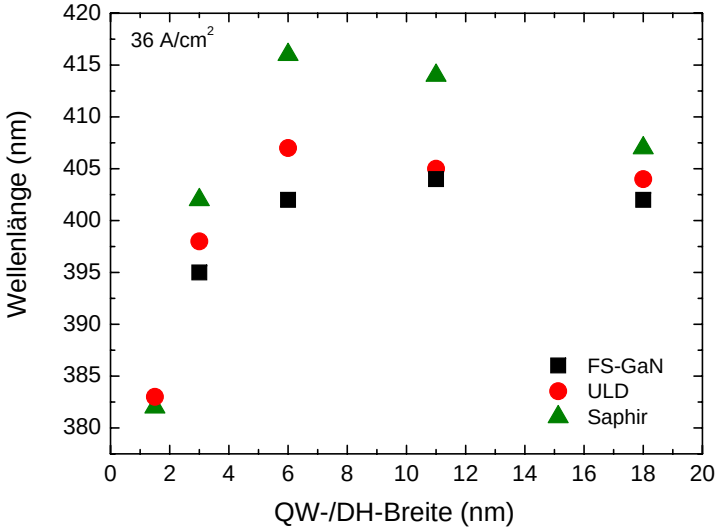


Abbildung 7.17: *Peak-EL-Emissionswellenlänge bei einer Stromdichte von 36 Acm^{-2} für die SQW-LEDs auf Saphir, ULD und FS-GaN mit unterschiedlicher QW-Breite. Gemessen wurde jeweils die effizienteste LED je Wafer.*

QW-/DH-Breite liegen die Emissionswellenlängen der Serien 5 - 7 nm auseinander, und steigen für mittlere QW-/DH-Breiten bis auf $\Delta\lambda = 15$ nm für die Dioden mit 6 nm QW-Breite an.
Um diese Abhängigkeit der Emissionswellenlänge von der QW-/DH-Breite und der Art des Substrates genauer zu analysieren, sind in Abb. 7.18 die EL-Emissionsspektren der Dioden über einen Stromdichtebereich von geringster detektierbarer Licht-Emission bis zu $j = 700$ Acm^{-2} (entspricht 400 mA) dargestellt. Die Strominjektion wurde für Stromdichten > 50 Acm^{-2} oder wenn die maximale Zählrate des Spektrometers überschritten wurde, gepulst durchgeführt. Die blauen vertikalen Linien markieren die Wellenlänge von einzelnen Peaks, deren Beitrag zum Emissionsspektrum bei niedrigen Stromdichten sichtbar ist, und die roten Linien markieren Peakverschiebungen.
Die Emissionsspektren für die Dioden mit 3 nm QW-Breite zeigen einen Hauptpeak, der über den gesamten gemessenen Stromdichtebereich bei einer konstanter Wellenlänge von etwa 397 nm liegt, wie an den vertikalen blauen Linien zu sehen ist. Die Halbwertsbreite der Emissionen bei einer Stromdichte von 36 Acm^{-2} sind 11 nm für LEDs auf Saphir und ULD und 10 nm auf FS-GaN. Zusätzlich ist bei niedrigsten Stromdichten bis etwa 0,3 Acm^{-2} ein langwelliges breites Emissionsband, das sich mit steigendem Strom von 500 nm zu kürzeren Wellenlängen hin verschiebt (siehe rote Linie), sichtbar. Dieses Emissionsband ist bei allen LEDs vorhanden, wobei die relative Intensität im Vergleich zum Hauptpeak für die LEDs auf FS-GaN am deutlichsten sichtbar ist und über Saphir zu ULD hin abnimmt. Auch Grzanka *et al.* [157] beobachteten beim Vergleich von SQW-LEDs auf Saphir mit Emissionswellenlängen zwischen 395 und 440 nm ein ähnliches langwelliges Emissionsband, das mit steigender Stromdichte sättigte. Sie schreiben es der strahlenden Rekombination über Zustände in der Bandlücke, die durch Dotierstoffe erzeugt würden, zu.

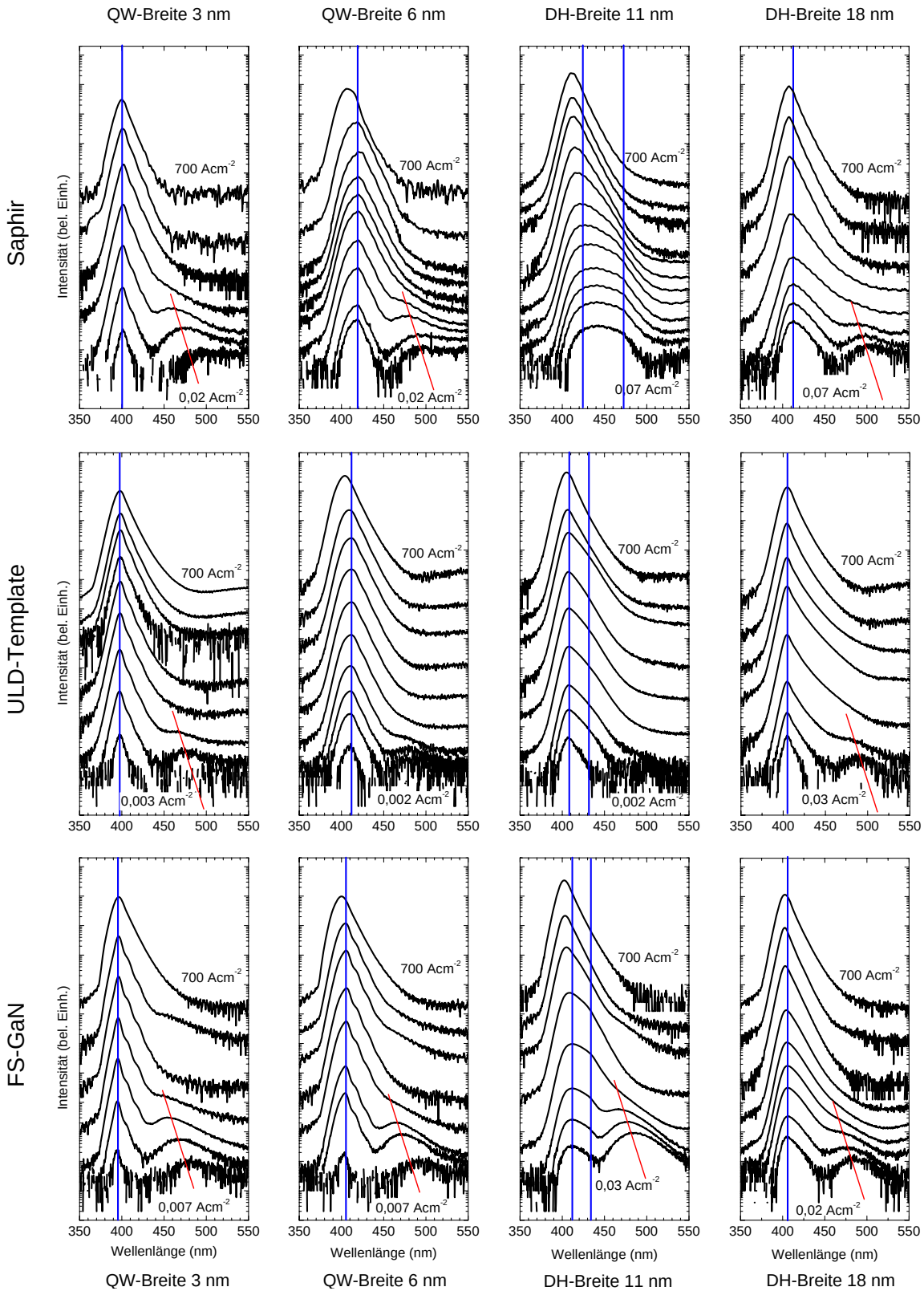
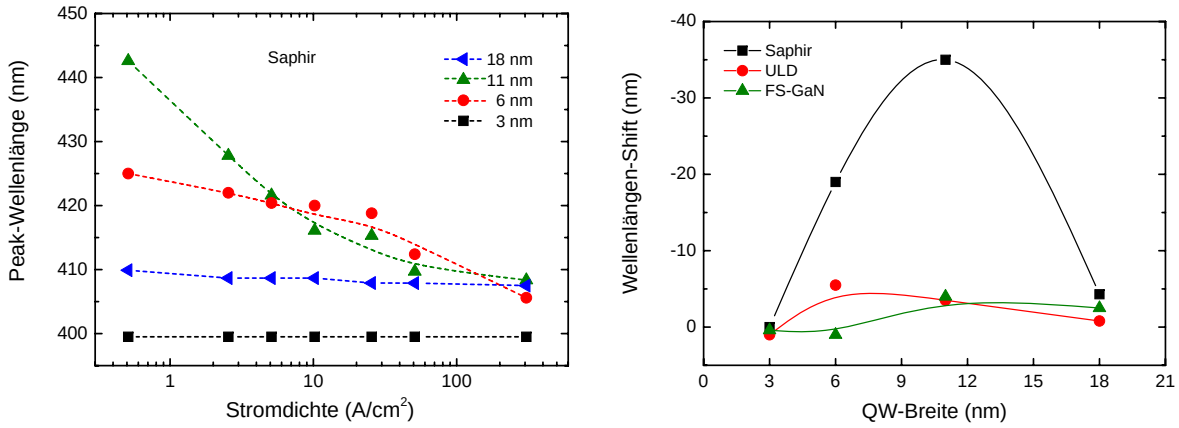


Abbildung 7.18: *Elektrolumineszenzspektren von LEDs mit QW-/DH-Breiten von 3, 6, 11 und 18 nm auf Saphir, ULD und FS-GaN. Die Dioden wurden bis 50 Acm^{-2} dc betrieben, darüber gepulst. Von links nach rechts sind die Spektren mit aufsteigender QW-/DH-Breite angeordnet, in der oberen Zeile für die Proben auf Saphir, in der mittleren auf ULD und in der unteren auf FS-GaN. Die vertikalen blauen und die roten Linien dienen zur optischen Verdeutlichung von Peak-Verschiebungen.*



(a) (b)

Abbildung 7.19: *(a) Abhängigkeit der EL-Peak-Wellenlänge von der Stromdichte für die Probe auf Saphir. (b) Gesamt-Blauverschiebung der EL-Peak-Wellenlänge bei Injektionsstromdichten zwischen 0,5 und 300 Acm^{-2} für LEDs auf Saphir, ULD und FS-GaN über der QW-/DH-Breite.*

Bei allen Dioden mit 3 und 6 nm QW-Breite sind auf der langwelligen Flanke des Hauptpeaks Phononenrepliken sichtbar. Diese sind am ausgeprägtesten für die Dioden auf FS-GaN und zeigen einen Abstand von 90 meV, der gut zu LO-Phononen in GaN mit 92,8 meV passt.
Die EL-Spektren der Dioden mit 6 und 11 nm QW- oder DH-Breite zeigen Beiträge von verschiedenen Peaks. Die EL-Spektren der Dioden mit 6 nm QW-Breite zeigen deshalb einen stark verbreiterten Emissionspeak, der zu einer Halbwertsbreite des Spektrums bei 55 Acm^{-2} von 20 nm für die LED auf Saphir, 18 nm auf ULD und 15 nm auf FS-GaN führt.
Das Spektrum der LED mit 11 nm DH-Breite auf Saphir zeigt bei niedrigen Stromdichten Beiträge von mindestens 2 Peaks bei etwa 440 nm und 470 nm. Der daraus resultierende Gesamt-Peak schiebt mit steigender Stromdichte zu kürzeren Wellenlängen und erreicht ab ca. 100 Acm^{-2} 408 nm. Auch die Spektren der LEDs mit einer DH-Breite von 11 nm auf ULD und FS-GaN zeigen die Beiträge von mehreren Peaks, jedoch liegt die Hauptemission bei etwa 408 nm und schiebt nur sehr gering mit steigender Stromdichte.
Die LEDs mit den breitesten DH-Breiten von 18 nm zeigen unabhängig vom Substrat über den gesamten Stromdichtebereich nur einen Peak bei Wellenlängen um 405 nm. Die Halbwertsbreite dieses Peaks beträgt bei 55 Acm^{-2} für die Diode auf Saphir 13 nm sowie für ULD und FS-GaN 11 nm und ist damit nur unwesentlich breiter als bei den QW-LEDs mit einer QW-Breite von 3 nm.
Eine wesentliche Erkenntnis ist also, dass die LEDs mit breiten DH-Strukturen fast keine Blauverschiebung mit steigender Stromdichte zeigen, was entgegen der ursprünglichen Erwartung ist, wie im Folgenden genauer diskutiert und untersucht wird.
Eine Zusammenfassung der Hauptpeak-Wellenlängen der gesamten LED-Serie auf Saphir über der Stromdichte ist in Abbildung 7.19(a) gezeigt, während Abb. 7.19(b) die

maximale stromdichteninduzierte Blauverschiebung zu kürzeren Wellenlängen für alle drei Serien zeigt.
Unabhängig vom Substrat zeigen die LEDs mit 3 nm QW- und 18 nm DH-Breite nur vernachlässigbare Wellenlängenverschiebungen. Für dazwischenliegende GaInN-Schichtdicken von 6 und 11 nm wird eine deutliche Blauverschiebung zu kürzeren Wellenlängen für die LEDs auf Saphir beobachtet, die für die LED mit 11 nm DH-Breite 35 nm beträgt. Für die LEDs auf den defektreduzierten Substraten zeigt sich eine deutlich reduzierte Blauverschiebung von nur etwa 4 nm.
Für polare GaInN/GaN-QW-LEDs wird generell eine Blauverschiebung bei steigender Stromdichte erwartet, da die erhöhte Ladungsträgerdichte im QW zu einer Abschirmung der piezoelektrischen Felder führt, die den QCSE verursachen. Diese Wellenlängenverschiebung nimmt sowohl mit steigender QW-Breite als auch mit steigendem In-Gehalt zu. Deshalb kann das Ausbleiben einer Blauverschiebung für die LEDs mit 3 nm QW-Breite mit der schmalen GaInN-Schichtdicke und dem niedrigen In-Gehalt von 9% erklärt werden. Die Form der EL-Spektren von LEDs mit breiteren GaInN-Schichtdicken deutet darauf hin, dass die Blauverschiebung der Peak-Wellenlänge eher durch beginnende Emission aus energetisch höheren Zuständen als durch das Abschirmen des QCSE verursacht wird. Es ist allerdings nicht möglich, einen Beitrag des QCSE komplett auszuschließen, da die EL-Spektren der LEDs zu sehr verbreitert sind.
Um die Beiträge von QCSE und Emission aus höheren Zuständen beurteilen zu können, wird folgendes Modell vorgeschlagen:
Für die LEDs mit 3 nm breiten QWs haben die Grundzustände der Elektron- und Lochwellenfunktion einen hohen Überlapp, so dass die Rekombination ausschließlich zwischen diesen Grundzuständen, die sich wegen der schmalen QW-Breite auch mit steigender Stromdichte energetisch kaum verschieben, stattfindet. Dieser Zusammenhang ist in Abb. 7.20(a)-(c) skizziert und als Vergleich der mit SiLENSe simulierten Bandverläufe bei 0,05 und 50 $\mathrm{Acm^{-2}}$ dargestellt.
Mit steigender QW-Breite sinkt aufgrund des QCSE der Überlapp für den Grundzustand der Elektronwellenfunktion mit dem Grundzustand der Lochwellenfunktion. Dabei ist der Einfluss des QCSE auf die ersten und höheren angeregten Zustände jedoch deutlich geringer [Abb. 7.20(d)-(f)], was zu einem größeren Wellenfunktionsüberlapp und damit zu einer kürzeren strahlenden Lebensdauer der angeregten Zustände gegenüber denen der Grundzustände führt. Dies führt zu einer schnellen Zunahme der Emission aus angeregten Zuständen und diese dominieren somit mit zunehmender, durch steigende Stromdichte verursachte, Auffüllung höherer Zustände letztlich das emittierte Spektrum. Dies ist bei der LED mit 11 nm DH-Breite auf Saphir zu sehen.
Mit sinkender Versetzungsdichte sinkt die nichtstrahlende Rekombinationsrate, was bei gleicher Injektionsstromdichte j zu einer höheren Ladungsträgerdichte n im QW und damit zu vermehrter Auffüllung höherer Zustände führt. Dadurch dominiert die Emission aus den angeregten Zuständen die EL-Spektren der LEDs auf ULD und FS-GaN auch schon bei niedrigen Stromdichten und es kommt nur noch zu einer geringen Blauverschiebung aufgrund der Abschirmung des QCSE.
Im Falle einer DH-Breite von 18 nm ist der Überlapp der Grundzustände der Elektron- und Loch-Wellenfunktionen vernachlässigbar, wie in Abb. 7.20(g)-(i) dargestellt wird, was für diese Grundzustände zu geringen strahlenden Rekombinationsraten führt.

Folglich wird ausschließlich Emission aus höheren angeregten Zuständen beobachtet, die unabhängig vom Substrat nur eine verschwindende Wellenlängenverschiebung aufweisen. Allerdings werden in Abb. 7.20(h) aus Gründen der Übersichtlichkeit nur die ersten zwei angeregten Zustände dargestellt.

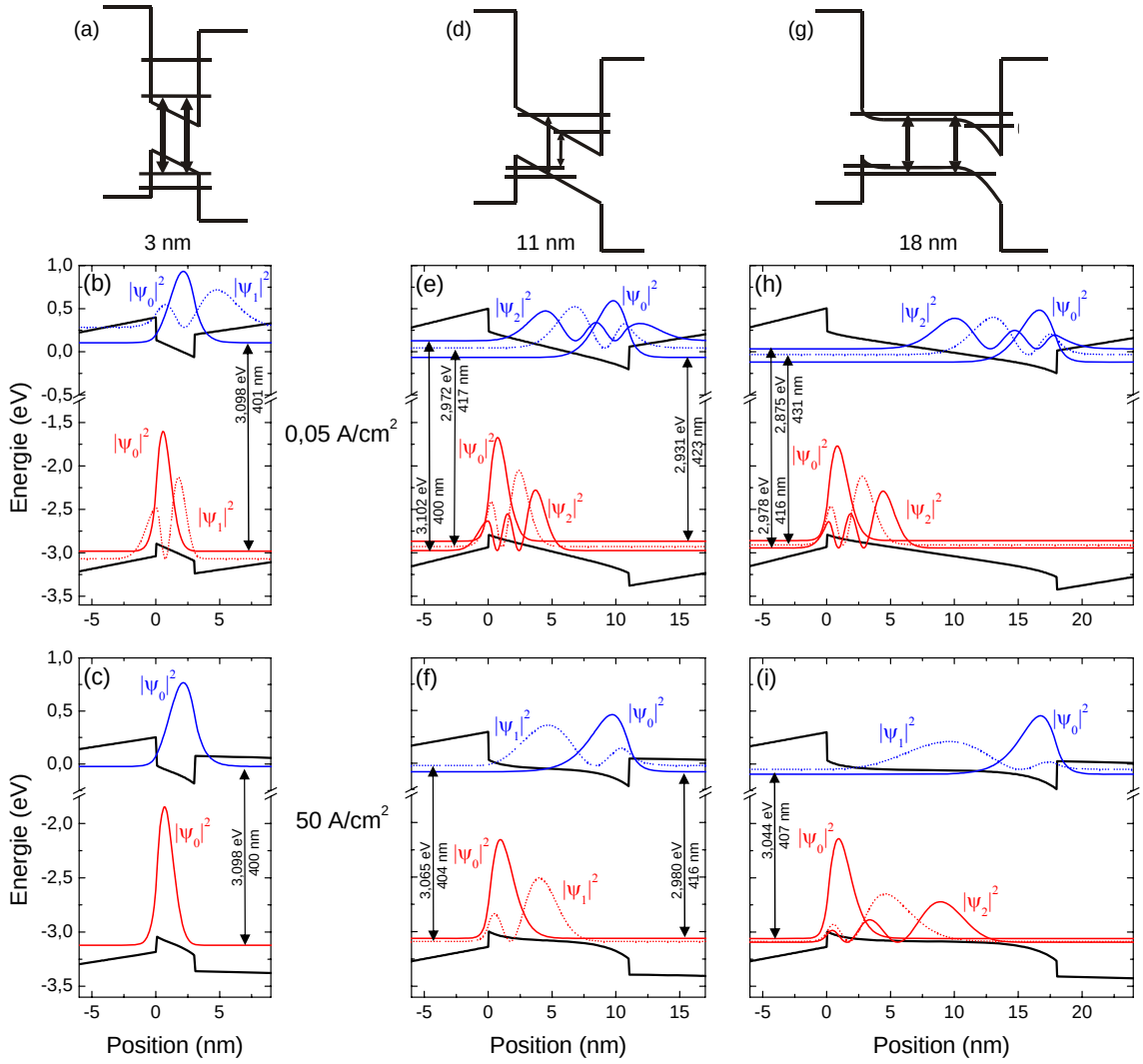


Abbildung 7.20: *Skizzierter (a,d,g) und mit SiLENSe simulierter Bandverlauf und Elektron- sowie Loch-Aufenthaltswahrscheinlichkeiten $|\psi|^2$ für LED-Strukturen mit (b) 3 nm, (e) 11 nm und (h) 18 nm breiten GaInN-Filmen bei einer Stromdichte von 0,05 Acm^{-2}. Unten in den Bildern (c,f,i) die gleichen LED-Strukturen bei einer Stromdichte von 50 Acm^{-2}.*

In Bezug auf den Einfluss des Substrates auf die LED-Spektren, erscheint der Vergleich der 11 nm DH-LEDs auf Saphir und ULD am interessantesten, da hier der qualitativ deutlichste Unterschied zu beobachten ist. Neben der oben erklärten geringeren nichtstrahlenden Rekombinationsrate bei den LEDs auf ULD könnte auch eine deutlich höhere Hintergrundladungsträgerdichte ein Grund für die geringere Wellenlängenverschiebung auf ULD sein:

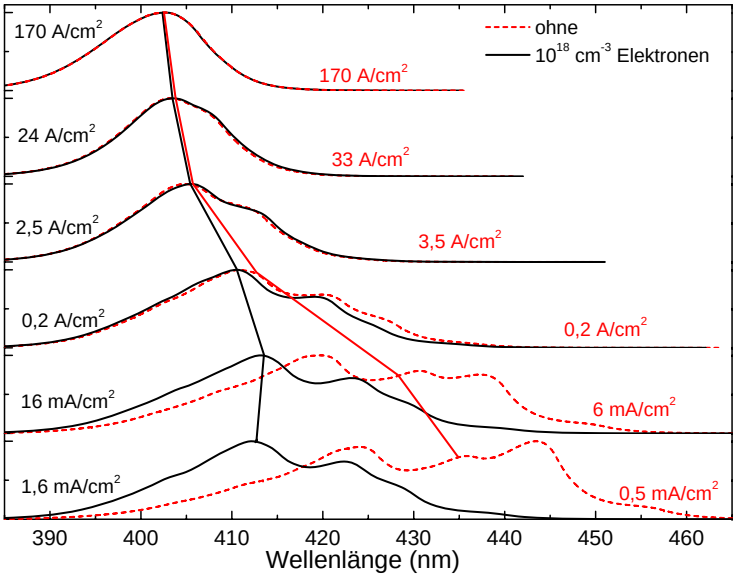


Abbildung 7.21: *Mit SiLENSe simulierte EL-Emissionsspektren bei Injektionsstromdichten zwischen 0,5 mAcm^{-2} und 170 Acm^{-2} für LEDs mit 11 nm DH-Breite und nur intrinsischer oder zusätzlich mit extrinsischer Elektronen-Hintergrundladungsträgerdichte von 10^{18} cm^{-3}. Die eingezeichneten Linien dienen zur Verdeutlichung der Verschiebung der Peak-Emission.*

Im Gegensatz zur oben dargelegten Diskussion, bei der das Auffüllen der Bänder ausschließlich durch die Strominjektion geschieht, befinden sich auch im stromlosen Fall schon Ladungsträger im aktiven Bereich. Dies sind neben intrinsischen Ladungsträgern die durch Dotierung, Punktdefekte oder Verunreinigungen während des Wachstums eingebrachten Ladungsträger. Zur Verdeutlichung sind in Abb. 7.21 die mit SiLENSe simulierten Elektrolumineszenz-Emissionsspektren von zwei LED-Strukturen mit 11 nm DH-Breite gegenübergestellt, bei denen eine nur die intrinsische und die andere zusätzlich eine extrinsische Elektronen-Hintergrundladungsträgerdichte von 10^{18} cm^{-3} aufweist. Die Hintergrundladungsträgerdichte wurde in der Simulation durch eine Si-Dotierung gleicher Konzentration im aktiven Bereich eingestellt. Während sich die Peak-Wellenlänge der LED mit extrinsischen Hintergrundladungsträgern zwischen 413 nm bei 1,6 mAcm^{-2} und 402 nm bei 170 Acm^{-2} mit einem S-artigen Verlauf verschiebt, zeigen die Spektren der LED mit nur intrinsischen Ladungsträgern eine monotone Verschiebung der Peak-Emission zwischen 435 nm (bzw. 445 nm für den langwelligsten Peak-Beitrag) bei 0,5 mAcm^{-2} und 402 nm bei 170 Acm^{-2}. Dabei liegen die Emissionsspektren der LEDs ab Stromdichten von 3,5 Acm^{-2} direkt übereinander.
Die Simulation zeigt den langwelligsten Peak bei 445 nm, dagegen erstreckte sich das experimentelle Spektrum bis in den Bereich um 475 nm, Abb. 7.18(c). Als Ursache könnten hier wieder die schon in Abschnitt 7.2.2 diskutierten morphologischen Defekte beim Wachstum mit hoher Versetzungsdichte sein. Diese können als durch Versetzungen induzierte starke In-Gehaltsfluktuationen bis hin zu GaInN-Entmischungen aufgefasst werden, die auch von zahlreichen anderen Gruppen beim

Wachstum auf Saphir und unter niedrigen Wachstumstemperaturen beobachtet wurden [99, 159, 169, 170, 171]. Zwar ist der In-Gehalt hier mit 9% deutlich geringer als die 14% der langwelligsten Probe der Wellenlängenserie, allerdings beschreiben Moon *et al.* [169] die Zunahme der In-Gehaltsfluktuationen bei Verbreiterung des GaInN-Films auf 12 nm. Es ist also davon auszugehen, dass, falls Entmischungen bei den LEDs dieser QW-/DH-Breiten-Serien auftreten, diese zumindest bei den DH-LEDs auf Saphir mit 11 und 18 nm DH-Breite zu finden sind. Da die reziproken Gitterkarten jedoch keinen Hinweis auf eine Entmischung des GaInN bei den 18 nm breiten DH-Strukturen geben, Abb. 7.13, ist die Entmischung von GaInN auch bei den 11-nm-Proben auf Saphir unwahrscheinlich.
Es wurden hier nun mehrere mögliche Erklärungen für die Unterschiede in der Stromabhängigkeit der Elektrolumineszenz-Spektren zwischen Saphir und ULD bei 11 nm breiten DH-LEDs vorgeschlagen. Eine endgültige Bestätigung oder Widerlegung besonders des vorgestellten Modells könnte mit zeitabhängigen Elektrolumineszenz-Messungen erfolgen. Diese müssen jedoch gleichzeitig zeitlich wie auch spektral aufgelöst sein, um die Zeitabhängigkeiten der langwelligen Peak-Beiträge bei Saphir und ULD vergleichen zu können.

Leistungscharakterisierung

Nachdem im letzten Abschnitt die Unterschiede im spektralen Verhalten der LED-Serien herausgearbeitet wurden, werden nun die für die EL-Leistung wichtigen Unterschiede in der Effizienz der LEDs untersucht. Abbildung 7.22 zeigt die gemessene externe Quanteneffizienz je Serie, wobei jedoch die gemessenen Werte für FS-GaN, aufgrund der reduzierten Auskoppeleffizienz durch die polierte Rückseite, nicht direkt mit denen auf Saphir und ULD vergleichbar sind.
Die maximale externe Quanteneffizienz variiert zwischen den Serien nur wenig und beträgt 4 - 5%. Die QW-LEDs mit der Standard-Breite 3 nm zeigen die maximale externe Quanteneffizienz bei niedrigen Stromdichten und ein klares nicht-thermisches Überrollen bei höheren Stromdichten.
Auf Saphir und ULD ist der Anstieg der Quanteneffizienz bei niedrigen Stromdichten für die QW-Struktur mit 3 nm QW-Breite am steilsten, für LEDs mit dickeren GaInN-Schichtdicken steigt die Quanteneffizienz flacher. Die maximal erreichte externe Quanteneffizienz und das relative Verhalten der Quanteneffizienzen von Dioden innerhalb einer Serie variiert jedoch deutlich. Für die Serie auf Saphir führt eine Erhöhung der QW-Breite im Stromdichtebereich $< 300\,\mathrm{Acm}^{-2}$ zu einer kontinuierlichen Abnahme der Quanteneffizienz. Ab Stromdichten $> 300\,\mathrm{Acm}^{-2}$ jedoch zeigt die LED mit 6 nm QW-Breite die höchste externe Quanteneffizienz.
Bei der Serie auf ULD ist das Verhalten der 3- und der 6-nm-QW-Struktur sehr ähnlich zu dem der Saphir-Serie, jedoch gilt die Abnahme der Quanteneffizienz mit breiterer aktiver Schicht hier nur für geringste Stromdichten. Die externe Quanteneffizienz der LED mit 11 nm DH-Breite schneidet die der 6-nm-QW-Struktur bei $10\,\mathrm{Acm}^{-2}$ und zeigt ab $65\,\mathrm{Acm}^{-2}$ die insgesamt höchste Effizienz innerhalb der ULD-Serie. Auch die Quanteneffizienz der 18-nm-DH-Struktur schneidet die 3 und 6 nm dicken QW-Strukturen, liegt aber über den gesamten Stromdichtebereich unter der 11 nm dicken DH-Struktur.

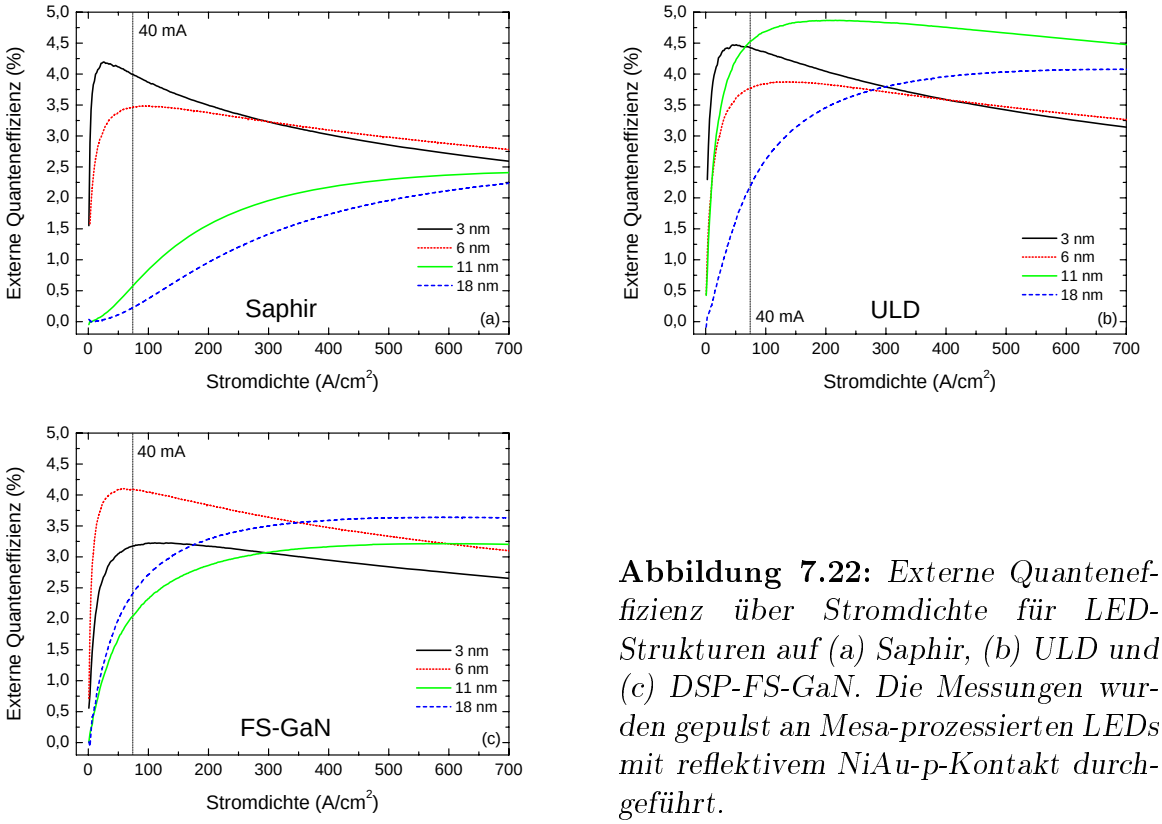
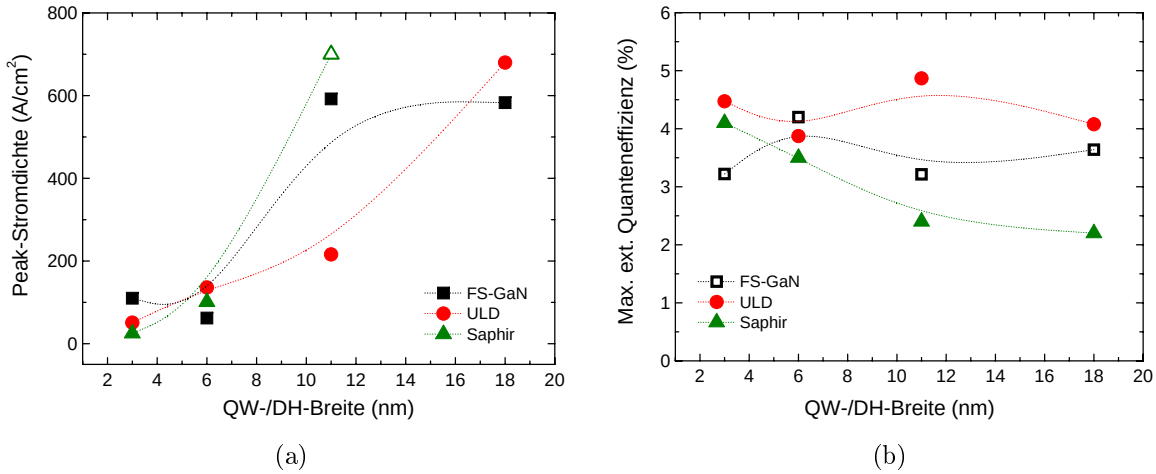


Abbildung 7.22: *Externe Quanteneffizienz über Stromdichte für LED-Strukturen auf (a) Saphir, (b) ULD und (c) DSP-FS-GaN. Die Messungen wurden gepulst an Mesa-prozessierten LEDs mit reflektivem NiAu-p-Kontakt durchgeführt.*

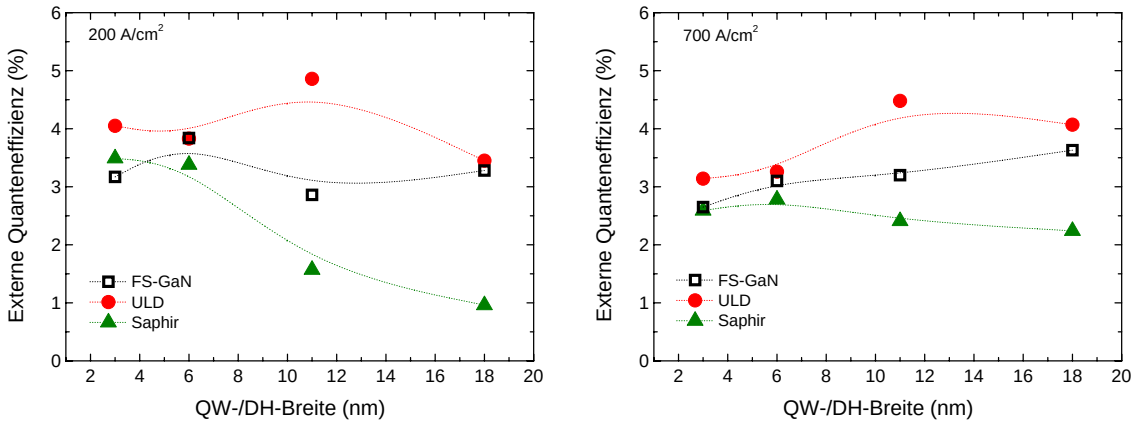
Auf FS-GaN zeigt die 6-nm-QW-LED bis zu einer Stromdichte von 350 Acm^{-2} die höchste externe Quanteneffizienz und liegt im gesamten Stromdichtebereich über der der 3-nm-QW-LED. Die 18-nm-DH-LED ist ab 5 Acm^{-2} effizienter als die 11-nm-DH-LED und zeigt ab einer Stromdichte von 350 Acm^{-2} die höchste Quanteneffizienz der FS-GaN-Serie.
Im Folgenden soll die relative Abhängigkeit der externen Quanteneffizienz von der QW-/DH-Breite und der Art des Substrates genauer analysiert werden. Dazu sind in Abb. 7.23(a) die Peak-Stromdichten der externen Quanteneffizienz über der QW-/DH-Breite der LEDs für die drei Serien aufgetragen.
Die Peak-Stromdichte der externen Quanteneffizienz der LEDs auf Saphir und ULD steigt kontinuierlich mit steigender QW-/DH-Breite, was auch nach Gleichung 7.2 zu erwarten ist. Die Peak-Stromdichte der LEDs auf Saphir mit 11 und 18 nm DH-Breite liegen dabei außerhalb des messbaren Bereichs. Da der Wert für die 11-nm-DH-Breite nur knapp außerhalb des Messbereichs liegt, wurde er als offenes Symbol in Abb. 7.23(a) eingetragen.
Auch die LEDs auf FS-GaN zeigen ein Ansteigen der Peak-Stromdichte mit steigender QW-/DH-Breite, allerdings ist der Verlauf hier nicht monoton, da die 6-nm-QW-LED früher überrollt als die 3-nm-QW-LED und die Peak-Stromdichte der LEDs mit 11- und 18-nm-DH-Breite gleich sind. Ein Grund für diese Abweichung könnte wieder in der über den Wafer variierenden Wachstumsbedingungen liegen.
In Abbildung 7.23(b) ist die maximale externe Quanteneffizienz der LEDs im Stromdichtenbereich bis 700 Acm^{-2} dargestellt. Die Serie auf Saphir zeigt ein Abfallen der



(a) (b)

Abbildung 7.23: *(a) Peak-Stromdichte der externen Quanteneffizienz für SQW-LEDs auf Saphir, ULD und FS-GaN, aufgetragen über der QW-/DH-Breite. Die LED auf Saphir mit 11 nm DH-Breite ist mit offenem Symbol dargestellt, da die Peak-Stromdichte knapp außerhalb des Messbereichs lag. (b) Maximale externe Quanteneffizienz für Stromdichten $< 700\,\mathrm{Acm^{-2}}$ der SQW-LEDs aufgetragen über der QW-/DH-Breite. Offene Symbole repräsentieren hier die LEDs auf FS-GaN, die aufgrund der polierten Rückseite eine andere Extraktionseffizienz aufweisen.*

maximalen Quanteneffizienz mit steigender QW-/DH-Breite von 4,1% bei 3-nm-QW-LEDs bis auf etwa 2,2% bei der 18-nm-DH-LED, während die maximalen Quanteneffizienzen auf ULD und FS-GaN in einem Band zwischen 4 und 5% bzw. 3,2 und 4,2% liegen und keinen klaren systematischen Trend zeigen. Dabei muss beachtet werden, dass die LEDs auf doppelseitig polierten FS-GaN-Substraten eine niedrigere Extraktionseffizienz η_{ex} als die auf Saphir oder ULD aufweisen, und deshalb die Werte für die externen Quanteneffizienzen bei FS-GaN niedriger sind.
In Abb. 7.24 sind die externen Quanteneffizienzen aller LEDs bei Stromdichten von 200 und $700\,\mathrm{Acm^{-2}}$ dargestellt. Sowohl bei 200 als auch bei $700\,\mathrm{Acm^{-2}}$ liegen die externen Quanteneffizienzen der LEDs mit 3 nm QW-Breite nahe beisammen. Die relativen Verhältnisse der externen Quanteneffizienzen sind bei 200 $\mathrm{Acm^{-2}}$ ähnlich der relativen Verhältnisse der maximalen externen Quanteneffizienz. Die LEDs auf Saphir zeigen sinkende externe Quanteneffizienzen mit steigender QW-/DH-Breite bis auf 1% bei 18 nm DH-Breite und die Werte der LED-Serien auf ULD und FS-GaN liegen in einem Band, mit den Maxima bei 11 nm für ULD und 6 nm für FS-GaN.
Bei $700\,\mathrm{Acm^{-2}}$ liegen die externen Quanteneffizienzen der QW-LEDs mit 3 nm noch näher beisammen. Die Serie auf Saphir zeigt nur einen leicht abfallenden Trend der externen Quanteneffizienz mit steigender QW-/DH-Breite mit 2,6% bei 3 nm QW-Breite auf 2,2% bei 18 nm. Sowohl die Serie auf ULD als auch auf FS-GaN zeigen dagegen einen Anstieg der externen Quanteneffizienz mit steigender QW-/DH-Breite. Dieser reicht für FS-GaN von 2,6% bei 3 nm QW-Breite bis zu 3,6% bei 18 nm DH-Breite, für die Serie auf ULD von 3,1% bis 4,1%. Allerdings zeigt die 11-nm-DH-LED auch in diesem Fall die höchste externe Quanteneffizienz. Im Vergleich zu den Messwerten



(a) (b)

Abbildung 7.24: *Externe Quanteneffizienz von SQW-LEDs auf Saphir, ULD und FS-GaN bei Stromdichten von (a) 200 Acm^{-2} und (b) 700 Acm^{-2} aufgetragen über der QW-/DH-Breite. Die Werte der Serie auf FS-GaN sind durch die unterschiedliche Extraktionseffizienz nicht direkt vergleichbar.*

bei 200 Acm^{-2} ist eine geringere Streuung der externen Quanteneffizienzen innerhalb der Serien zu beobachten.

7.3.3. Modell zur Erklärung der experimentell gefundenen Abhängigkeiten

Um die in den letzten Abschnitten gefundene Abhängigkeit der Wellenlängen-Verschiebung und der optimalen QW-/DH-Breite von der Versetzungsdichte und der Stromdichte qualitativ zu erklären, wird im Folgenden ein Modell entwickelt, das auch mit den Ergebnissen der spektralen Charakterisierung konsistent ist.
Bei QW-LEDs handelt es sich genau genommen um 2-dimensionale Elektron-Loch-Systeme, bei denen quantisierte Energieniveaus mit 2-dimensionalen Zustandsdichten beachtet werden müssen. Durch die Verbreiterung des Quantenfilms verringert sich jedoch der energetische Abstand der quantisierten Energieniveaus, wodurch sich die Gesamtanzahl *verfügbarer* Energieniveaus im QW und bei gegebener Band-Auffüllung auch die Anzahl *besetzter* Energieniveaus erhöht. Zur Vereinfachung werden deshalb alle LED-Strukturen als 3-dimensionale Elektron-Loch-Systeme angenähert, die mit 3-dimensionalen Zustandsdichten beschrieben werden.
Die Ratengleichung, die Injektions-Stromdichte und Ladungsträger-Rekombination verknüpft, und die strahlende Ausbeute η_{RE} waren nach Gleichung 6.7 bzw. 6.8 mit 6.2:

$$\frac{\eta_{\mathrm{inj}} j}{qd} = An + Bn^2 + Cn^3 \qquad \text{und} \qquad \eta_{\mathrm{RE}} = \eta_{\mathrm{inj}} \frac{Bn^2}{An + Bn^2 + Cn^3}$$

mit Stromdichte j, QW-/DH-Breite d und $j/d = I/V$. Während die nichtstrahlende SRH-Rekombinationsrate An über Defekte linear von der Ladungsträgerdichte n abhängt, zeigt die strahlende Rekombinationsrate Bn^2 eine quadratische Abhängigkeit.

Wie in Abschnitt 6.3.1 beschrieben, steigt damit die interne Quanteneffizienz mit steigender Ladungsträgerdichte an, solange bis die nichtstrahlende Verlustrate der Auger-ähnlichen Rekombination Cn^3 dominiert. Der Koeffizient der nichtstrahlenden Defektrekombination A ist hauptsächlich von der Defektkonzentration der Probe abhängig, dagegen sind der Koeffizient der strahlenden bimolekularen Rekombination B und der Auger-Koeffizient C näherungsweise Materialkonstanten.
Das entwickelte Modell ist in Abb. 7.25 schematisch dargestellt. Es basiert zwar auf der oben genannten Gleichung für die strahlende Ausbeute, jedoch mussten für die schematische Darstellung einige wichtige Vereinfachungen vorgenommen werden:

- Die Gleichung verknüpft die interne Quanteneffizienz mit der Ladungsträgerdichte im Quantenfilm. Aufgetragen ist jedoch die interne Quanteneffizienz über der Stromdichte, die nicht proportional zur Ladungsträgerdichte ist, sondern mit einem Polynom dritten Grades, wie aus der Ratengleichung ersichtlich ist. Während für eine genaue Anpassung des Modells an die experimentellen Ergebnisse die Kenntnis dieses Zusammenhangs wichtig wäre, reicht für die schematische Erklärung die Vereinfachung $j \propto n$, die nur zu einer Stauchung der x-Achse führt, aber qualitativ keine weitere Änderung bewirkt.

- Die Injektionseffizienz η_{inj} wird zur einfacheren Darstellung zu konstant 100% gesetzt.

Wie in den vorangegangenen Abschnitten gesehen, steigt die EL-Leistung und damit die strahlende Ausbeute der LED-Strukturen im Wellenlängenbereich von 380 - 430 nm mit sinkender Versetzungsdichte an. Die sinkende Versetzungsdichte kann im Modell durch einen geringeren Defektrekombinations-Koeffizienten A beschrieben werden, dessen Auswirkung auf die interne Quanteneffizienz als Vergleich zweier Dioden schematisch unter Vernachlässigung des Cn^3-Terms in Abb. 7.25(a) dargestellt wird. Im Modell wurde dafür die Gleichung $\eta_{\mathrm{IQE}} = j/(a + j)$ mit unterschiedlichen Werten für a genutzt, was beim Vergleich mit der oben gegebenen Gleichung dem Quotient $a = A/B$ aus dem nichtstrahlenden SRH-Koeffizienten A und dem bimolekularen strahlenden Koeffizienten B entspricht, hier jedoch vollkommen frei zu 5 und 300 gewählt wurde.
Die Verbreiterung der Dicke d der aktiven Schicht führt nun bei gegebener Stromdichte j zur Verringerung der Ladungsträgerdichte n und damit zu einer sinkenden internen Quanteneffizienz, Abb. 7.25(b). Dies wird durch die einfache Gleichung $\eta_{\mathrm{IQE}} = kj/(a + kj)$ beschrieben, bei der k zwischen 1 und 1/4 variiert, um die niedrigere Ladungsträgerdichte bei vierfach breiterem aktiven Bereich zu beschreiben.
Als dritter Aspekt tritt nun bei hohen Ladungsträgerdichten ein Auger-ähnlicher Prozess auf, der einen Grenzwert für die erreichbaren internen Quanteneffizienzen darstellt und die Ursache des nicht-thermischen Überrollens ist. Die Verringerung der Ladungsträgerdichte durch Vergrößerung des aktiven Volumens führt dabei durch die kubische Abhängigkeit der Auger-Rekombinationsrate Cn^3 zu einer deutlichen Erhöhung der möglichen internen Quanteneffizienz bei gegebener Stromdichte [Abb. 7.25(c)]. Dabei wurde dieser Grenzfall durch die Gleichung $\eta_{\mathrm{IQE}} = 1/(1 + ckj)$ dargestellt (An wird vernachlässigt). c entspricht dabei $c = C/B$ dem Quotient aus Auger-Koeffizient C und bimolekularen strahlenden Koeffizient B, wurde aber auf

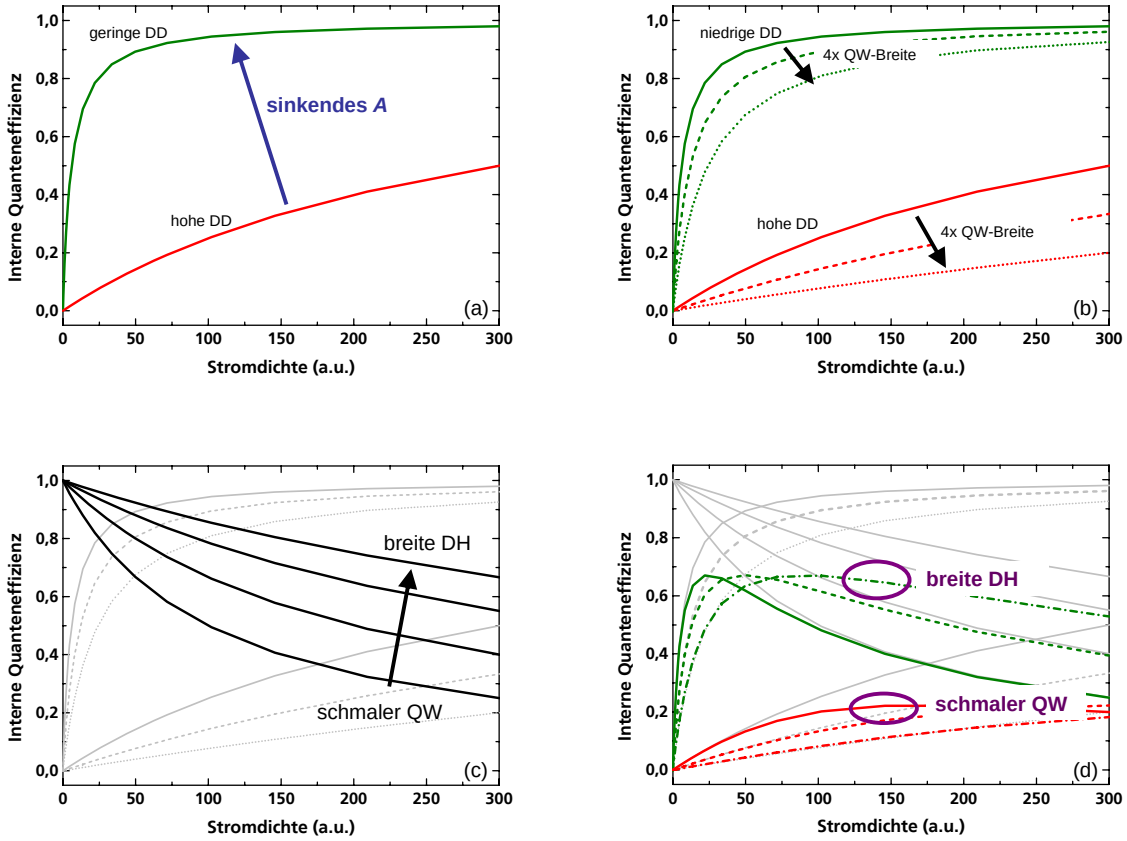


Abbildung 7.25: *Schematische Erklärung der Existenz einer von der Versetzungs- und Stromdichte abhängigen optimalen QW-/DH-Breite einer LED-Struktur. Die Bilder werden im Text erklärt.*

einen willkürlichen Wert von 0,01 gewählt. Für k wurden diesmal Werte zwischen 1 und 1/6 zur Modellierung der verringerten Ladungsträgerdichte durch sechsfache Verbreiterung der aktiven Schicht gewählt.
Aus den oben dargelegten Prozessen folgt nun die in Abb. 7.24(a) beobachtete Abhängigkeit einer optimalen QW-/DH-Breite von der Versetzungsdichte [Abb. 7.25(d)] und Gleichung $\eta_{\mathrm{IQE}} = kj/(a + kj + ck^2j^2)$:
bei $j = 150$ zeigt im Falle hoher Defektdichte die schmale Struktur die höchste Effizienz, im Fall niedriger Defektdichte ist es die breiteste Struktur.
Auf der einen Seite ist der Effizienzgewinn durch die reduzierte Versetzungsdichte am deutlichsten für die LED-Strukturen mit breiten aktiven Schichten. Folglich hängt die maximale Breite der aktiven Schicht, bei der für eine gegebene Stromdichte eine festgelegte minimale interne Quanteneffizienz erreicht wird, von der Versetzungsdichte ab. Dabei erfordert eine steigende Versetzungsdichte schmälere aktive Schichten.
Auf der anderen Seite ist für eine Erhöhung der internen Quanteneffizienz bei hohen Stromdichten eine Senkung der Ladungsträgerdichte notwendig, um den durch den Auger-ähnlichen nichtstrahlenden Prozess gesetzten Grenzwert zu höheren Stromdichten zu verschieben.
Daraus folgt, dass die hohe Versetzungsdichte wie bei den LED-Strukturen auf Saphir

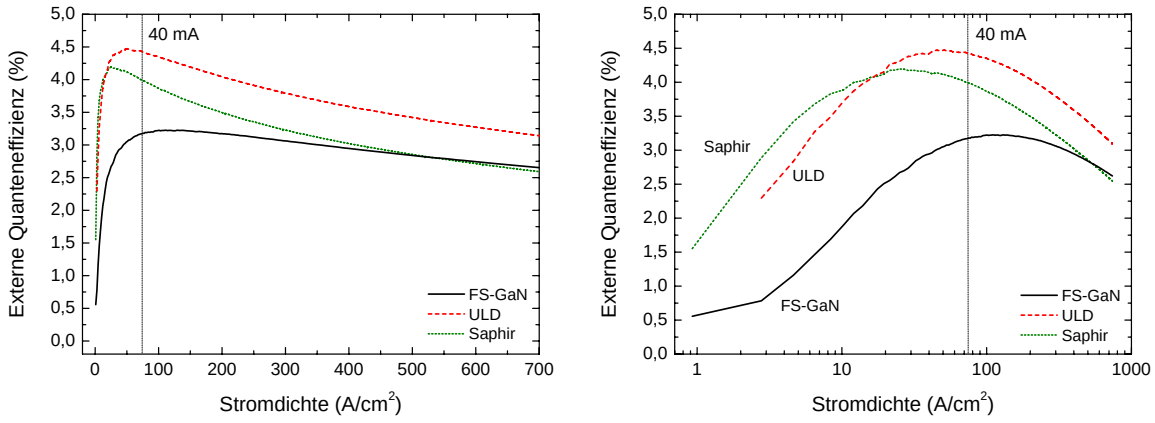


Abbildung 7.26: *Externe Quanteneffizienz für LEDs mit 3 nm QW-Breite aufgetragen über (a) linear und (b) logarithmisch skalierter Stromdichte.*

eine schmale QW-Breite erfordert, um hohe interne Quanteneffizienzen zu erreichen. Gleichzeitig begrenzt die schmale QW-Breite aber die maximale interne Quanteneffizienz im Bereich hoher Stromdichten auf niedrige Werte, wegen des nicht-thermischen Überrollens.
Die LED-Serien auf den defekt-reduzierten Substraten ULD und FS-GaN erlauben auch unter der Anforderung eines Mindestwertes für die interne Quanteneffizienz bei geringen Stromdichten die Verwendung breiter aktiver Schichten und ermöglichen damit das Verschieben des Einsatzes des nicht-thermischen Überrollens zu höheren Stromdichten hin.

7.3.4. Grenzen des Modells

Da das Modell auf den in Abschnitt 6.3.1 vorgestellten Ratengleichungen beruht, sind auch die auf Seite 101 behandelten Abhängigkeiten der maximalen strahlenden Ausbeuten $\eta_{\mathrm{RE,max}}$ (Gleichung 7.1) und deren Peak-Stromdichte j_{max} (Gleichung 7.2) gültig. Diese haben in der folgenden Diskussion wichtige Bedeutung und werden zur besseren Übersichtlichkeit hier wiederholt:

$$\eta_{\mathrm{RE,max}} = \eta_{\mathrm{inj}} \frac{B}{B + 2\sqrt{AC}} \qquad \text{und} \qquad j_{\mathrm{max}} = \frac{qd}{\eta_{\mathrm{inj}}} \frac{A}{C} \left(B + 2\sqrt{AC} \right)$$

Eine Inkonsistenz des theoretischen Modells mit den experimentellen Ergebnissen ist für einige Proben das Verhältnis der strahlenden Ausbeuten des Modells untereinander zu den experimentellen externen Quanteneffizienzen untereinander. Dabei ist insbesondere das Verhältnis der externen Quanteneffizienzen der LEDs mit 3 nm QW-Breite auffällig. Diese sind zum Vergleich in Abb. 7.26 dargestellt.
Die maximale externe Quanteneffizienz ist für die LED auf ULD mit 4,5% am höchsten. Die LED auf Saphir zeigt maximal 4,2% und die LED auf DSP-FS-GaN 3,2%, allerdings muss hier die niedrigere Extraktionseffizienz berücksichtigt werden. Es ist also wahrscheinlich, dass ein auf die gleiche Extraktionseffizienz von Saphir- und

ULD-LEDs skalierter Wert höher läge als der Wert für die LED auf ULD. Damit wäre das Ergebnis der externen Quanteneffizienz-Messung noch konsistent mit dem auf der Ratengleichung basierenden Modell, nach welchem die maximale strahlende Ausbeute $\eta_{\mathrm{RE,max}}$ mit sinkender Defektrekombination steigt, Gleichung 7.1.
Ein weiterer Parameter ist jedoch die Peak-Stromdichte j_{max} der strahlenden Ausbeute, die nach Gleichung 7.2 mit sinkender Defektrekombination auch sinkt. In Abb. 7.26(b) ist aber deutlich ein entgegengesetzter Trend sichtbar, nämlich eine steigende Peak-Stromdichte mit sinkender Defektdichte.
Eine weitere Abweichung ist die unterschiedlich hohe maximale externe Quanteneffizienz innerhalb einer LED-Serie [Abb. 7.23(b)]. Denn wie an der Gleichung für die maximale strahlende Ausbeute $\eta_{\mathrm{RE,max}}$ zu sehen ist, sollte dieser Wert unabhängig von der QW-/DH-Breite sein und damit für die jeweilige Serie konstant, was er mit Einschränkungen für ULD und FS-GaN auch ist, siehe Abb. 7.23(b).
Mögliche Erklärungen für diese Abweichungen sind:

1. Die Abweichung für die Serie auf Saphir könnte durch mögliche Defekte, die auf eine zunehmende Phasenseparation des GaInN bei zunehmenden QW-/DH-Breiten zurückzuführen sind, verursacht sein. Durch diese Defekte würde der Wert des SRH-Koeffizienten A innerhalb der Serie auf Saphir ansteigen und das Verhalten erklären.

2. Wie bei der Einführung des Modells erwähnt, muss beim Übergang von schmalen QWs zu breiten DHs der Übergang von einem 2-dimensionalen System mit quantisierter Zustandsdichte zu einem 3-dimensionalen System mit kontinuierlicher Zustandsdichte vollzogen werden. Da die 3-dimensionale Zustandsdichte die Einhüllende der 2-dimensionalen darstellt, erscheint dieser Punkt vielmehr als ein Problem der mathematisch korrekten Beschreibung denn als Ursache der festgestellten Diskrepanzen. Allerdings führt er direkt zum nächsten Punkt.

3. In dem vorgestellten Modell wurde die Verkippung des Leitungs- und Valenzbandes durch die piezoelektrischen Felder, und damit der QCSE, bisher vernachlässigt. Wie im Modell in Abschnitt 7.3.2 erklärt, führt die Verkippung der Bänder zu einer lokalen Separation der Elektron- und Lochaufenthaltswahrscheinlichkeit und damit zur Abnahme des bimolekularen strahlenden Koeffizienten B. Der strahlende Koeffizient B ist also sowohl von der QW-/DH-Breite als auch von der Ladungsträgerdichte abhängig, was entgegen der Annahme eines konstanten Wertes B innerhalb einer Serie ist.
   Im Fall der 3 nm breiten QW-LEDs ist der Einfluss des QCSE gering, wie an der konstanten Emissionswellenlänge zu sehen ist. Bei LEDs mit 6 und 11 nm QW-/DH-Breite jedoch ist der Einfluss groß, wie ebenfalls bei der Diskussion der Emissionsspektren (Abb. 7.18) gezeigt wurde. Bei einer DH-Breite von 18 nm sind die verspannungs-induzierten Polarisationsfelder weitgehend durch Hintergrundladungsträger in der aktiven Schicht abgeschirmt. Dadurch tragen die im Bereich der Bandverbiegung liegenden Zustände [Abb. 7.20(g-i)] nur vernachlässigbar zur Rekombination bei und die angeregten Zustände werden kaum vom QCSE beeinflusst. Der ladungsträgerdichteabhängige Einfluss des QCSE kann also zumindest bei den 3 und 18 nm breiten GaInN-Filmen als Ursache

der beobachteten Inkonsistenzen mit dem Modell vernachlässigt werden, nicht jedoch bei den mittleren Breiten.

4. Ein Parameter, der in der bisherigen Betrachtung noch nicht beachtet wurde, ist die Injektionseffizienz η_{inj}. In Übereinstimmung mit der Literatur wurde von einer konstanten und hohen Injektionseffizienz im Bereich $>90\%$ ausgegangen. Da sie jedoch in beiden Gleichungen, für die maximale strahlende Ausbeute $\eta_{\mathrm{RE,max}}$ und die Peak-Stromdichte j_{max}, vorkommt, ist anzunehmen, dass darin der Hauptgrund für die beobachteten Abweichungen liegen. Dies wird unterstützt von der Bestimmung der Injektionseffizienz an zwei LEDs aus unterschiedlichen Prozessen, wobei sich Werte von nur 38% als möglich erwiesen, siehe Tabelle 6.2.

Als Injektionseffizienz wurde streng genommen der Anteil der Ladungsträger, die den aktiven Bereich erreichen, definiert. Besteht aber gleichzeitig auch der Verlust von Ladungsträgern aus der aktiven Schicht hinaus, z. B. durch Tunneln, thermionische Emission über die Barriere oder direktes Überschießen über den QW, so kann dies auch mit einer geringeren Injektionseffizienz beschrieben werden.
In Abschnitt 7.1.2 wurden ein-, drei- und fünffach-QW-LED-Strukturen auf Saphir und ULD verglichen. Für die LED-Strukturen auf Saphir zeigte die einfach-QW-Probe die höchste Effizienz und das früheste Überrollen, für die Serie auf ULD die dreifach-QW-Probe. Als mögliche Ursache wurde auch dort die veränderte Injektion in die Quantenfilme diskutiert.
Auch bei der Diskussion der Wellenlängenserie, Abschnitt 7.2, wurde gezeigt, dass bei den bisher betrachteten LED-Strukturen keineswegs von einer konstanten Injektionseffizienz im Bereich von 100% über den gesamten Stromdichtenbereich ausgegangen werden kann, sondern dass sie vor allem bei geringen Stromdichten mit steigender Stromdichte steigt. Nicht eindeutig geklärt werden konnte jedoch, ob die Injektionseffizienz bei noch größeren Stromdichten wieder sinkt oder ob im Maximum 100% erreicht werden.
In Abb. 7.26 erreicht die externe Quanteneffizienz für die Diode auf Saphir ihr Maximum bei geringerer Stromdichte als für ULD oder FS-GaN. Dies bedeutet, dass bei gleicher Stromdichte eine höhere Ladungsträgerdichte im Quantenfilm auf Saphir erreicht wird, was damit auch das beobachtete frühere Abfallen der Effizienz im hohen Stromdichtenbereich erklärt. Das frühere Ansteigen der Quanteneffizienz gilt jedoch zum einen nur für die Dioden mit 3 nm QW-Breite und ist zum anderen in direktem Widerspruch zur höheren Versetzungsdichte der Strukturen auf Saphir. Die höhere Versetzungsdichte verursacht größere Leckströme, wie bei der elektrischen Charakterisierung in Abschnitt 7.3.2 gezeigt wurde, und sollte zusätzlich zu einem höheren SRH-Koeffizienten A und damit zu einer höheren nichtstrahlenden Rekombinationsrate An führen. Beides bedeutet höhere Ladungsträgerverluste für die Struktur auf Saphir als auf ULD und FS-GaN und damit eine geringere Ladungsträgerdichte im QW.
Eine ähnliche Diskussion müsste für die Dioden mit 6 nm QW-Breite auf FS-GaN und mit 11 nm DH-Breite auf ULD gegeben werden, da diese relativ zu den Dioden mit anderer QW-Breite innerhalb der Substrat-Serie besonders hohe Effizienzen auch schon bei kleinen Stromdichten zeigen. Es ist also zu vermuten, dass bei diesen QW-Breiten

jeweils ein Optimum der Injektionseffizienz abhängig von der Versetzungsdichte im Substrat erreicht wird.
Bei schmaleren QW-Breiten könnten die Ladungsträger überschießen und außerhalb des Quantenfilms nichtstrahlend rekombinieren oder im Falle von MQW-Strukturen in weitere Quantenfilme gelangen. Dies würde die höhere Effizienz von Drei- und Fünffach-Quantenfilm-Strukturen auf ULD-Substraten im Vergleich zur Einfach-QW-Struktur erklären und zeigt so, dass die Injektionseffizienz bei schmalen Einfach-QW-LEDs mit sinkender Versetzungsdichte abnimmt.
Eine mögliche Ursache für den Substrateinfluss könnten bei versetzungsarmen Substraten die geringeren Potentialfluktuationen als auf Saphir sein (siehe dazu auch die geringeren Halbwertsbreiten der Photolumineszenz-Spektren in Abb. 7.9), die zu einer schwächeren Lokalisierung der Ladungsträger führen. Ausgehend von QW-Schichtdickenfluktuationen als Ursache der Ladungsträgerlokalisierung nimmt die Lokalisierung bei einer Erhöhung der QW-Breite ab. Dies könnte die hohe Effizienz der 3-nm-QW-LED und auch den Abfall zu größeren QW-Breiten auf Saphir erklären. Gleichzeitig würde das bedeuten, dass der nichtstrahlende Rekombinationskoeffizient A nicht nur vom Substrat, sondern auch von der QW-Breite abhängt, was im Modell nicht berücksichtigt ist.
Eine andere Möglichkeit geben Kumakura *et al.* [172], die die Diffusionslängen in c-Richtung von Minoritätsladungsträgern in Material mit unterschiedlichen Versetzungsdichten experimentell bestimmt haben. Sowohl für Löcher in n-leitendem GaN als auch für Elektronen in p-leitendem GaN wurde ein deutlicher Anstieg der Diffusionslängen mit von $2-3\cdot10^9$ auf $1\cdot10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ sinkender Versetzungsdichte gefunden [172]. Die erhöhten Diffusionslängen könnten damit speziell für Löcher eine höhere Reichweite bei der Injektion in den aktiven Bereich bewirken, womit das Optimum der Rekombination zu breiteren aktiven Schichten hin verschoben würde.
Bei der Diskussion der spektralen Charakterisierung der Emissionsspektren in Abschnitt 7.3.2, wurde ein weiterer Hinweis auf unterschiedliche Injektionsbedingungen gegeben, nämlich eine möglicherweise höhere Hintergrundladungsträgerdichte im aktiven Bereich der Dioden auf ULD und FS-GaN, was sich in einer geringeren Wellenlängenverschiebung besonders bei den Dioden mit 11 nm DH-Breite bemerkbar machte. Inwiefern diese höhere Ladungsträgerdichte der Grund für oder die Folge von veränderten Injektionsbedingungen ist, kann nicht geklärt werden und erfordert noch weitere Untersuchungen, wie zum Beispiel die Aufnahme von Kapazitäts-Spannungs-Profilen, um tiefenaufgelöst die Ladungsträgerkonzentration zu bestimmen.
Unabhängig von der genauen Ursache haben die unterschiedlichen Injektionsbedingungen vor allem bei schmalen QW-Breiten einen großen Einfluss. Damit spielt erst bei breiteren Strukturen, als die der jeweils optimalen Injektion, die nichtstrahlende SRH-Defektrekombination, die über den SRH-Koeffizienten A in der Ratengleichung beschrieben werden kann, die für die Quanteneffizienz entscheidende Rolle. Die hohe Versetzungsdichte auf Saphir kann deshalb die sinkende Quanteneffizienz mit steigender QW-Breite über einen hohen SRH-Koeffizienten A erklären, während die Strukturen auf ULD und FS-GaN durch die geringere Versetzungsdichte weiterhin eine hohe Effizienz zeigen – zusätzlich zu der höheren Materialqualität bei breiten GaInN-Schichten, siehe Diskussion Abschnitt 7.3.2.
Bei hohen Stromdichten ist der Unterschied der Injektionseffizienzen auf den ver-

schiedenen Substraten geringer, wie in Abb. 7.24 anhand des Vergleichs der externen Quanteneffizienzen bei 200 und 700 Acm^{-2} gezeigt wurde. Dabei war die Streuung der Messwerte bei den hohen Stromdichten geringer und der Schichtaufbau des aktiven Bereichs hatte den entscheidenden Einfluss auf die externe Quanteneffizienz, nicht die Injektionseffizienz.
Ausgehend von den in diesem Kapitel vorgestellten Ergebnissen lässt sich damit weder eine sinkende Injektionseffizienz noch ein Auger-Effekt eindeutig als Ursache des nicht-thermischen Überrollens bestimmen, da beide mit zunehmender Ladungsträgerdichte ansteigen. Im Falle eines Auger-artigen Effektes führt die Zunahme der Ladungsträgerdichte direkt zum Ansteigen des Cn^3-Terms, im anderen Falle führt sie zum Auffüllen und Überfließen von Lokalisierungszentren, was in erster Näherung auch durch ein Polynom dritten Grades $\propto n^3$ beschrieben werden kann.

Fazit

Systematische Untersuchungen an verschiedenen Variationen des aktiven Bereiches auf den drei verschiedenen Substraten Saphir, ULD und FS-GaN ergaben:
Dicke GaInN-Schichten und GaInN-Schichten mit hohen In-Gehalten wachsen auf den ULD oder FS-GaN-Substraten mit deutlich besserer Kristallqualität, da die Versetzungen vermutlich als Nukleationskeime für Phasenseparation wirken.
Das nicht-thermische Überrollen kann durch breite aktive Schichten deutlich verringert werden, was ein Hinweis auf einen ladungsträgerdichteabhängigen Prozess als Ursache ist. Es zeigte sich dabei, dass bei Einfach-Quantenfilm-LED-Strukturen die optimale Dicke der aktiven GaInN-Schicht von der Versetzungsdichte abhängt, was durch das Zusammenspiel des ladungsträgerdichteabhängigen nicht-thermischen Überrollens mit der versetzungsdichteabhängigen nichtstrahlenden Rekombinationsrate erklärt werden konnte. Eine weitere Erkenntnis dabei war, dass auch die Injektionseffizienz von der Versetzungsdichte abhängt. Für schmale Einfach-QW-LED-Strukturen sinkt sie mit sinkender Versetzungsdichte und zeigt ein Maximum bei breiteren aktiven Schichten.
Insgesamt zeigte sich, dass eine effektive Reduktion des Effizienzabfalls durch Verwendung breiter GaInN-Filme als aktive Schicht nur auf Substraten mit reduzierter Defektdichte sinnvoll ist, da nur damit gleichzeitig auch bei niedrigen Stromdichten hohe Quanteneffizienzen erreicht werden können.

7.4. Zusammenführung der Ergebnisse

Um die in dieser Arbeit gefundenen positiven Aspekte der Verwendung von defektreduzierten Substraten bei der Epitaxie von LED-Strukturen herauszustellen, werden nun die entscheidenden Ergebnisse kombiniert. Dies ist zum einen die Möglichkeit der Verwendung breiter aktiver Schichten bei gleichzeitig hoher Quanteneffizienz und zum anderen die einfach zu realisierende Steigerung der Extraktionseffizienz durch Aufrauung der N-face Rückseite des FS-GaN Substrats.
Dazu wurde eine 18-nm-DH-LED auf einem rückseitig angeätzten FS-GaN-Substrat abgeschieden und mit NiAu-p-Kontakten lithographisch zu Mesa-LEDs prozessiert.

Zum Vergleich wurden die LED-Struktur mit 11 nm DH-Breite auf ULD und die LED-Struktur mit 3 nm QW-Breite auf Saphir, als jeweils effizienteste LED-Strukturen des jeweiligen Substrattyps, reproduziert und zusammen prozessiert. In Abb. 7.27 ist die $P(I)$-Kennlinie sowie die externe Quanteneffizienz der drei Dioden dargestellt.

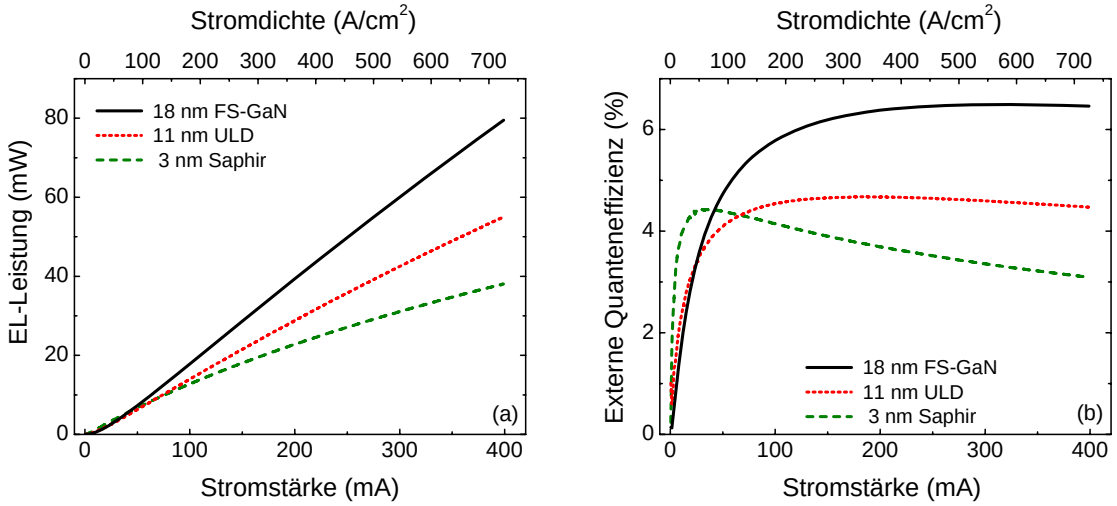


Abbildung 7.27: *EL-Leistung (a) und externe Quanteneffizienz (b) über der gepulst injizierten Stromstärke für Einfach-GaInN-Film-LEDs auf Saphir, ULD und FS-GaN mit auf das Substrat optimierter GaInN-Schichtdicke im lithographischen NiAu-Prozess.*

Die LED auf Saphir mit 3 nm QW-Breite zeigt bei den niedrigsten Stromdichten den steilsten Anstieg der externen Quanteneffizienz [Abb. 7.27(b)], aber zeigt die maximale externe Quanteneffizienz von 4,5% schon bei 70 $\mathrm{Acm^{-2}}$ und weist ein deutliches Überrollen bei höheren Stromdichten auf. Die externe Quanteneffizienz der LED auf ULD mit 11 nm DH-Breite steigt deutlich langsamer, erreicht ein nur wenig höheres Maximum der externen Quanteneffizienz, allerdings bei der hohen Stromdichte von etwa 340 $\mathrm{Acm^{-2}}$. Dieser Trend setzt sich mit der LED auf SSP-FS-GaN mit 18 nm DH-Breite fort, deren externe Quanteneffizienz bei kleinen Strömen noch langsamer ansteigt, dafür jedoch mit 6,5% ein deutlich höheres Maximum bei einer nochmals gesteigerten Stromdichte von 700 $\mathrm{Acm^{-2}}$ erreicht.
Durch den Einsatz der 18 nm breiten DH-Struktur auf einseitig poliertem FS-GaN Substrat konnte damit die EL-Leistung bei 350 mA (gepulst) von 35 mW bei einer 3-nm-QW-LED auf Saphir auf 70 mW gesteigert werden, was einem Faktor 2 entspricht.

8. Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden auf (AlGaIn)N-basierende Leuchtdioden epitaktisch mit dem Verfahren der metallorganischen Gasphasenepitaxie hergestellt und eingehend bezüglich ihrer Material- sowie elektrischen und optischen Eigenschaften charakterisiert. Der Schwerpunkt lag dabei zum einen auf dem tiefergreifenden Verständnis des Einflusses von den aktiven Bereich durchstoßenden Versetzungen auf die Lumineszenz-Eigenschaften von Leuchtdioden, zum anderen auf den sich aus einer reduzierten Versetzungsdichte ergebenden Möglichkeiten zur Variation des Schichtaufbaus des aktiven Bereichs. Besondere Aufmerksamkeit lag dabei auf dem nicht-thermischen Überrollen, das aus wissenschaftlicher Sicht zur Zeit die größte Hürde für die Realisierung von Weißlicht-Leuchtdioden mit gleichzeitig hoher Leuchtdichte sowie hoher Effizienz und damit für einen Erfolg des *Solid-State Lighting* darstellt.

Der Einfluss von Versetzungen auf das Wachstum und die elektro-optischen Charakteristika wurde durch Epitaxie von Leuchtdioden-Strukturen auf verschiedenen Substraten untersucht. Die Strukturen auf Saphir-Substraten mit einer herkömmlichen GaN-Niedertemperatur-Nukleation zeigten eine Versetzungsdichte von $1 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$. Beim Wachstum auf defektreduzierten GaN-Templates und auf freistehenden HVPE-gewachsenen GaN-Substraten wird die Versetzungsdichte direkt vom Substrat bestimmt, was in Versetzungsdichten von $8 \cdot 10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ für Strukturen auf GaN-Templates und $4 \cdot 10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ auf freistehenden GaN-Substraten resultiert.

Bei der systematischen Variation des In-Gehalts der Quantenfilme zwischen 4 und 14%, was in Emissionswellenlängen von 375 bis 435 nm resultiert, zeigten sich deutliche Effizienzsteigerungen beim Einsatz von Substraten mit reduzierter Versetzungsdichte, die sich auf zwei unterschiedliche physikalische Effekte zurückführen lassen. Im kurzwelligen Bereich ergibt sich eine bis zu 6,5-fache Steigerung der Elektrolumineszenz-Leistung, da die Versetzungen selbst als nichtstrahlende Rekombinationszentren wirken. Mit sinkendem In-Gehalt verringert sich die In-induzierte Ladungsträgerlokalisierung, wodurch die laterale Beweglichkeit der Ladungsträger und damit der durchschnittliche Radius, innerhalb dessen die Ladungsträger Versetzungen erreichen können, steigt.

Im langwelligen Bereich ergibt sich eine 2,5-fache Leistungssteigerung indirekt über eine gesteigerte Materialqualität der GaInN-Quantenfilme auf defektreduzierten Substraten. Zum Wachstum des aktiven Bereichs sind niedrige Wachstumstemperaturen um 760 °C erforderlich, bei denen Versetzungen als Nukleationskeime für die binodale Entmischung das GaInN wirken, wodurch Kristalldefekte als weitere nichtstrahlende Rekombinationszentren entstehen.

Die Untersuchung des nicht-thermischen Überrollens in Abhängigkeit vom In-Gehalt der Quantenfilme ergab unabhängig von der Versetzungsdichte eine Verstärkung des Überrollens mit steigendem In-Gehalt. Dabei war diese Verstärkung des Überrollens

mit zunehmender Versetzungsdichte ausgeprägter als bei versetzungsarmen Proben, was darauf schließen lässt, dass die Rekombination an Kristalldefekten eine Ursache für das nicht-thermische Überrollen ist.
Ein weiterer Einblick in den zugrundeliegenden Mechanismus konnte durch die Variation der Breite des Quantenfilms zwischen 3 und 18 nm bei Einfach-Quantenfilm-Leuchtdioden erlangt werden. Es zeigte sich, dass die für hohe Quanteneffizienz optimale Breite der aktiven Schicht von der Versetzungsdichte abhängt, und ferner, dass auch die Injektionseffizienz der Ladungsträger in den Quantenfilm mit der Versetzungsdichte variiert. Dabei ergaben schmale Quantenfilme auf allen Substraten hohe Quanteneffizienzen, aber ein ausgeprägtes Überrollen bei höheren Stromdichten. Dieses verringerte sich mit Verbreiterung des Quantenfilms, womit auf den defekt-reduzierten Substraten auch bei breiten Doppelheterostrukturen hohe Quanteneffizienzen erreicht werden, nicht jedoch auf Saphir. Durch den Einsatz einer 18 nm breiten DH-Struktur auf einseitig poliertem FS-GaN Substrat konnte damit die Elektrolumineszenz-Leistung bei 350 mA (gepulst) im Vergleich zur effizientesten Leuchtdiode auf Saphir mit einem 3 nm breiten Quantenfilm von 35 mW auf 70 mW gesteigert werden, was einem Faktor 2 entspricht.
Die gefundenen Abhängigkeiten konnten durch ein Ratengleichungsmodell erklärt werden, bei dem der für das Überrollen verantwortliche nichtstrahlende Effekt mit einer Auger-artigen kubischen Ladungsträgerdichte-Abhängigkeit beschrieben wird und die unterschiedliche Versetzungsdichte der Substrate durch eine linear zur Ladungsträgerdichte abhängige nichtstrahlende Rekombinationsrate repräsentiert wird. Da im Experiment jedoch auch die Injektionseffizienz zwischen den Substraten und Quantenfilm-Breiten variiert, kann nicht eindeutig zwischen einem injektions- oder ladungsträgerdichteabhängigen Prozess als Ursache des nicht-thermischen Überrollens entschieden werden.
Ein entscheidender Parameter für eine effiziente Ladungsträgerinjektion ist die Lage der Dotierstoffprofile relativ zum aktiven Bereich. Dies gilt insbesondere im Fall von Mg in GaN, da Mg zum einen der wichtigste p-Dotierstoff und zum anderen ein nichtstrahlendes Rekombinationszentrum ist. Anhand tiefenaufgelöster Mg-Konzentrationsprofile wurde der Diffusionsmechanismus von Mg in GaN untersucht, der bei Wachstumstemperaturen von höher als 1025°C zu messbarer Diffusion führt. Es kommt zur Ausbildung eines Plateaus im Mg-Konzentrationsprofil, was auf eine Beteiligung von mindestens zwei unterschiedlichen Diffusionsprozessen schließen lässt. Der für das Wachstum von Leuchtdioden entscheidende Prozess zeichnet sich dabei durch einen von der Mg-Konzentration abhängigen Diffusionskoeffizienten aus, für den eine Aktivierungsenergie von 4,5 eV bestimmt wurde.

Insgesamt konnte mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit ein wichtiger Beitrag zur wissenschaftlichen Diskussion um das nicht-thermische Überrollen der Hochstromeffizienz von GaInN-Leuchtdioden erbracht und der Einfluss von Versetzungen auf das Wachstum von GaInN-Schichten geklärt werden. Besonders hervorzuheben ist die 18 nm breite Doppelheterostruktur als aktiver Bereich einer Leuchtdioden-Struktur auf freistehendem GaN, mit der eine hohe Quanteneffizienz über einen großen Stromdichtebereich und ein Ausbleiben des nicht-thermischen Überrollens bis Stromdichten von 700 Acm^{-2} erzielt wurden.

A. Anhang

A.1. Transmission und Absorption in dicken GaN-Schichten

Die Rückseitenstrukturierung von FS-GaN-Substraten führt zu einer erhöhten Lichtauskopplung und zu einer Verringerung des in der Probe geführten Lichts. Damit kommt es zu einer effektiven Verkürzung der optischen Weglänge im GaN und der Verringerung von zusätzlichen Verlusten durch Absorption. Im Vergleich zu LED-Strukturen auf Saphir muss das Licht bei rückseitiger Extraktion auf FS-GaN statt den nur etwa $4\,\mu$m GaN-Puffer aber eine ca. $330\,\mu$m weite Strecke im GaN durchlaufen.
Um den Einfluss des verlängerten Lichtweges im GaN zu untersuchen, wird im Folgenden die spektrale Transmission bzw. Absorption der verwendeten GaN-Substrate bestimmt.
Die Transmission T ist die durch die Strecke d transmittierte Lichtintensität I (oder alternativ Lichtleistung P) im Verhältnis zur eingestrahlten Intensität I_0:

$$T = \frac{I}{I_0} \tag{A.1}$$

Wobei die Transmission T und die Reflexion R mit der Absorption A über

$$1 = R + T + A \tag{A.2}$$

zusammenhängen. Ohne Berücksichtigung von Mehrfachreflexion und -interferenz an Vorder- und Rückseite einer planparallelen Platte ergibt sich folgender Zusammenhang zur Bestimmung des Absorptionskoeffizienten α [173]:

$$T = \frac{I}{I_0} = (1 - R)^2\, e^{-\alpha d} \tag{A.3}$$

wobei R und T experimentell gemessen werden und die Schichtdicke d bekannt ist.
Um den Absorptionskoeffizienten α über einen weiten Bereich bestimmen zu können, wurde deshalb die Transmission T an unterschiedlich dicken GaN-Schichten von 2 und $40\,\mu$m auf doppelseitig polierten (DSP) Saphirsubstraten gemessen. Die Messung an unterschiedlichen Schichtdicken ist notwendig, da die Messwerte der Transmissionsmessung nur über maximal zwei Größenordnungen zwischen $T = 0,05$ und $T = 0,95$ zuverlässig auswertbar sind. In Abb. A.1 ist der Absorptionskoeffizient α für die zwei Proben im Bereich der Bandkante E_{gap} von GaN über der Wellenlänge dargestellt.
Mit sinkender Wellenlänge steigt der Absorptionskoeffizient von einem Wert $\alpha \approx 5\,\mathrm{cm}^{-2}$ bei 385 nm relativ flach bis auf $5 \cdot 10^4\,\mathrm{cm}^{-2}$ bei 361 nm an. Dabei ist zu

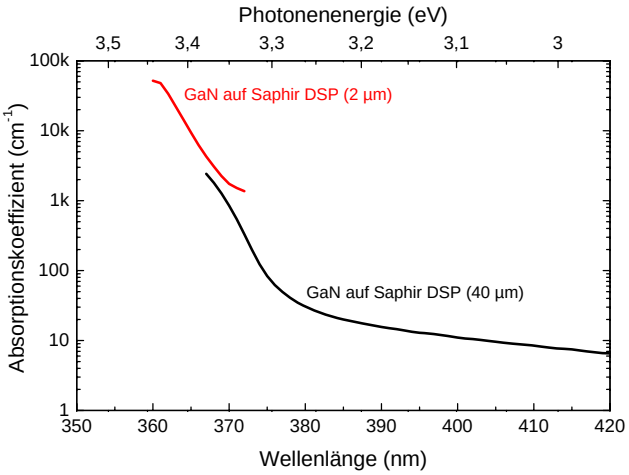
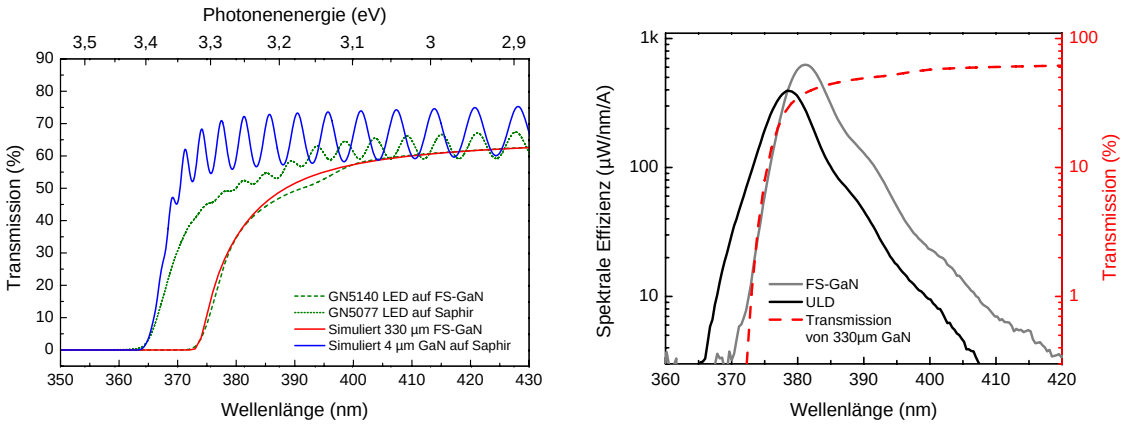


Abbildung A.1: *Absorptionskoeffizient α aufgetragen über der Wellenlänge für 2 unterschiedlich dicke GaN-Schichten mit 2 und 40 µm GaN auf doppelseitig poliertem Saphir.*

beachten, dass im Photonenenergiebereich unterhalb der einsetzenden Absorption ($E < 3{,}22\,\text{eV}$ bzw. $\lambda > 385\,\text{nm}$) der absolute Wert von α nicht mehr zuverlässig ist, da selbst geringe Streuverluste, die weder in der Reflexions- noch in den Transmissionsmessungen erfasst werden, den Wert von α erhöhen. Die Streuverluste können z. B. durch die leichte Rauigkeit der Oberfläche nach der Epitaxie entstehen.
Das frühe Einsetzen der Absorption bei etwa 385 nm hat einen großen Einfluss auf die Extraktionseffizienz η_{ex} für LED-Strukturen auf FS-GaN mit Emissionswellenlänge $\lambda_{\text{EL}} < 390\,\text{nm}$. Dies ist in Abb. A.2(a) als Vergleich von gemessenen und simulierten Transmissionsspektren dargestellt.
Beim Übergang von LED-Strukturen auf Saphir zu Strukturen auf FS-GaN zeigen die experimentellen Spektren eine Verschiebung des Einbruchs der Transmission um etwa 10 nm zu längeren Wellenlängen hin. Die Simulation wurde mit der Software VASE auf Basis des in Abb. A.1 bestimmten Absorptionskoeffizienten und zusätzlichen Ellipsometrie-Messungen durchgeführt und gibt sehr gut die experimentell gefundene Verschiebung wieder. Der direkte Einfluss auf die EL-Emissionsspektren, und damit auch auf die EL-Leistung, ist in Abb. A.2(b) gezeigt. Während das Emissionsspektrum einer bei $\lambda_{\text{EL}} = 378\,\text{nm}$ emittierenden LED auf ULD an der kurzwelligen Flanke bis auf 366 nm reicht, wird das Spektrum der LED auf FS-GaN mit $\lambda_{\text{EL}} = 382\,\text{nm}$ schon bei 372 nm abgeschnitten. Durch diese früh einsetzende Absorption im FS-GaN-Substrat wird nicht nur die Intensität an der Flanke, sondern auch in der Peakhöhe verringert, wie aus einem Vergleich mit dem ebenfalls gezeigten Transmissionspektrum zu sehen ist.
Neben der Substratrückseite muss also auch die Absorption in der gesamten GaN-Schicht berücksichtigt werden, wenn der Vergleich von EL-Spektren und -Leistungen zwischen LED-Strukturen auf verschiedenen Substraten vorgenommen wird. Dies gilt insbesondere für LEDs mit Emissionswellenlängen $< 390\,\text{nm}$ auf FS-GaN-Substraten.



(a) (b)

Abbildung A.2: *(a) Transmission T aufgetragen über der Wellenlänge λ für LED-Strukturen auf Saphir und FS-GaN im Vergleich zu mit VASE simulierten Transmissionsspektren. (b) Emissionsspektrum kurzwelliger LED-Strukturen auf ULD und FS-GaN mit rückseitiger Lichtextraktion und ein Transmissionsspektrum eines 330 µm dicken GaN-Substrats.*

A.2. Verschiedene FS-GaN-Substratchargen

Wie schon in Abschnitt 5.3 beschrieben, war die Oberflächenpolitur der GaN-Substrate aus den ersten Chargen nicht von gleichbleibender Qualität. Es zeigte sich, dass die Qualitätsprobleme des Herstellers auch bei weiteren Chargen bestanden.
Abbildung A.3 vergleicht die EL-Leistung P_{EL} von reproduzierten LED-Strukturen der Probe 6 auf einem SSP-Substrat der Charge 2 mit einem der Charge 4. Die vom Hersteller angegebene TDD ist $6 \cdot 10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ (2. Charge) und $4 \cdot 10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ (4. Charge). Die gemessenen Werte sind mit $7 \cdot 10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ (EPD, 2. Charge) und $5 \cdot 10^7\,\mathrm{cm}^{-2}$ (GPD, 4. Charge) in qualitativer Übereinstimmung mit den Herstellerangaben.
Die maximale EL-Leistung bei 40 mA auf Charge 2 beträgt 10 mW und ist damit im Vergleich zu Probe 6 etwa 3 mW dunkler [Abb. 5.7(c)]. Auf dem Substrat der Charge 4 beträgt die maximale Leistung $P_{\mathrm{EL}} = 6$ mW. Da die Repros viele Epitaxie-Runs nach Probe 6 gewachsen wurden, lassen sich die Unterschiede zum Teil durch leicht veränderte Wachstumsbedingungen (wie z. B. reale Temperaturänderung durch unterschiedlichen Bedeckungsgrad des Liners) im Reaktor erklären, denen im Vorfeld nicht gegen gesteuert werden kann. Der große Unterschied zwischen den zeitnah epitaxierten Repros untereinander muss allerdings durch das Substrat verursacht sein.
REM-Aufnahmen der Substratrückseiten sind in Abb. A.3(c) und (d) gezeigt. Während das Substrat der zweiten Charge die bekannten Pyramiden mit klarer hexagonaler Symmetrie aufweist, sind auf der Rückseite der vierten Charge halbkugelförmige Erhebungen zu sehen, die keine klaren Kristallebenen aufweisen. Dies kann zu einer verminderten Extraktioseffizienz η_{ex} führen und dadurch einen Teil der geringeren EL-Leistung erklären.
In Abb. A.4(a) sind die $P(I)$-Kennlinien der Dioden im Zentrum der Wafer verglichen. Die Leistung der Diode auf einem Substrat der zweiten Charge liegt über den

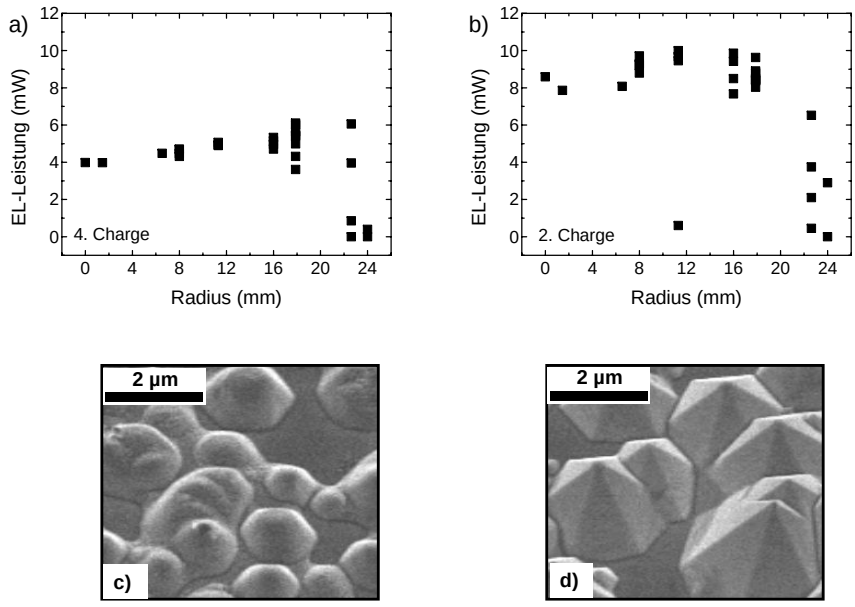
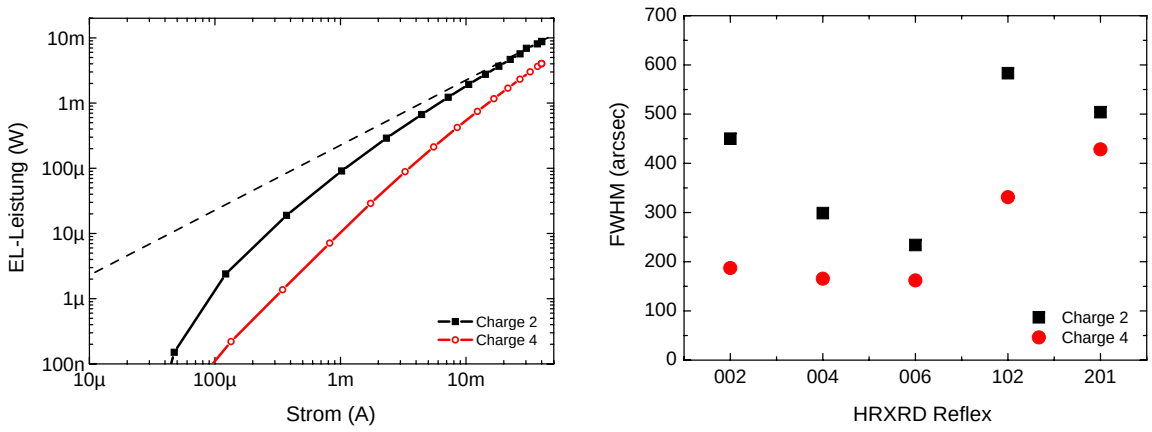


Abbildung A.3: *Radiale Verteilung der EL-Leistung bei 40 mA von TQW-LED-Strukturen auf SSP FS-GaN Substrat mit REM-Aufnahmen der Waferrückseite. Bild (a) und (c) ist ein Substrat der 4. Charge und Bilder (b) und (d) der 2. Charge.*

kompletten Strombereich über der Leistung der vierten Charge. Der vertikale Abstand der Kennlinien ist dabei nicht konstant, sondern wird mit steigendem Strom kleiner. Dies bedeutet im logarithmischen Plot, dass die effizientere Diode nicht um einen konstanten Faktor heller ist als die andere und bedeutet gleichzeitig, dass die Leistungssteigerung kein reiner Auskoppeleffekt sein kann.
Die Überprüfung der Kristallqualität ist in Abb. A.4(b) anhand der FWHM von HRXRD-ω-Scans dargestellt. Die Halbwertsbreiten aller gemessenen Reflexe der LED-Struktur auf dem Substrat vierter Charge sind bis zu 50% schmaler als die der zweiten Charge. Entgegen den EL-Leistungen spricht dies für eine bessere Kristallqualität der vierten Charge, in Übereinstimmung mit den TDD. Jedoch muss beachtet werden, dass diese Werte durch die Oberflächenrauigkeit, die endliche Kristallitgröße und die Krümmung der Netzebenen verfälscht sein können.
Auf mögliche Verunreinigungen in den Substraten oder auf deren Rückseite, die während der Epitaxie verdampfen und in der LED-Struktur eingebaut werden könnten, wurde über SIMS-Messungen gesucht. Es ergab sich jedoch kein verwertbares Ergebnis, welches auf Unterschiede zwischen den Substratchargen schließen ließe.
Abbildung A.5 vergleicht die maximalen EL-Leistung von TQW-LED-Strukturen auf SSP-FS-GaN-Substraten verschiedener Chargen in chronologischer Reihenfolge. Mit späterem Epitaxiezeitpunkt ist zwar ein Trend zu abnehmenden EL-Leistung sichtbar, der vermutlich von einer Temperaturdrift verursacht wird, trotzdem lässt sich ein klarer Einfluss des Substrates ausmachen. Die maximalen EL-Leistungen wurden ausschließlich mit Substraten der zweiten Charge erzielt, die minimalen mit Substraten der fünften Charge. Offensichtlich hat der Hersteller Probleme, FS-GaN-Substrate in konstanter Qualität zu produzieren. Trotz intensiver paralleler Charakterisierung



(a) (b)

Abbildung A.4: *(a) P(I)-Kennlinie von TQW-LED-Strukturen auf SSP-FS-GaN Substraten der 4. Charge und 2. Charge und (b) FWHM ausgewählter HRXRD-Reflexe im ω-Scan an diesen Substraten.*

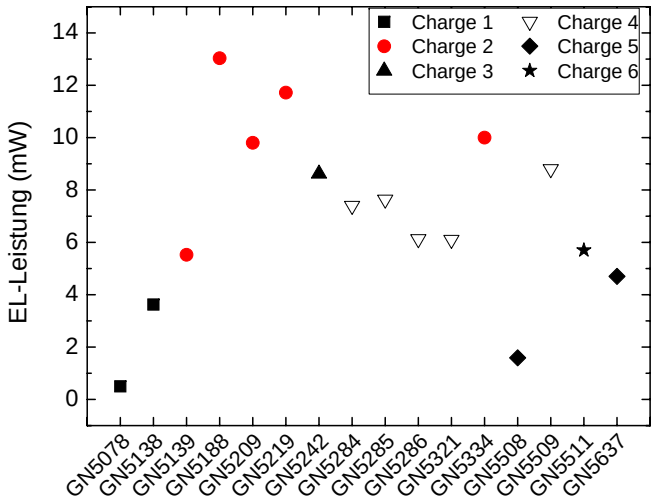


Abbildung A.5: *Maximale EL-Leistung für TQW-LED-Strukturen auf SSP-FS-GaN-Substraten verschiedener Chargen in chronologischer Reihenfolge über der Epitaxienummer. Die EL-Leistungen sind mit Pt-Kontakten gemessen oder auf Pt-Kontakte rekalibriert.*

mittels SIMS, HRXRD und REM konnte die zugrundeliegende Ursache der Qualitätsunterschiede aber nicht gefunden werden.

A.3. Zuordnung von Epitaxienummern zu Abbildungen

Abbildung oder Abschnitt	Epitaxienummer
Abb. 4.10	GN5007/-16/-17/-23
Abb. 4.13	GN5412-20,-64,-66
Abb. 4.14	GN5474-78
Abb. 4.15	(a) GN5492-95
	(b) GN5514-21
Kapitel 6.2, erster Abschnitt	GN5399 und GN5409
Abb. 6.8	GN5504 und GN5505
Abb. 7.4	GN5378-80, GN5441-44

Publikationen

Veröffentlichungen

J. Wagner, Ch. Y. Wang, C.-C. Röhlig, **M. Maier**, M. Kunzer, T. Passow, W. Schirmacher, W. Pletschen, V. Cimalla, K. Köhler und O. Ambacher. (AlGaIn)N UV LEDs for integrated metal-oxide based ozone sensors. *Proc. SPIE*, 6910(1):69100X, 2008.

M. Kunzer, C.-C. Leancu, **M. Maier**, K. Köhler, U. Kaufmann und J. Wagner. Well width dependent luminescence characteristics of UV-violet emitting GaInN QW LED structures. *Phys. Status Solidi C*, 5(6):2170–2172, 2008.

M. Maier, K. Köhler, M. Kunzer, J. Wiegert, S. Liu, U. Kaufmann und J. Wagner. Enhancement of (AlGaIn)N near-UV LED efficiency using freestanding GaN substrate. *Phys. Status Solidi C*, 5(6):2133–2135, 2008.

L. Kirste, K. Köhler, **M. Maier**, M. Kunzer, M. Maier und J. Wagner. SIMS depth profiling of Mg back-diffusion in (AlGaIn)N light-emitting diodes. *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.*, 19, 176-181, 2008.

K. Köhler, J. Wiegert, H. P. Menner, **M. Maier** und L. Kirste. The surface potential of GaN:Si. *J. Appl. Phys.*, 103, 023706, 2008.

T. Passow, **M. Maier**, M. Kunzer, C.-C. Leancu, S. Liu, J. Wiegert, R. Schmidt, K. Köhler und J. Wagner. Influence of substrate dislocation density and quantum well width on the quantum efficiency of violet-emitting GaInN/GaN light-emitting diodes. *Phys. Status Solidi C* 6, No. S2, S833-S836, 2009.

K. Köhler, **M. Maier**, L. Kirste, J. Wiegert und H. Menner. Determination of the surface potential of GaN:Si. *Phys. Status Solidi C* 6, No. S2:S937-S939, 2009.

M. Maier, K. Köhler, M. Kunzer, W. Pletschen und J. Wagner. Reduced nonthermal rollover of wide-well GaInN light-emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.*, 94(4):041103, 2009.

M. Maier, T. Passow, M. Kunzer, W. Schirmacher, W. Pletschen, L. Kirste, K. Köhler und J. Wagner. Reduced non-thermal roll-over in violet-emitting GaInN wide-well LEDs grown on low-dislocation-density substrates. *Proc. SPIE*, 7231(1):72310K, 2009.

J. Danhof, C. Vierheilig, U. Schwarz, T. Meyer, M. Peter, B. Hahn, **M. Maier**, und J. Wagner. Correlation of surface morphology and photoluminescence fluctuation in green light emitting InGaN/GaN quantum wells. *Phys. Status Solidi C*, 6, No. S2:S747-S750, 2009.

M. Maier, T. Passow, M. Kunzer, W. Pletschen, S. Liu, J. Wiegert, R. Schmidt, K. Köhler und J. Wagner. Efficiency and non-thermal roll-over of violet emitting GaInN light-emitting diodes grown on substrates with different dislocation densities. *Phys. Status Solidi C*, 6, No. 6:1412–1415, 2009

Tagungsbeiträge

M. Maier, J. Wiegert, K. Köhler, M. Kunzer, C.C. Leancu, M. Maier und J. Wagner. Near-UV LEDs on low defect density substrates grown by MOCVD. *Summer School on Wide-bandgap Semiconductor Quantum Structures*, Ascona, Schweiz, 27.08 bis 1.09.2006.

L. Kirste, K. Köhler, **M. Maier**, M. Kunzer, M. Maier und J. Wagner. SIMS depth profiling of Mg back-diffusion in (AlGaIn)N light-emitting diodes. *12^{th} Int. Conf. on Defects-Recognition, Imaging and Physics in Semiconductors (DRIP XII) 2007*, Berlin, Deutschland, 9. bis 13.09.2007.

L. Kirste, M. Maier, **M. Maier**, J. Wiegert und K. Köhler. Depth profiling of Mg in (AlGaIn)N light-emitting diodes with SIMS. *16^{th} Int. Conf. on Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS XVI)*, Kanazawa, Japan, 29.10. bis 2.11.2007.

M. Maier, K. Köhler, M. Kunzer, J. Wiegert, S. Liu, U. Kaufmann und J. Wagner. Enhancement of (AlGaIn)N near-UV LED efficiency using freestanding GaN substrate. *Int. Conf. on Nitride Semiconductors (ICNS-7)*, Las Vegas, USA, 20.09.2007.

J. Wagner, Ch. Y. Wang, C.-C. Röhlig, **M. Maier**, M. Kunzer, T. Passow, W. Schirmacher, W. Pletschen, V. Cimalla, K. Köhler und O. Ambacher. (AlGaIn)N UV LEDs for integrated metal-oxide based ozone sensors. *SPIE Photonics West 2008*, San José, USA, 19. bis 24.01.2008.

M. Maier, Ch. Y. Wang, C.-C. Röhlig, M. Kunzer, T. Passow, V. Cimalla, K. Köhler, J. Wagner und O. Ambacher Near-UV emitting GaN/GaInN/AlGaN QW LEDs: Efficiency enhancement and use in integrated InO-based ozone sensors. *Int. Symp. on Semiconductor Light Emitting Devices (ISSLED 2008)*, Phoenix, USA, 2.05.2008.

M. Maier, T. Passow, M. Kunzer, W. Pletschen, S. Liu, J. Wiegert, R. Schmidt, K. Köhler und J. Wagner. Efficiency and non-thermal roll-over of violet emitting GaInN light-emitting diodes grown on substrates with different dislocation densities. *Int. Symp. on Compound Semiconductors (ISCS 2008)*, Rust, Deutschland, 23.09.2008.

T. Passow, **M. Maier**, M. Kunzer, C.-C. Leancu, S. Liu, J. Wiegert, R. Schmidt, K. Köhler und J. Wagner. Influence of substrate dislocation density and quantum well width on the quantum efficiency of violet-emitting GaInN/GaN light-emitting diodes. *International Workshop on Nitride semiconductors (IWN2008)*, Montreaux, Schweiz, 9.10.2008.

K. Köhler, **M. Maier**, L. Kirste, J. Wiegert und H. Menner. Determination of the surface potential of GaN:Si. *International Workshop on Nitride semiconductors (IWN2008)*, Montreaux, Schweiz, 8.10.2008.

J. Danhof, C. Vierheilig, U. Schwarz, T. Meyer, M. Peter, B. Hahn, **M. Maier**, und J. Wagner. Correlation of surface morphology and photoluminescence fluctuation in green light emitting InGaN/GaN quantum wells. *International Workshop on Nitride semiconductors (IWN2008)*, Montreaux, Schweiz, 9.10.2008.

M. Maier, T. Passow, M. Kunzer, W. Schirmacher, W. Pletschen, L. Kirste, K. Köhler und J. Wagner. Reduced non-thermal roll-over in violet-emitting GaInN wide-well LEDs grown on low-dislocation-density substrates. *SPIE Photonics West 2009*, San José, USA, 28.01.2009.

J. Danhof, C. Vierheilig, U. Schwarz, T. Meyer, M. Peter, B. Hahn, **M. Maier**, und J. Wagner. Sub micrometer photoluminescence fluctuations in green light emitting InGaN/GaN quantum wells. *Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Sektion Kondensierte Materie*, Dresden, Deutschland, 22.-27.03.2009.

Literaturverzeichnis

[1] "Phasing out incandescent bulbs in the EU." Pressemitteilung IP/08/1909, 4. Treffen des Ökodesign-Regelungsausschusses, 8. Dezember 2008.

[2] Internet-Website, ""http://www.osram.de/osram_de/consumer/index.html", "http://www.lighting.philips.com/de_", sowie: "http://www.energie-bewusstsein.de/index.php?page=thema_strom_beleuchtung"."

[3] S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, "Candela-class high-brightness InGaN/AlGaN double-heterostructure blue-light-emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 64, no. 13, pp. 1687–1689, 1994.

[4] P. Schlotter, R. Schmidt, and J. Schneider, "Luminescence conversion of blue light emitting diodes," *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.*, vol. 64, no. 4, p. 417, 1997.

[5] Copyright by Automotive Lighting Reutlingen GmbH, 2009. Internetauftritt: "http://www.al-lighting.de".

[6] B. Wessler. OSRAM Opto Semiconductors, World of Photonics Congress 2009.

[7] A. Michiue, T. Miyoshi, T. Yanamoto, T. Kozaki, S. ichi Nagahama, Y. Narukawa, M. Sano, T. Yamada, and T. Mukai, "Recent development of nitride LEDs and LDs," *Gallium Nitride Materials and Devices IV*, vol. 7216, no. 1, p. 72161Z, 2009.

[8] Cree, Inc., "Cree Achieves 161 Lumens per Watt from a High-Power LED." Pressemitteilung, Durham, N.C., November 19, 2008. http://www.cree.com/press/press_detail.asp?i=1227101620851.

[9] D. Morita, M. Yamamoto, K. Akaishi, K. Matoba, K. Yasutomo, Y. Kasai, M. Sano, S. Nagahama, and T. Mukai, "Watt-class high-output-power 365 nm ultraviolet light-emitting diodes," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 43, pp. 5945–5950, SEP 2004.

[10] J. Schalwig, G. Müller, U. Karrer, M. Eickhoff, O. Ambacher, M. Stutzmann, L. Görgens, and G. Dollinger, "Hydrogen response mechanism of Pt–GaN Schottky diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 80, no. 7, pp. 1222–1224, 2002.

[11] S. J. Pearton and F. Ren, "Gan electronics," *Advanced Materials*, vol. 12, no. 21, pp. 1571–1580, 2000.

[12] I. Vurgaftman and J. R. Meyer, "Band parameters for nitrogen-containing semiconductors," *J. Appl. Phys.*, vol. 94, no. 6, pp. 3675–3696, 2003.

[13] H. Morkoc, *Handbook of Nitride Semiconductors and Devices Vol.1 : Materials Properties, Physics and Growth*. Wiley Vch Verlag Gmbh, 2008.

[14] D. Schikora, M. Hankeln, D. J. As, K. Lischka, T. Litz, A. Waag, T. Buhrow, and F. Henneberger, "Epitaxial growth and optical transitions of cubic GaN films," *Phys. Rev. B*, vol. 54, pp. R8381–R8384, Sep 1996.

[15] C. Caetano, L. K. Teles, M. Marques, J. A. Dal Pino, and L. G. Ferreira, "Phase stability, chemical bonds, and gap bowing of $In_xGa_{1-x}N$ alloys: Comparison between cubic and wurtzite structures," *Phys. Rev. B*, vol. 74, no. 4, p. 045215, 2006.

[16] O. Ambacher, "Growth and applications of Group III-nitrides," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 31, no. 20, pp. 2653–2710, 1998.

[17] F. A. Ponce, D. P. Bour, W. T. Young, M. Saunders, and J. W. Steeds, "Determination of lattice polarity for growth of GaN bulk single crystals and epitaxial layers," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, no. 3, pp. 337–339, 1996.

[18] M. Seelmann-Eggebert, J. L. Weyher, H. Obloh, H. Zimmermann, A. Rar, and S. Porowski, "Polarity of (00.1) GaN epilayers grown on a (00.1) sapphire," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 71, no. 18, pp. 2635–2637, 1997.

[19] K. M. Yu, Z. Liliental-Weber, W. Walukiewicz, W. Shan, J. W. Ager, III, S. X. Li, R. E. Jones, E. E. Haller, H. Lu, and W. J. Schaff, "On the crystalline structure, stoichiometry and band gap of InN thin films," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 86, no. 7, p. 071910, 2005.

[20] M. A. Moram and M. E. Vickers, "X-ray diffraction of III-nitrides," *Rep. Prog. Phys.*, vol. 72, no. 3, p. 036502 (40pp), 2009.

[21] K. Lorenz, N. Franco, E. Alves, I. M. Watson, R. W. Martin, and K. P. O'Donnell, "Anomalous Ion Channeling in AlInN/GaN Bilayers: Determination of the Strain State," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 97, no. 8, p. 085501, 2006.

[22] J. W. Matthews and A. E. Blakeslee, "Defects in epitaxial multilayers. I. Misfit dislocations," *J. Cryst. Growth*, vol. 27, p. 118, 1974.

[23] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, "Band-Edge Electroabsorption in Quantum Well Structures: The Quantum-Confined Stark Effect," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 53, pp. 2173–2176, Nov 1984.

[24] S. F. Chichibu, A. Uedono, T. Onuma, B. A. Haskell, A. Chakraborty, T. Koyama, P. T. Fini, S. Keller, S. P. DenBaars, J. S. Speck, U. K. Mishra, S. Nakamura, S. Yamaguchi, S. Kamiyama, H. Amano, I. Akasaki, J. Han, and T. Sota, "Origin of defect-insensitive emission probability in In-containing (Al,In,Ga)N alloy semiconductors," *Nat. Mater.*, vol. 5, p. 810, 2006.

[25] U. T. Schwarz and M. Kneissl, "Nitride emitters go nonpolar," *Phys. Status Solidi RRL*, vol. 1, no. 3, pp. A44–A46, 2007.

[26] P. Waltereit, O. Brandt, A. Trampert, H. T. Grahn, J. Menniger, M. Ramsteiner, M. Reiche, and K. H. Ploog, "Nitride semiconductors free of electrostatic fields for efficient white light-emitting diodes," *Nature*, vol. 406, pp. 865–868, Aug. 2000.

[27] K.-C. Kim, M. C. Schmidt, H. Sato, F. Wu, N. Fellows, Z. Jia, M. Saito, S. Nakamura, S. P. DenBaars, J. S. Speck, and K. Fujito, "Study of nonpolar m-plane InGaN/GaN multiquantum well light emitting diodes grown by homoepitaxial metal-organic chemical vapor deposition," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 18, p. 181120, 2007.

[28] M. C. Schmidt, K.-C. Kim, H. Sato, N. Fellows, H. Masui, S. Nakamura, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, "High Power and High External Efficiency *m*-Plane InGaN Light Emitting Diodes," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 7, pp. L126–L128, 2007.

[29] K. T. Delaney, P. Rinke, and C. G. V. de Walle, "Auger recombination rates in nitrides from first principles," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 19, p. 191109, 2009.

[30] J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. A. III, 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.*, vol. 80, no. 21, pp. 3967–3969, 2002.

[31] M. Moret, B. Gil, S. Ruffenach, O. Briot, C. Giesen, M. Heuken, S. Rushworth, T. Leese, and M. Succi, "Optical, structural investigations and band-gap bowing parameter of GaInN alloys," *J. Cryst. Growth*, vol. In Press, Corrected Proof, pp. –, 2009.

[32] B. Santic, "On the hole effective mass and the free hole statistics in wurtzite GaN," *Semicond. Sci. Technol.*, no. 4, p. 219, 2003.

[33] S. C. Jain, M. Willander, J. Narayan, and R. V. Overstraeten, "III–nitrides: Growth, characterization, and properties," *J. Appl. Phys.*, vol. 87, no. 3, pp. 965–1006, 2000.

[34] Y. Oshima, T. Yoshida, T. Eri, M. Shibata, and T. Mishima, "Thermal and Electrical Properties of High-Quality Freestanding GaN Wafers with High Carrier Concentration," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 45, no. 10A, pp. 7685–7687, 2006.

[35] U. Kaufmann, P. Schlotter, H. Obloh, K. Köhler, and M. Maier, "Hole conductivity and compensation in epitaxial GaN:Mg layers," *Phys. Rev. B*, vol. 62, no. 16, pp. 10867–10872, 2000.

[36] Y. Taniyasu, M. Kasu, and T. Makimoto, "An aluminium nitride light-emitting diode with a wavelength of 210 nanometres," *Nature*, vol. 441, pp. 325–328, May 2006.

[37] 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)GaN/GaN hetero- and quantum well structures," *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 14, no. 13, pp. 3399–3434, 2002.

[38] P. Perlin, T. Swietlik, L. Marona, R. Czernecki, T. Suski, M. Leszczynski, I. Grzegory, S. Krukowski, G. Nowak, G. Kamler, A. Czerwinski, M. Plusa, M. Bednarek, J. Rybinski, and S. Porowski, "Fabrication and properties of GaN-based lasers," *J. Cryst. Growth*, vol. 310, no. 17, pp. 3979 – 3982, 2008.

[39] I. Grzegory, "High pressure growth of bulk GaN from solutions in gallium," *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 13, no. 32, pp. 6875–6892, 2001.

[40] B. Lucznik, B. Pastuszka, I. Grzegory, M. Bockowski, G. Kamler, E. Litwin-Staszewska, and S. Porowski, "Deposition of thick GaN layers by HVPE on the pressure grown GaN substrates," *J. Cryst. Growth*, vol. 281, no. 1, pp. 38 – 46, 2005.

[41] P. R. Hageman, V. Kirilyuk, W. H. M. Corbeek, J. L. Weyher, B. Lucznik, M. Bockowski, S. Porowski, and S. Müller, "Thick GaN layers grown by hydride vapor-phase epitaxy: hetero- versus homo-epitaxy," *J. Cryst. Growth*, vol. 255, no. 3-4, pp. 241 – 249, 2003.

[42] M. D'Evelyn, H. Hong, D.-S. Park, H. Lu, E. Kaminsky, R. Melkote, P. Perlin, M. Lesczynski, S. Porowski, and R. Molnar, "Bulk GaN crystal growth by the high-pressure ammonothermal method," *J. Cryst. Growth*, vol. 300, no. 1, pp. 11 – 16, 2007.

[43] R. Dwilinski, R. Doradzinski, J. Garczynski, L. Sierzputowski, J. M. Baranowski, and M. Kamiska, "Exciton photo-luminescence of GaN bulk crystals grown by the AMMONO method," *Mater. Sci. Eng. B*, vol. 50, no. 1-3, pp. 46 – 49, 1997.

[44] T. Hashimoto, F. Wu, J. S. Speck, and S. Nakamura, "Growth of Bulk GaN Crystals by the Basic Ammonothermal Method," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 37, pp. L889–L891, 2007.

[45] T. Fukuda and D. Ehrentraut, "Prospects for the ammonothermal growth of large GaN crystal," *J. Cryst. Growth*, vol. 305, no. 2, pp. 304 – 310, 2007.

[46] R. Dwilinski, R. Doradzinski, J. Garczynski, L. Sierzputowski, A. Puchalski, Y. Kanbara, K. Yagi, H. Minakuchi, and H. Hayashi, "Bulk ammonothermal GaN," *J. Cryst. Growth*, vol. In Press, Corrected Proof, pp. –, 2009.

[47] R. Dwilinski, R. Doradzinski, J. Garczynski, L. Sierzputowski, M. Zajac, and M. Rudzinski, "Homoepitaxy on bulk ammonothermal GaN," *J. Cryst. Growth*, vol. In Press, Corrected Proof, pp. –, 2009.

[48] R. A. Logan and C. D. Thurmond, "Heteroepitaxial Thermal Gradient Solution Growth of GaN," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 119, no. 12, pp. 1727–1735, 1972.

[49] S. Hussy, E. Meissner, P. Berwian, J. Friedrich, and G. Müller, "Low-pressure solution growth (LPSG) of GaN templates with diameters up to 3 inch," *J. Cryst. Growth*, vol. 310, no. 4, pp. 738 – 747, 2008.

[50] F. Kawamura, M. Tanpo, N. Miyoshi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, Y. Kitaoka, and T. Sasaki, "Growth of GaN single crystals with extremely low dislocation density by two-step dislocation reduction," *J. Cryst. Growth*, vol. In Press, Corrected Proof, pp. –, 2009.

[51] M. Kneissl, Z. Yang, M. Teepe, C. Knollenberg, O. Schmidt, P. Kiesel, N. M. Johnson, S. Schujman, and L. J. Schowalter, "Ultraviolet semiconductor laser diodes on bulk AlN," *J. Appl. Phys.*, vol. 101, no. 12, p. 123103, 2007.

[52] G. A. Slack and T. McNelly, "Growth of high purity AlN crystals," *J. Cryst. Growth*, vol. 34, no. 2, pp. 263 – 279, 1976.

[53] S. B. Schujman, L. J. Schowalter, R. T. Bondokov, K. E. Morgan, W. Liu, J. A. Smart, and T. Bettles, "Structural and surface characterization of large diameter, crystalline AlN substrates for device fabrication," *J. Cryst. Growth*, vol. 310, no. 5, pp. 887 – 890, 2008.

[54] R. T. Bondokov, S. G. Mueller, K. E. Morgan, G. A. Slack, S. Schujman, M. C. Wood, J. A. Smart, and L. J. Schowalter, "Large-area AlN substrates for electronic applications: An industrial perspective," *J. Cryst. Growth*, vol. 310, no. 17, pp. 4020 – 4026, 2008.

[55] K. Motoki, T. Okahisa, S. Nakahata, N. Matsumoto, H. Kimura, H. Kasai, K. Takemoto, K. Uematsu, M. Ueno, Y. Kumagai, A. Koukitu, and H. Seki, "Growth and characterization of freestanding GaN substrates," *J. Cryst. Growth*, vol. 237-239, no. Part 2, pp. 912 – 921, 2002.

[56] D. Gogova, D. Siche, R. Fornari, B. Monemar, P. Gibart, L. Dobos, B. Pecz, F. Tuomisto, R. Bayazitov, and G. Zollo, "Optical and structural studies of high-quality bulk-like GaN grown by HVPE on a MOVPE AlN buffer layer," *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 21, no. 5, pp. 702–708, 2006.

[57] T. Paskova, E. Valcheva, P. P. Paskov, B. Monemar, A. M. Roskowski, R. F. Davis, B. Beaumont, and P. Gibart, "HVPE-GaN: comparison of emission properties and microstructure of films grown on different laterally overgrown templates," *Diamond Relat. Mater.*, vol. 13, no. 4-8, pp. 1125 – 1129, 2004.

[58] K. Motoki, T. Okahisa, R. Hirota, S. Nakahata, K. Uematsu, and N. Matsumoto, "Dislocation reduction in GaN crystal by advanced-DEEP," *J. Cryst. Growth*, vol. 305, no. 2, pp. 377 – 383, 2007.

[59] C. Skierbiszewski, Z. Wasilewski, I. Grzegory, and S. Porowski, "Nitride-based laser diodes by plasma-assisted MBE–From violet to green emission," *J. Cryst. Growth*, vol. 311, no. 7, pp. 1632 – 1639, 2009.

[60] W. Tan, M. Kauer, S. Hooper, J. Barnes, M. Rossetti, T. Smeeton, V. Bousquet, and J. Heffernan, "High-power and long-lifetime InGaN blue–violet laser diodes grown by molecular beam epitaxy," *Electron. Lett.*, vol. 44, no. 5, pp. 351–353, 2008.

[61] C. Skierbiszewski, P. Wisniewski, M. Siekacz, P. Perlin, A. Feduniewicz-Zmuda, G. Nowak, I. Grzegory, M. Leszczynski, and S. Porowski, "60 mW continuous-wave operation of InGaN laser diodes made by plasma-assisted molecular-beam epitaxy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 88, no. 22, p. 221108, 2006.

[62] M. Kauer, S. Hooper, V. Bousquet, K. Johnson, C. Zellweger, J. Barnes, J. Windle, T. Smeeton, and J. Heffernan, "Continuous-wave operation of InGaN multiple quantum well laser diodes grown by molecular beam epitaxy," *Electron. Lett.*, vol. 41, pp. 739–741, June 2005.

[63] M. J. Manfra, K. W. Baldwin, A. M. Sergent, K. W. West, R. J. Molnar, and J. Caissie, "Electron mobility exceeding 160 000 cm^2/V s in AlGaN/GaN heterostructures grown by molecular-beam epitaxy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 85, no. 22, pp. 5394–5396, 2004.

[64] S. Nakamura, N. Iwasa, M. Senoh, and T. Mukai, "Hole Compensation Mechanism of P-Type GaN Films," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 31, no. Part 1, No. 5A, pp. 1258–1266, 1992.

[65] H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu, and I. Akasaki, "P-Type Conduction in Mg-Doped GaN Treated with Low-Energy Electron Beam Irradiation (LEEBI)," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 28, no. Part 2, No. 12, pp. L2112–L2114, 1989.

[66] I. Ho and G. B. Stringfellow, "Solid phase immiscibility in GaInN," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, no. 18, pp. 2701–2703, 1996.

[67] M. K. Kelly, R. P. Vaudo, V. M. Phanse, L. Görgens, O. Ambacher, and M. Stutzmann, "Large Free-Standing GaN Substrates by Hydride Vapor Phase Epitaxy and Laser-Induced Liftoff," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 38, no. Part 2, No. 3A, pp. L217–L219, 1999.

[68] D. Gogova, H. Larsson, A. Kasic, G. R. Yazdi, I. Ivanov, R. Yakimova, B. Monemar, E. Aujol, E. Frayssinet, J.-P. Faurie, B. Beaumont, and P. Gibart, "High-Quality 2″ Bulk-Like Free-Standing GaN Grown by HydrideVapour Phase Epitaxy on a Si-doped Metal Organic Vapour Phase Epitaxial GaN Template with an Ultra Low Dislocation Density," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 3, pp. 1181–1185, 2005.

[69] H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, and Y. Toyoda, "Metalorganic vapor phase epitaxial growth of a high quality GaN film using an AlN buffer layer," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 48, no. 5, pp. 353–355, 1986.

[70] S. Nakamura, "GaN Growth Using GaN Buffer Layer," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 30, no. Part 2, No. 10A, pp. L1705–L1707, 1991.

[71] S. Nakamura, M. Senoh, S. ichi Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto, T. Kozaki, H. Umemoto, M. Sano, and K. Chocho, "InGaN/GaN/AlGaN-based laser diodes with modulation-doped strained-layer superlattices grown on an epitaxially laterally overgrown GaN substrate," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 72, no. 2, pp. 211–213, 1998.

[72] K. Hiramatsu, K. Nishiyama, M. Onishi, H. Mizutani, M. Narukawa, A. Motogaito, H. Miyake, Y. Iyechika, and T. Maeda, "Fabrication and characterization of low defect density GaN using facet-controlled epitaxial lateral overgrowth (FACELO)," *J. Cryst. Growth*, vol. 221, no. 1-4, pp. 316 – 326, 2000.

[73] F. S. Habel, "Methoden zur Defektreduktion von Galliumnitrid-Substraten und -Quasisubstraten ." Dissertation, Universität Ulm, 2006. ISBN 3867279985.

[74] B. Beaumont, P. Vennéguès, and P. Gibart, "Epitaxial Lateral Overgrowth of GaN," *Phys. Status Solidi B*, vol. 227, no. 1, pp. 1–43, 2001.

[75] S. Haffouz, H. Lahreche, P. Vennegues, P. de Mierry, B. Beaumont, F. Omnes, and P. Gibart, "The effect of the Si/N treatment of a nitridated sapphire surface on the growth mode of GaN in low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 73, no. 9, pp. 1278–1280, 1998.

[76] E. Frayssinet, B. Beaumont, J. P. Faurie, P. Gibart, Z. Makkai, B. Pécz, P. Lefebvre, and P. Valvin, "Micro Epitaxial lateral overgrowth of GaN/sapphire by Metal Organic Vapour Phase Epitaxy," *MRS Internet J. Nitride Semicond. Res.*, vol. 7, p. 8, 2002.

[77] L. Kirste, "Wachstum und Realstruktur von epitaktischen (Al,Ga)N-Schichten." Dissertation, Universität Freiburg, 2003.

[78] F. Habel and M. Seyboth, "Determination of dislocation density in epitaxially grown GaN using an HCl etching process," *Phys. Status Solidi C*, vol. 0, no. 7, pp. 2448–2451, 2003.

[79] J. Weyher, S. Lazar, L. Macht, Z. Liliental-Weber, R. Molnar, S. Müller, V. Sivel, G. Nowak, and I. Grzegory, "Orthodox etching of HVPE-grown GaN," *J. Cryst. Growth*, vol. 305, no. 2, pp. 384 – 392, 2007.

[80] J. S. Speck and S. J. Rosner, "The role of threading dislocations in the physical properties of GaN and its alloys," *Physica B*, vol. 273-274, pp. 24 – 32, 1999.

[81] D. Cherns, S. J. Henley, and F. A. Ponce, "Edge and screw dislocations as nonradiative centers in InGaN/GaN quantum well luminescence," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 78, no. 18, pp. 2691–2693, 2001.

[82] J. Abell and T. D. Moustakas, "The role of dislocations as nonradiative recombination centers in InGaN quantum wells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 9, p. 091901, 2008.

[83] 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*, vol. 189-190, pp. 24–28, June 1998.

[84] T. Stephan, "Einfluss der Lumineszenzmechanismen und der elektrischen Kontakte auf die Effizienz von InGaN-Leuchtdioden." Dissertation, Universität Freiburg, 2003.

[85] J. Narayan, P. Pant, A. Chugh, H. Choi, and J. C. C. Fan, "Characteristics of nucleation layer and epitaxy in GaN/sapphire heterostructures," *J. Appl. Phys.*, vol. 99, no. 5, p. 054313, 2006.

[86] M. Lada, A. G. Cullis, and P. J. Parbrook, "Effect of anneal temperature on GaN nucleation layer transformation," *J. Cryst. Growth*, vol. 258, no. 1-2, pp. 89 – 99, 2003.

[87] D. Wood, P. Parbrook, R. Lynch, M. Lada, and A. Cullis, "The Influence of Buffer Layer Growth Parameters on the Microstructure and Surface Morphology of GaN on Sapphire Substrates Correlated with in-situ Reflectivity," *Phys. Status Solidi A*, vol. 188, no. 2, pp. 641–645, 2001.

[88] J. H. Jang, A. M. Herrero, B. Gila, C. Abernathy, and V. Craciun, "Study of defects evolution in GaN layers grown by metal-organic chemical vapor deposition," *J. Appl. Phys.*, vol. 103, no. 6, p. 063514, 2008.

[89] S. Müller, "Persönliche Mitteilung," 2009.

[90] S. Figge, T. Böttcher, S. Einfeldt, and D. Hommel, "In situ and ex situ evaluation of the film coalescence for GaN growth on GaN nucleation layers," *J. Cryst. Growth*, vol. 221, no. 1-4, pp. 262 – 266, 2000.

[91] G. B. Stringfellow, *Organometallic Vapor-Phase Epitaxy:Theory and Practice, 2nd edition*. Academic Press(New York)„ 1998.

[92] O. Schön, B. Schineller, M. Heuken, and R. Beccard, "Comparison of hydrogen and nitrogen as carrier gas for MOVPE growth of GaN," *J. Cryst. Growth*, vol. 189-190, pp. 335 – 339, 1998.

[93] F. Scholz, V. Härle, F. Steuber, H. Bolay, A. Dörnen, B. Kaufmann, V. Syganow, and A. Hangleiter, "Low pressure MOVPE of GaN and GaInN/GaN heterostructures," *J. Cryst. Growth*, vol. 170, no. 1-4, pp. 321 – 324, 1997.

[94] E. L. Piner, M. K. Behbehani, N. A. El-Masry, F. G. McIntosh, J. C. Roberts, K. S. Boutros, and S. M. Bedair, "Effect of hydrogen on the indium incorporation in InGaN epitaxial films," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, no. 4, pp. 461–463, 1997.

[95] Y. Kobayashi and N. Kobayashi, "Influence of N2 carrier gas on surface stoichiometry in GaN MOVPE studied by surface photoabsorption," *J. Cryst. Growth*, vol. 189-190, pp. 301 – 304, 1998.

[96] J. E. Northrup, "Impact of hydrogen on indium incorporation at m-plane and c-plane $In_{0.25}Ga_{0.75}N$ surfaces: First-principles calculations," *Phys. Rev. B*, vol. 79, no. 4, p. 041306, 2009.

[97] S. M. Ting, J. C. Ramer, D. I. Florescu, V. N. Merai, B. E. Albert, A. Parekh, D. S. Lee, D. Lu, D. V. Christini, L. Liu, and E. A. Armour, "Morphological evolution of InGaN/GaN quantum-well heterostructures grown by metalorganic chemical vapor deposition," *J. Appl. Phys.*, vol. 94, no. 3, pp. 1461–1467, 2003.

[98] 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 InGaN/GaN multiple quantum wells grown by metalorganic chemical vapor deposition on (0001) sapphire," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 83, no. 1, pp. 33–35, 2003.

[99] S. Suihkonen, O. Svensk, T. Lang, H. Lipsanen, M. Odnoblyudov, and V. Bougrov, "The effect of InGaN/GaN MQW hydrogen treatment and threading dislocation optimization on GaN LED efficiency," *J. Cryst. Growth*, vol. 298, pp. 740 – 743, 2007.

[100] E. L. Piner, M. K. Behbehani, N. A. El-Masry, J. C. Roberts, F. G. McIntosh, and S. M. Bedair, "Impurity dependence on hydrogen and ammonia flow rates in InGaN bulk films," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 71, no. 14, pp. 2023–2025, 1997.

[101] K. Köhler, A. Perona, M. Maier, J. Wiegert, M. Kunzer, and J. Wagner, "Mg doping profile in III-N light emitting diodes in close proximity to the active region," *Phys. Status Solidi A*, vol. 203, no. 7, pp. 1802–1805, 2006.

[102] B. Kuhn, M. Welsch, M. Kessler, and F. Scholz, "The Influence of Growth Conditions on the Electrical Properties of Magnesium-Doped GaN Grown by MOVPE," *Phys. Status Solidi A*, vol. 176, no. 1, pp. 787–792, 1999.

[103] T. Stephan, K. Koehler, M. Maier, M. Kunzer, P. Schlotter, and J. Wagner, "Influence of Mg doping profile on the electroluminescence properties of GaInN multiple-quantum-well light-emitting diodes," *Proc. SPIE*, vol. 5366, no. 1, pp. 118–126, 2004.

[104] U. Kaufmann, M. Kunzer, M. Maier, H. Obloh, A. Ramakrishnan, B. Santic, and P. Schlotter, "Nature of the 2.8 eV photoluminescence band in Mg doped GaN," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 72, no. 11, pp. 1326–1328, 1998.

[105] U. Kaufmann, M. Kunzer, H. Obloh, M. Maier, C. Manz, A. Ramakrishnan, and B. Santic, "Origin of defect-related photoluminescence bands in doped and nominally undoped GaN," *Phys. Rev. B*, vol. 59, pp. 5561–, Feb. 1999.

[106] K. Köhler, T. Stephan, A. Perona, J. Wiegert, M. Maier, M. Kunzer, and J. Wagner, "Control of the Mg doping profile in III-N light-emitting diodes and its effect on the electroluminescence efficiency," *J. Appl. Phys.*, vol. 97, no. 10, p. 104914, 2005.

[107] L. Kirste, K. Köhler, M. Maier, M. Kunzer, M. Maier, and J. Wagner, "SIMS depth profiling of Mg back-diffusion in (AlGaIn)N light-emitting diodes," *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.*, vol. 19, no. 1, pp. 176–181, 2008.

[108] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag GmbH, 2006.

[109] K. J. Bachmann, *The Materials Science of Microelectronics*. Wiley-VCH, 1994.

[110] W. Bettermann, "Simulation der Diffusion von Dotierstoffen in III-V-Verbindungshalbleitern." Dissertation, RWTH Aachen, 1992.

[111] U. Gosele and F. Morehead, "Diffusion of zinc in gallium arsenide: A new model," *J. Appl. Phys.*, vol. 52, no. 7, pp. 4617–4619, 1981.

[112] K. Harafuji and K. Kawamura, "Magnesium Diffusion at Dislocation in Wurtzite-Type GaN Crystal," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 9A, pp. 6495–6504, 2005.

[113] C. J. Pan and G. C. Chi, "The doping of GaN with Mg diffusion," *Solid-State Electron.*, vol. 43, no. 3, pp. 621 – 623, 1999.

[114] Z. Benzarti, I. Halidou, Z. Bougrioua, T. Boufaden, and B. E. Jani, "Magnesium diffusion profile in GaN grown by MOVPE," *J. Cryst. Growth*, vol. 310, no. 14, pp. 3274 – 3277, 2008.

[115] H. Benisty, H. De Neve, and C. Weisbuch, "Impact of planar microcavity effects on light extraction-Part I: basic concepts and analytical trends," *IEEE J. Quantum. Electron.*, vol. 34, no. 9, pp. 1612–1631, 1998.

[116] H. D. Neve, J. Blondelle, P. V. Daele, P. Demeester, R. Baets, and G. Borghs, "Recycling of guided mode light emission in planar microcavity light emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 70, no. 7, pp. 799–801, 1997.

[117] Y. C. Shen, J. J. Wierer, M. R. Krames, M. J. Ludowise, M. S. Misra, F. Ahmed, A. Y. Kim, G. O. Mueller, J. C. Bhat, S. A. Stockman, and P. S. Martin, "Optical cavity effects in InGaN/GaN quantum-well-heterostructure flip-chip light-emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 82, no. 14, pp. 2221–2223, 2003.

[118] W. Lukosz and R. E. Kunz, "Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane interface. I. Total radiated power," *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 67, pp. 1607–1615, Dec. 1977.

[119] R. R. Chance, A. Prock, and R. Silbey, "Lifetime of an emitting molecule near a partially reflecting surface," *J. Chem. Phys.*, vol. 60, no. 7, pp. 2744–2748, 1974.

[120] A. David, M. J. Grundmann, J. F. Kaeding, N. F. Gardner, T. G. Mihopoulos, and M. R. Krames, "Carrier distribution in (0001)InGaN/GaN multiple quantum well light-emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 5, p. 053502, 2008.

[121] C.-C. Pan, C.-M. Lee, J.-W. Liu, G.-T. Chen, and J.-I. Chyi, "Luminescence efficiency of InGaN multiple-quantum-well ultraviolet light-emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 84, no. 25, pp. 5249–5251, 2004.

[122] M. Peter, A. Laubsch, W. Bergbauer, T. Meyer, M. Sabathil, J. Baur, and B. Hahn, "New developments in green LEDs," *Phys. Status Solidi A*, vol. 206, no. 6, pp. 1125–1129, 2009.

[123] M. Schauler, F. Eberhard, C. Kirchner, V. Schwegler, A. Pelzmann, M. Kamp, K. J. Ebeling, F. Bertram, T. Riemann, J. Christen, P. Prystawko, M. Leszczynski, I. Grzegory, and S. Porowski, "Dry etching of GaN substrates for high-quality homoepitaxy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, no. 8, pp. 1123–1125, 1999.

[124] F. Karouta, J. Weyher, B. Jacobs, G. Nowak, A. Presz, I. Grzegory, and L. Kaufmann, "Final polishing of Ga-polar GaN substrates using reactive ion etching," *J. Electron. Mater.*, vol. 28, pp. 1448–1451, Dec. 1999.

[125] C. R. Miskys, M. K. Kelly, O. Ambacher, and M. Stutzmann, "Freestanding GaN-substrates and devices," *Phys. Status Solidi C*, vol. 0, no. 6, pp. 1627–1650, 2003.

[126] F. Scholz, P. Brückner, F. Habel, M. Peter, and K. Köhler, "Improved GaN layer morphology by hydride vapor phase epitaxy on misoriented Al_2O_3 wafers," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 87, no. 18, p. 181902, 2005.

[127] Z. J. Reitmeier, J.-S. Park, W. J. Mecouch, and R. F. Davis, "In situ cleaning of GaN(0001) surfaces in a metalorganic vapor phase epitaxy environment," *J. Vac. Sci. Technol. A*, vol. 22, no. 5, pp. 2077–2082, 2004.

[128] P. Daniels, E. Preble, T. Paskova, and D. Hanser, "Orientation Control of Bulk GaN Substrates Grown via Hydride Vapor Phase Epitaxy," in *The International Conference on Compound Semiconductor Manufacturing Technology*, 2009.

[129] A. Zukauskas, M. S. Shur, and R. Gaska, *Introduction to Solid State Lighting*. Wiley & Sons, 2002.

[130] 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.*, vol. 3, pp. 160–175, JUN 2007.

[131] J. L. Weyher, S. Müller, I. Grzegory, and S. Porowski, "Chemical polishing of bulk and epitaxial GaN," *J. Cryst. Growth*, vol. 182, pp. 17–22, Dec. 1997.

[132] H. M. Ng, N. G. Weimann, and A. Chowdhury, "GaN nanotip pyramids formed by anisotropic etching," *J. Appl. Phys.*, vol. 94, no. 1, pp. 650–653, 2003.

[133] Y. Gao, T. Fujii, R. Sharma, K. Fujito, S. P. Denbaars, S. Nakamura, and E. L. Hu, "Roughening Hexagonal Surface Morphology on Laser Lift-Off (LLO) N-Face GaN with Simple Photo-Enhanced Chemical Wet Etching," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 5A, pp. L637–L639, 2004.

[134] V. Haerle, B. Hahn, S. Kaiser, A. Weimar, D. Eisert, S. Bader, A. Ploessl, and F. Eberhard, "Light extraction technologies for high-efficiency GaInN-LED devices," *Proc. SPIE*, vol. 4996, no. 1, pp. 133–138, 2003.

[135] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, and S. Nakamura, "Spontaneous emission of localized excitons in InGaN single and multiquantum well structures," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, no. 27, pp. 4188–4190, 1996.

[136] S. Nakamura and G. Fasol, *The Blue Laser Diode, GaN based light emitters and lasers.* Springer, 1997.

[137] 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.*, vol. 83, no. 26, pp. 5419–5421, 2003.

[138] M. J. Galtrey, R. A. Oliver, M. J. Kappers, C. McAleese, D. Zhu, C. J. Humphreys, P. H. Clifton, D. Larson, and A. Cerezo, "Compositional inhomogeneity of a high-efficiency $In_xGa_{1-x}N$ based multiple quantum well ultraviolet emitter studied by three dimensional atom probe," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 4, p. 041904, 2008.

[139] A. Hangleiter, F. Hitzel, C. Netzel, D. Fuhrmann, U. Rossow, G. Ade, and P. Hinze, "Suppression of Nonradiative Recombination by V-Shaped Pits in GaInN/GaN Quantum Wells Produces a Large Increase in the Light Emission Efficiency," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, no. 12, p. 127402, 2005.

[140] P. T. Landsberg, *Recombination in Semiconductors.* Cambridge University Press, 1991.

[141] H. Y. Ryu, K. H. Ha, J. H. Chae, K. S. Kim, J. K. Son, O. H. Nam, Y. J. Park, and J. I. Shim, "Evaluation of radiative efficiency in InGaN blue-violet laser-diode structures using electroluminescence characteristics," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 89, no. 17, p. 171106, 2006.

[142] M. F. Schubert, S. Chhajed, J. K. Kim, E. F. Schubert, D. D. Koleske, M. H. Crawford, S. R. Lee, A. J. Fischer, G. Thaler, and M. A. Banas, "Effect of dislocation density on efficiency droop in GaInN/GaN light-emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 23, p. 231114, 2007.

[143] Y. C. Shen, G. O. Mueller, S. Watanabe, N. F. Gardner, A. Munkholm, and M. R. Krames, "Auger recombination in InGaN measured by photoluminescence," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 14, p. 141101, 2007.

[144] N. F. Gardner, G. O. Muller, Y. C. Shen, G. Chen, S. Watanabe, W. Gotz, and M. R. Krames, "Blue-emitting InGaN–GaN double-heterostructure light-emitting diodes reaching maximum quantum efficiency above 200 A/cm^2," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 24, p. 243506, 2007.

[145] J. Hader, J. V. Moloney, B. Pasenow, S. W. Koch, M. Sabathil, N. Linder, and S. Lutgen, "On the importance of radiative and Auger losses in GaN-based quantum wells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 26, p. 261103, 2008.

[146] I. V. Rozhansky and D. A. Zakheim, "Analysis of processes limiting quantum efficiency of AlGaInN LEDs at high pumping," *Phys. Status Solidi A*, vol. 204, no. 1, pp. 227–230, 2007.

[147] M.-H. Kim, M. F. Schubert, Q. Dai, J. K. Kim, E. F. Schubert, J. Piprek, and Y. Park, "Origin of efficiency droop in GaN-based light-emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 18, p. 183507, 2007.

[148] M. F. Schubert, J. Xu, Q. Dai, F. W. Mont, J. K. Kim, and E. F. Schubert, "On resonant optical excitation and carrier escape in GaInN/GaN quantum wells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 8, p. 081114, 2009.

[149] B. Monemar and B. E. Sernelius, "Defect related issues in the "current roll-off" in InGaN based light emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 18, p. 181103, 2007.

[150] K. Akita, T. Kyono, Y. Yoshizumi, H. Kitabayashi, and K. Katayama, "Improvements of external quantum efficiency of InGaN-based blue light-emitting diodes at high current density using GaN substrates," *J. Appl. Phys.*, vol. 101, no. 3, p. 033104, 2007.

[151] S.-H. Han, D.-Y. Lee, S.-J. Lee, C.-Y. Cho, M.-K. Kwon, S. P. Lee, D. Y. Noh, D.-J. Kim, Y. C. Kim, and S.-J. Park, "Effect of electron blocking layer on efficiency droop in InGaN/GaN multiple quantum well light-emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 23, p. 231123, 2009.

[152] A. Laubsch, M. Sabathil, W. Bergbauer, M. Strassburg, H. Lugauer, M. Peter, S. Lutgen, N. Linder, K. Streubel, J. Hader, J. V. Moloney, B. Pasenow, and S. W. Koch, "On the origin of IQE-droop in InGaN LEDs," *Phys. Status Solidi C*, vol. 6, no. S2, pp. S913–S916, 2009.

[153] M. F. Schubert, J. Xu, J. K. Kim, E. F. Schubert, M. H. Kim, S. Yoon, S. M. Lee, C. Sone, T. Sakong, and Y. Park, "Polarization-matched GaInN/AlGaInN multi-quantum-well light-emitting diodes with reduced efficiency droop," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 93, no. 4, p. 041102, 2008.

[154] J. Xu, M. F. Schubert, A. N. Noemaun, D. Zhu, J. K. Kim, E. F. Schubert, M. H. Kim, H. J. Chung, S. Yoon, C. Sone, and Y. Park, "Reduction in efficiency droop, forward voltage, ideality factor, and wavelength shift in polarization-matched GaInN/GaInN multi-quantum-well light-emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 1, p. 011113, 2009.

[155] M. Kunzer, M. Baeumler, K. Köhler, C.-C. Leancu, U. Kaufmann, and J. Wagner, "Injection level dependent luminescence characteristics of UV-violet emitting (AlGaIn)N LED structures," *Phys. Status Solidi A*, vol. 204, no. 1, pp. 236–240, 2007.

[156] M. Kunzer, U. Kaufmann, K. Köhler, C. C. Leancu, S. Liu, and J. Wagner, "Near-UV to violet LEDs - Wavelength dependence of efficiency limiting processes," *Phys. Status Solidi C*, vol. 4, no. 7, pp. 2822–2825, 2007.

[157] S. Grzanka, G. Franssen, G. Targowski, R. Czernecki, A. Khachapuridze, I. Makarowa, R. Wisniewska, P. Mensz, P. Perlin, and T. Suski, "Carrier recombination mechanisms in nitride single quantum well light-emitting diodes revealed by photo- and electroluminescence," *J. Appl. Phys.*, vol. 104, no. 9, p. 094504, 2008.

[158] N. Duxbury, U. Bangert, P. Dawson, E. J. Thrush, W. V. der Stricht, K. Jacobs, and I. Moerman, "Indium segregation in InGaN quantum-well structures," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, no. 12, pp. 1600–1602, 2000.

[159] H. Sato, T. Sugahara, Y. Naoi, and S. Sakai, "Compositional Inhomogeneity of InGaN Grown on Sapphire and Bulk GaN Substrates by Metalorganic Chemical Vapor Deposition," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 37, no. Part 1, No. 4A, pp. 2013–2015, 1998.

[160] Q. Dai, M. F. Schubert, M. H. Kim, J. K. Kim, E. F. Schubert, D. D. Koleske, M. H. Crawford, S. R. Lee, A. J. Fischer, G. Thaler, and M. A. Banas, "Internal quantum efficiency and nonradiative recombination coefficient of GaInN/GaN multiple quantum wells with different dislocation densities," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 11, p. 111109, 2009.

[161] X. A. Cao, S. F. LeBoeuf, M. P. D'Evelyn, S. D. Arthur, J. Kretchmer, C. H. Yan, and Z. H. Yang, "Blue and near-ultraviolet light-emitting diodes on free-standing GaN substrates," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 84, no. 21, pp. 4313–4315, 2004.

[162] X. A. Cao, Y. Yang, and H. Guo, "On the origin of efficiency roll-off in InGaN-based light-emitting diodes," *J. Appl. Phys.*, vol. 104, no. 9, p. 093108, 2008.

[163] T. Mukai, M. Yamada, and S. Nakamura, "Characteristics of InGaN-Based UV/Blue/Green/Amber/Red Light-Emitting Diodes," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 38, no. Part 1, No. 7A, pp. 3976–3981, 1999.

[164] D. Holec, P. Costa, M. Kappers, and C. Humphreys, "Critical thickness calculations for InGaN/GaN," *J. Cryst. Growth*, vol. 303, no. 1, pp. 314 – 317, 2007.

[165] F. Scholz, J. Off, A. Kniest, L. Görgens, and O. Ambacher, "Influence of strain and buffer layer type on In incorporation during GaInN MOVPE," *Mater. Sci. Eng. B*, vol. 59, no. 1-3, pp. 268 – 273, 1999.

[166] M. J. Reed, N. A. El-Masry, C. A. Parker, J. C. Roberts, and S. M. Bedair, "Critical layer thickness determination of GaN/InGaN/GaN double heterostructures," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, no. 25, pp. 4121–4123, 2000.

[167] X. A. Cao, J. M. Teetsov, M. P. D'Evelyn, D. W. Merfeld, and C. H. Yan, "Electrical characteristics of InGaN/GaN light-emitting diodes grown on GaN and sapphire substrates," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 85, no. 1, pp. 7–9, 2004.

[168] M. S. Ferdous, X. Wang, M. N. Fairchild, and S. D. Hersee, "Effect of threading defects on InGaN/GaN multiple quantum well light emitting diodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 23, p. 231107, 2007.

[169] Y.-T. Moon, D.-J. Kim, K.-M. Song, C.-J. Choi, S.-H. Han, T.-Y. Seong, and S.-J. Park, "Effects of thermal and hydrogen treatment on indium segregation in InGaN/GaN multiple quantum wells," *J. Appl. Phys.*, vol. 89, no. 11, pp. 6514–6518, 2001.

[170] A. Kar, D. Alexson, M. Dutta, and M. A. Stroscio, "Evidence of compositional inhomogeneity in $In_xGa_{1-x}N$ alloys using ultraviolet and visible Raman spectroscopy.," *J. Appl. Phys.*, vol. 104, no. 7, p. 073502, 2008.

[171] M. K. Behbehani, E. L. Piner, S. X. Liu, N. A. El-Masry, and S. M. Bedair, "Phase separation and ordering coexisting in $In_xGa_{1-x}N$ grown by metal organic chemical vapor deposition," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 75, no. 15, pp. 2202–2204, 1999.

[172] K. Kumakura, T. Makimoto, N. Kobayashi, T. Hashizume, T. Fukui, and H. Hasegawa, "Minority carrier diffusion length in GaN: Dislocation density and doping concentration dependence," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 86, no. 5, p. 052105, 2005.

[173] P. Grosse, *Freie Elektronen in Festkörpern.* Springer-Verlag, Berlin, 1979.

Danksagung

Hier möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

- **Prof. Dr. Joachim Wagner** für die interessante und hochaktuelle Themenstellung sowie die wissenschaftliche Betreuung dieser Arbeit, bei der mir seine Ideen und Anregungen ein großer Gewinn waren. Des Weiteren danke ich für das in mich gesetzte Vertrauen, das IAF auch auf wichtigen Projekttreffen und Konferenzen vertreten zu dürfen.

- Den Institutsleitern **Prof. Dr. Günter Weimann** und **Prof. Dr. Oliver Ambacher** für die Möglichkeit, die vorliegende Arbeit am Fraunhofer Institut für Angewandte Festkörperphysik bearbeiten zu dürfen und meinem Abteilungsleiter **Dr. Martin Walther** für die finanzielle Planung.

- **Dr. Klaus Köhler** für die unermüdliche tägliche Betreuung und Unterstützung, das Korrekturlesen und die nicht nur fachlichen Diskussionen. Ohne sein umfangreiches Wissen über die Epitaxie der Verbindungshalbleiter wäre es mir nicht möglich gewesen, diese Arbeit so erfolgreich anzufangen und abzuschließen. Es hat mir sehr großen Spass gemacht, in seiner Gruppe mitzuarbeiten.

- **Dr. Michael Kunzer** für die umfassende Unterstützung auf Seiten der Charakterisierung, die unverzügliche Umsetzung neuer Messmethoden und die vielen wertvollen Diskussionen, die zumeist physikalischer aber auch fotografischer und kulinarischer Art waren.

- **Jochen Wiegert** und **Hanspeter Menner** für die technische Betreuung der MOVPE, das Epitaxieren in den frühen Morgenstunden und die tolle Zusammenarbeit.

- **Dr. Thorsten Passow** für die Kontaktentwicklung und die vielen wertvollen Diskussionen um die Funktion der LED-Struktur im Allgemeinen. Besonders danke ich auch für das sorgfältige Korrekturlesen dieser Arbeit und die zahlreichen Anregungen dabei.

- **Crenguta-Columbina Leancu** und **Shangjing Liu** für die zahllosen auch kurzfristigen Photo- und Elektrolumineszenz-Messungen.

- **Dr. Wilfried Pletschen, Sabine Bühler, Karin Schäuble** und **Ralf Schmidt** für die lithografische und Schnelltest-Prozessierung meiner LED-Strukturen.

- **Dr. Lutz Kirste, Theo Fuchs, Martin Grimm, Martin Toman** und **Friedrich Windscheid** für die vielen SIMS- und Röntgen-Strukturanalysen und die Diskussionen dort im reziproken Raum.

- **Dr. Martina Baeumler** und **Dorothee Luick** für die Ellipsometrie- und Transmissions-Messungen.

- **Marina Preschle** und **Nadine Vögele** für die tatkräftige Unterstützung bei der Chemie im Reinraum.

- **Dr. Matthias Peter** (OSRAM Opto Semiconductors) für die Prozessierung einiger meiner Proben mit dem ThinGaN®-Prozess.

- **Prof. Dr. Ferdinand Scholz, Dr. Peter Brückner** und **Dr. Joachim Hertkorn** (Universität Ulm) für die gute Zusammenarbeit im Nanolux-Projekt, das Bereitstellen von dicken HVPE-GaN-Schichten für Transmissionsmessungen und für die EPD-Messungen an meinen Schichten.

- **Dr. Ulrich Schwarz, Martin Beer, Clemens Vierheilig** und **Julia Danhof** (Universität Regensburg) für die TEM- und die μ-PL-Messungen.

- **Richard Gutt** und meinen anderen Büro- und Promotions-Kollegen **Andreas Knübel, Taek Lim, Stefan Müller, Benno Rösener** und **Wilhelm Schirmacher** für nicht nur die vielen wertvollen fachlichen Diskussionen, sondern auch für die heiteren Stunden, die wir neben der Arbeit zusammen verbracht haben.

- **Sara Sadeghi** für die schöne Zeit und liebevolle Unterstützung.

- Und besonders meiner Mutter **Eveline Maier**, die mich in jeder meiner – beruflich wie privaten – Entscheidungen immer bekräftigt und unterstützt hat.