

Entwicklung von optisch pumpbaren UVC-Lasern auf AlGaIn-Basis

vorgelegt von
Master of Science

Jörg Jeschke

geb. in Kühlungsborn

Von der Fakultät II - Mathematik und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. Michael Lehmann
Gutachter: Prof. Dr. Michael Kneissl
Gutachter: Prof. Dr. Ulrich T. Schwarz
Gutachter: Prof. Dr. Markus Weyers

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 18. Juni 2018

Berlin 2018

„Evil is the force that believes its knowledge is complete.“
– Jordan B. Peterson

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde der Einfluss verschiedener Aspekte des epitaktischen Wachstums und des Heterostrukturdesigns auf optisch gepumpte AlGaIn-Laser mit Emissionswellenlängen im Bereich von 240 nm untersucht. Dabei wurden neue Erkenntnisse über elektrische und optische Verlustmechanismen gewonnen, die über den konkreten Anwendungsfall hinaus für AlGaIn-Heterostrukturen relevant sind. Außerdem wurde eine Verringerung der Laserschwellen von mehr als 10 MW/cm² auf weniger als 700 kW/cm² erreicht.

In Studien zum Einfluss der Temperatur, des Drucks und des V/III-Verhältnisses auf das Wachstum von Al_{0.7}Ga_{0.3}N-Schichten wurde gezeigt, dass sich Silizium aus den SiC-Beschichtungen des MOVPE-Reaktors in die nominell undotierten Schichten einbaut und dass dies durch die Wahl geeigneter Wachstumsbedingungen oder durch die Verwendung von TaC-Beschichtungen deutlich verringert werden kann. Auch eine Erhöhung der Photolumineszenzintensität durch die Si-Dotierung war zu beobachten.

Laserstrukturen wurden auf epitaktisch lateral überwachsenen (ELO) AlN/Saphir-Templates gewachsen. In Abhängigkeit vom Substratfehlschnitt kommt es durch die Strukturierung der Templates auf der Probenoberfläche entweder zu ausgeprägten Stufen von bis zu 15 nm Höhe oder nur zu einer leichten Welligkeit. An den Makrostufen sammelt sich während des Wachstums Gallium an, sodass sich eine inhomogene Emissionswellenlänge in den Quantenfilmen (Quantum Wells, QWs) ergibt. Außerdem können die Stufen in den Lasern als Streuzentren wirken und die optischen Verluste erhöhen. Andererseits führen sie aber auch zum Abknicken von Versetzungen und damit zu einer insgesamt reduzierten Versetzungsdichte, was sich positiv auf die Ladungsträgerrekombination auswirkt. Die Daten deuten außerdem darauf hin, dass die Versetzungen auch als optische Streuzentren wirken. Es wird gezeigt, dass der resultierende Einfluss auf die Laserschwellen unvorhersehbar sowohl positiv als auch negativ sein kann und daher eine Abkehr von derart strukturierten ELO-AlN/Saphir-Templates empfehlenswert scheint.

Die Untersuchung des Einflusses von QW-Dicke und -anzahl ergab, dass die Trennung der Ladungsträgerwellenfunktionen durch den Quantum Confined Stark Effect (QCSE) nur bei geringen Ladungsträgerdichten zu einer verringerten Emissionsrate führt. Im Laserbetrieb hingegen werden die Polarisationsfelder ausreichend abgeschirmt. Simulationen deuten allerdings darauf hin, dass die nichtstrahlende Rekombination an Grenzflächen eine entscheidende Rolle spielt, da die Laserschwelle mit abnehmender QW-Anzahl sank.

Aufgrund der an AlGaIn-Schichten gewonnenen Erkenntnisse wurden in Laserstrukturen die QWs, die Barrieren oder die gesamte Heterostruktur mit Siliziumkonzentrationen zwischen $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ dotiert. Es konnte gezeigt werden, dass die Abnahme der Gruppe-III-Vakanzen für Siliziumkonzentrationen bis $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ gefolgt von ihrer anschließenden Zunahme sich direkt auf die Laserschwellen auswirkt. Bei einer Siliziumkonzentration von $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ zeigte sich dessen Wirkung als Antisurfactant deutlich und es kam zu einem stark verzögerten, verringerten Galliumeinbau und dadurch zu inhomogenen QWs mit blauverschobener Emission.

Die gefundenen Ergebnisse sind zu großen Teilen auf andere AlGaIn-Bauelemente übertragbar. Die Identifikation des SiC im Reaktor als Quelle für die Siliziumkontamination ist darüber hinaus auch für die MOVPE anderer Materialsysteme bei hohen Temperaturen relevant.

Abstract

This work discusses the influence of growth parameters and heterostructure design on optically pumped AlGaIn-lasers emitting around 240 nm. Important electrical and optical loss mechanisms are identified, which are relevant for AlGaIn heterostructures beyond the specific samples analyzed here. Additionally, the laser threshold power densities were successfully reduced by more than an order of magnitude from over 10 MW/cm² to less than 700 kW/cm².

Studies of the influence of temperature, pressure, and V/III ratio on the growth of nominally undoped Al_{0.7}Ga_{0.3}In layers show that silicon from SiC reactor coatings is incorporated in the layers leading to an unintentional doping. The incorporation can be reduced either by choosing appropriate growth conditions or by replacing the SiC coatings with TaC. However, the Si doping also increased the photoluminescence intensity of the AlGaIn layers, which is discussed more deeply in a later part of this thesis.

Laser samples have been grown on epitaxially laterally overgrown (ELO) AlN/sapphire templates. Depending on the substrate offcut the patterned template induces either pronounced macrosteps on the sample surface with a height of up to 15 nm or just slight height undulations. Gallium accumulates at the macrosteps, leading to an inhomogeneous quantum well emission wavelength. Additionally, the steps act as scattering centers in the lasers increasing optical losses. On the other hand, they induce a tilt of the threading dislocations improving their mutual annihilation. Also, the data indicate that threading dislocations themselves can act as optical scattering centers. It is shown that the resulting influence of the offcut on the laser thresholds is unpredictable and can be positive as well as negative. From this perspective, replacement of the ELO templates should be considered.

Analyses of the influence of quantum well thickness and number reveal that the separation of the charge carrier wave functions due to the Quantum Confined Stark Effect (QCSE) only reduces the radiative emission rate for low carrier densities, while during lasing, the polarisation fields are screened sufficiently. In contrast, the laser thresholds are reduced with decreasing quantum well number, which is attributed to nonradiative recombination at heterointerfaces in accordance with simulations.

The observed influence of silicon on the photoluminescence intensity was taken as a starting point to analyze doped laser structures. By doping either quantum wells, barriers or the whole heterostructure with silicon concentrations between $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ and $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, it is shown that the reduction of group III vacancies up to a silicon concentration of $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ followed by its subsequent increase are directly reflected by the laser thresholds. Furthermore, at a concentration of $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, silicon acts as an antisurfactant during growth, reducing and delaying the gallium incorporation and thus causing inhomogeneous quantum wells with a strongly blue-shifted emission wavelength. No lasing was observed due to this deterioration of the material quality.

Many of the presented results can be applied to other AlGaIn based devices. The identification of the SiC in the reactor as a significant source for silicon contamination is also relevant for the epitaxy of other material systems which require high growth temperatures.

Eigene Veröffentlichungen

Teile dieser Arbeit wurden bereits vorab in folgenden Beiträgen veröffentlicht:

Publikationen:

- J. Jeschke, M. Martens, A. Knauer, V. Kueller, U. Zeimer, C. Netzel, C. Kuhn, F. Krueger, C. Reich, T. Wernicke, M. Kneissl and M. Weyers. UV-C Lasing From AlGa_N Multiple Quantum Wells on Different Types of AlN/Sapphire Templates. IEEE Photonics Technol. Lett., 27(18):1969–1972, September 2015. <http://dx.doi.org/10.1109/LPT.2015.2448127>.
- J. Jeschke, A. Knauer, and M. Weyers. Si impurity concentration in nominally undoped Al_{0.7}Ga_{0.3}N grown in a planetary MOVPE reactor. J. Cryst. Growth, 483:297–300, February 2018. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2017.12.025>.
- J. Jeschke, M. Martens, S. Hagedorn, A. Knauer, A. Mogilatenko, H. Wenzel, U. Zeimer, J. Enslin, T. Wernicke, M. Kneissl, and M. Weyers. Influence of template properties and quantum well number on stimulated emission from Al_{0.7}Ga_{0.3}N/Al_{0.8}Ga_{0.2}N quantum wells. Semicond. Sci. Technol., 33(3):035015, 2018. <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6641/aaab79>.
- Anna Mogilatenko, Viola Küller, Arne Knauer, J. Jeschke, Ute Zeimer, Markus Weyers, and Günther Tränkle. Defect analysis in AlGa_N layers on AlN templates obtained by epitaxial lateral overgrowth. J. Cryst. Growth, 402:222–229, September 2014. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2014.06.025>.
- U. Zeimer, J. Jeschke, A. Mogilatenko, A. Knauer, V. Kueller, V. Hoffmann, Christian Kuhn, T. Simoneit, M. Martens, T. Wernicke, M. Kneissl, and M. Weyers. Spatial inhomogeneities in Al_xGa_{1-x}N quantum wells induced by the surface morphology of AlN/sapphire templates. Semicond. Sci. Technol., 30(11):114008, 2015. <http://dx.doi.org/10.1088/0268-1242/30/11/114008>.
- A. Lobanova, E. Yakovlev, J. Jeschke, A. Knauer, and M. Weyers. Kinetics of AlGa_N metal–organic vapor phase epitaxy for deep-UV applications. Jpn. J. Appl. Phys., 55(5S):05FD07, April 2016. <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.55.05FD07>.
- C. Netzel, J. Jeschke, F. Brunner, A. Knauer, and M. Weyers. Temperature and doping dependent changes in surface recombination during UV illumination of (Al)Ga_N bulk layers. J. Appl. Phys., 120(9):095307, September 2016. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4962319>.
- C. Netzel, J. Jeschke, A. Knauer, and M. Weyers. Avoidance of instable photoluminescence intensity from AlGa_N bulk layers. Physica Status Solidi B, 254(8):1521–3951, August 2017. <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.201600672>.

Tagungsbeiträge:

- J. Jeschke, V. Hoffmann, A. Knauer, V. Kueller, U. Zeimer, A. Mogilatenko und M. Weyers. Einfluss der Oberflächenmorphologie von AlN/Saphir-Templates auf strukturelle und optische Eigenschaften von AlGa_N/AlGa_N Quantenfilmen für den UVC-Bereich. Vortrag. 28. Workshop der DGKK „Epitaxie von III/V Halbleitern“. Illmenau, Deutschland, 2013.
- J. Jeschke, A. Knauer, V. Kueller, and M. Weyers. The Influence of T, p and V/III Ratio on Morphology and Growth Rate of MOVPE AlGa_N/AlN MQWs for Deep UV Light Emitters. Poster TUGP32. International Workshop on Nitride Semiconductors. Wroclaw, Poland, 2014.
- J. Jeschke, C. Netzel, A. Knauer, A. Lobanova, E. Yakovlev, D. Henning, C. Reich, and M. Weyers. The influence of growth T, p, and V/III ratio on morphology and emission characteristics of MOVPE grown Al_{0.7}Ga_{0.3}N layers. Poster TUGP46. 11th International Conference on Nitride Semiconductors. Beijing, China, 2015.
- J. Jeschke, M. Martens, T. Wernicke, C. Kuhn, C. Reich, F. Mehnke, J. Rass, J. Enslin, M. Lapeyrade, U. Zeimer, A. Mogilatenko, S. Einfeldt, V. Kueller, S. Hagedorn, A. Knauer, C. Hartmann, J. Wollweber, M. Bickermann, M. Weyers, and M. Kneissl. AlGa_N-based deep UV lasers. Eingeladener Vortrag. Nanophotonic Symposium. Berlin, Deutschland, 2015.
- J. Jeschke, M. Martens, S. Hagedorn, A. Knauer, A. Mogilatenko, H. Wenzel, U. Zeimer, T. Wernicke, M. Kneissl, and M. Weyers. Influence of template properties and quantum well thickness on stimulated emission from Al_{0.7}Ga_N/Al_{0.8}Ga_N quantum wells. Vortrag. 18th International Conference on MOVPE. San Diego, USA, 2016.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung & Motivation	1
1. Theoretische Grundlagen	3
1.1. AlGa _{0.3} N-Halbleiter	3
1.1.1. Kristall- und Bandstruktur	3
1.1.2. Polarisierung	5
1.2. Laser	7
1.2.1. Ladungsträgerdynamik	7
1.2.2. Optische Moden	12
1.2.3. Laserbedingungen	14
2. MOVPE-Wachstum und Charakterisierungsmethoden	17
2.1. Probenpräparation	17
2.1.1. MOVPE-Reaktor	17
2.1.2. AlN/Saphir-Templates	21
2.1.3. Prozessstabilität	22
2.1.4. Si-Dotierung	25
2.1.5. Prozessierung von optisch pumpbaren Laserstrukturen	26
2.2. Charakterisierungsmethoden	26
2.2.1. Röntgendiffraktometrie	26
2.2.2. Rasterelektronenmikroskopie und Kathodolumineszenz	28
2.2.3. Sekundärionenmassenspektrometrie	30
2.2.4. Photolumineszenz	31
2.2.5. Optisches Pumpen	33
3. Wachstumsstudien an Al_{0.7}Ga_{0.3}N-Schichten	37
3.1. Wachstumsraten, Gasphasenreaktionen und Reaktionseffizienz	38
3.2. Der Siliziumhintergrund in undotiertem Al _{0.7} Ga _{0.3} N	44
3.3. Einfluss auf Photolumineszenzeigenschaften	51
3.4. Fazit	56
4. Auswirkungen von Morphologie und Design auf die Lasereigenschaften	59
4.1. Ausgangslage	59
4.2. Einfluss des Substrat-Fehlschnitts	69
4.3. Variation der Quantenfilmanzahl und -dicke	74
4.4. Fazit	83

5. Einfluss von Siliziumdotierung auf Quanteneffizienz und Laserschwelle	85
5.1. Einfluss der Dotierhöhe	86
5.1.1. Quantenfilmdotierung	86
5.1.2. Barrierendotierung	88
5.1.3. Dotierung aller Schichten	90
5.2. Dotierung verschiedener Schichten	93
5.3. Fazit	96
Zusammenfassung und Ausblick	99
A. Herleitungen, Proben und Parameter	103
A.1. Herleitungen und Erläuterungen	104
A.2. Probendaten	112
A.2.1. AlGaIn-Schichten für Wachstumsstudien	112
A.2.2. Laserproben	114
A.3. Konstanten und Materialparameter	117
B. Verzeichnisse	119
Abkürzungsverzeichnis	120
Tabellenverzeichnis	123
Abbildungsverzeichnis	124
Literaturverzeichnis	128
Danksagung	153

Einleitung & Motivation

Laser haben seit der ersten Demonstration im Jahr 1960 ihren Weg in vielfältige Anwendungen gefunden und sind in fast allen Wellenlängenbereichen kommerziell verfügbar. Das tiefe UV mit Wellenlängen $< 280\text{ nm}$ gehört zu den wenigen Bereichen, für die Laserlichtquellen bisher nur sehr begrenzt zur Verfügung stehen. Gleichzeitig gibt es eine Vielzahl potentieller Anwendungen, z.B. in der Medizin (Fluoreszenzmikroskopie, Atemgasanalyse), in der Datenspeicherung (CD, DVD, Blu-Ray, ...), in der Materialanalyse und Gefahrstoffidentifikation (Ramanspektroskopie) oder auch in der Wasser- und Oberflächendesinfektion. Bei den vorhandenen UV-Strahlquellen handelt es sich in der Regel um Excimerlaser oder frequenzvervielfachte Laser, die nativ wesentlich langwelliger emittieren. Sie alle zeichnen sich durch einen komplexen Aufbau, hohe Anschaffungs- und Wartungskosten, geringe Effizienz, fixe Wellenlängen oder eine beliebige Kombination dieser Eigenschaften aus. Halbleiterlaser hingegen haben aufgrund der frei wählbaren Wellenlänge, der geringen Stückkosten, langen Lebensdauern und der extrem hohen erreichbaren Effizienzen von bis zu 70 % [1] im blauen bis infraroten Spektralbereich ihre Überlegenheit über viele andere Lasersysteme gezeigt. Die Entwicklung blauer Laserdioden auf Basis von Galliumnitrid (GaN) wurde erst Anfang der 1990er durch die Arbeiten von Nakamura, Amano und Akasaki möglich, die erstmals erfolgreich die p-Leitfähigkeit mit Magnesium realisierten [2–5]. Dies eröffnete auch die Möglichkeit zur Realisierung direkt ultraviolett emittierender Laserdioden, da die Bandlücke von Aluminiumgalliumnitrid (AlGaIn) den gesamten UV-Bereich von 200–364 nm abdeckt. Unglücklicherweise ist die p-Dotierung trotz weitreichender wissenschaftlicher Fortschritte immer noch eine Herausforderung. Sie wird mit abnehmender Wellenlänge schwieriger, da die Aktivierungsenergie des Mg-Akzeptors mit dem Aluminiumgehalt kontinuierlich von ca. 150 meV auf ca. 500 meV zunimmt, sodass eine thermische Aktivierung der Löcher bei Raumtemperatur ($E_{\text{therm}} = 26\text{ meV}$) kaum möglich ist.

Hinzu kommt für Wellenlängen unterhalb von ca. 330 nm der Mangel an passenden Substraten. Ungefähr bis zu dieser Wellenlänge kann auf GaN-Substraten gewachsen werden, für höhere Aluminiumgehalte wird der Unterschied in den Gitterkonstanten und damit die Verspannung in den Heterostrukturen aber zu groß, sodass es zur Bildung von Defekten und Rissen kommt. Für den UVC-Bereich wären AlN-Substrate gut geeignet, deren Verfügbarkeit ist allerdings bisher stark limitiert und mit hohen Kosten verbunden, da die Kristalle nicht wie z.B. Silizium aus der Schmelze gezogen werden können, sondern auf wesentlich aufwendigere Wachstumsverfahren (z.B. Physical Vapor Transport) angewiesen sind. Das Wachstum auf Fremdsubstraten wie Siliziumkarbid oder Saphir stellt eine häufig genutzte Alternative dar, führt aber zu hohen Versetzungsdichten im Bereich von 10^9 cm^{-2} oder mehr, die die Effizienz optoelektronischer Bauelemente reduzieren.

Die kürzeste Emissionswellenlänge, die mit einer AlGaIn-Laserdiode bei Raumtemperatur bisher erreicht wurde, liegt bei 336 nm und wurde im Jahr 2008 von Yoshida et al. demonstriert [6]. Seitdem sind zwar LEDs im gesamten Wellenlängenbereich bis 230 nm realisiert worden, die für Lasing notwendigen Stromdichten und Effizienzen wurden aber nicht erreicht. Dies wirft die Frage auf, ob konventionelle Laserdioden auf AlGaIn-Basis im UVC-Bereich überhaupt realisierbar sind. In der Forschung werden vermehrt alternative Ansätze untersucht, die vom Ersetzen klassischer Metallkontakte durch Graphen [7] über die Lochinjektion mittels Tunnelioden [8] und die Frequenzverdopplung blauer Laser [9] bis hin zur Ladungsträgerinjektion mittels Elektronenstrahlpumpen [10] reichen.

Lasing basiert auf stimulierter Emission monochromatischer Strahlung und findet bei deutlich höheren Ladungsträgerdichten statt als der Betrieb einer LED oder auch viele Analysemethoden wie zum Beispiel Photolumineszenzmessungen. Daraus folgt, dass die Optimierung einer Laserstruktur anhand ihrer spontanen Emission häufig nicht zielführend ist. Es ist deutlich einfacher, eine funktionierende Laserstruktur zu optimieren, als einen Laser überhaupt zu realisieren. Dieser Angriffspunkt wird in der vorliegenden Arbeit genutzt, denn unter optischer Anregung ist im UVC-Bereich bereits mehrfach Lasing von AlGaIn-Strukturen gezeigt worden [11–13]. Umfangreichere Analysen der Eigenschaften dieser optisch gepumpten Laser wurden allerdings noch nicht veröffentlicht. Hier bietet sich jedoch die Gelegenheit, die limitierenden physikalischen Effekte in diesen Lasern zu identifizieren, sie zu verbessern und so die Laserschwelle zu senken, sodass eventuell auch elektrisch gepumptes Lasing einfacher realisierbar wird.

Im Rahmen dieser Arbeit wird daher untersucht, wie sich verschiedene Parameter auf die Eigenschaften von AlGaIn-Lasern mit Emissionswellenlängen im Bereich von 240–250 nm auswirken. Die Untersuchungen beschränken sich auf Kantenemitter-Laser mit Quantenfilmen als aktiver Zone, da diese vergleichsweise einfach zu realisieren sind.

In den ersten beiden Kapiteln wird zunächst eine kurze Einführung in die theoretischen Grundlagen sowie die experimentellen Methoden zur Herstellung und Charakterisierung der Proben gegeben. Kapitel 3 untersucht den Einfluss von Temperatur, Druck und V/III-Verhältnis während des MOVPE-Wachstums von AlGaIn-Schichten auf den Wachstumsprozess selbst, die Fremdatomkonzentrationen und die Photolumineszenzeigenschaften der Schichten. Ziel ist es, das Verständnis davon, inwiefern die Wachstumsbedingungen die Materialeigenschaften beeinflussen, zu erhöhen. Es wird gezeigt, dass Silizium, dessen unbeabsichtigter Einbau in den Kristall stark von den Wachstumsbedingungen abhängt, die Lumineszenzintensität der Schichten beeinflusst. In Kapitel 4 werden undotierte Laserstrukturen untersucht. Unter Zuhilfenahme verschiedenster Charakterisierungsmethoden wird der Einfluss der AlN/Saphir-Templates und des Heterostrukturdesigns auf die Lasereigenschaften analysiert. Kapitel 5 schließlich greift das Thema der Siliziumdotierung aus Kapitel 3 wieder auf und vereint es mit den Laserergebnissen aus dem vorherigen Kapitel. Durch Dotierung verschiedener Schichten in der Laserstruktur mit unterschiedlich hohen Siliziumkonzentrationen ist hier eine detaillierte Analyse des Siliziumeinflusses möglich und die für die optischen Eigenschaften und die Laserschwelle relevanten physikalischen Effekte können identifiziert werden.

Am Ende der Arbeit steht eine Zusammenfassung, in der auch die Übertragbarkeit der Ergebnisse auf andere Halbleiterbauelemente diskutiert wird.

Kapitel 1.

Theoretische Grundlagen

Im folgenden Kapitel wird auf grundlegende physikalischen Eigenschaften von Aluminiumgalliumnitrid (AlGaN) und Halbleiterlasern eingegangen. Da zu diesen Themen bereits unzählige Bücher existieren, sollen nur die für diese Arbeit relevantesten Eigenschaften und Effekte wiedergegeben werden. Für das AlGaN-Materialsystem zählen dazu die für das epitaktische Wachstum und das Heterostrukturdesign entscheidende Kristall- und Bandstruktur inklusive der elektrischen Polarisationsfelder, welche einen signifikanten Einfluss auf die Ladungsträgerrekombination in Quantenfilmen hat. Für Laser sind die Ladungsträgergenerations- und -rekombinationsprozesse, die Ausbildung optischer Moden im Resonator und die sich aus dem Zusammenspiel dieser Effekte ergebenden Bedingungen für Lasing von besonderem Interesse.

1.1. AlGaN-Halbleiter

1.1.1. Kristall- und Bandstruktur

Die thermodynamisch stabile Kristallstruktur von AlGaN ist die Wurtzitstruktur. Unter entsprechenden Bedingungen ist auch Wachstum in Zinkblendestruktur möglich [14–17], während Kristallisation in der Steinsalzstruktur nur bei sehr hohen Drücke >500 GPa stattfindet [18]. Alle weiteren Beschreibungen beziehen sich daher auf die Wurtzitstruktur, die in Abbildung 1.1(a) dargestellt ist. Sie besteht aus zwei hexagonalen Gittern, die gegeneinander verschoben sind. Dabei sitzt ebenso jedes Gruppe-III-Atom im Zentrum einer Tetraederbindung mit vier Stickstoffatomen wie jedes Stickstoffatom mit vier Gruppe-III-Atomen verbunden ist.

Die Gitterkonstanten a und c sowie die Bandlücken E_g für AlN und GaN sind in Tabelle 1.1 aufgeführt. Für unverspannte Mischkristalle $\text{Al}_x\text{Ga}_{(1-x)}\text{N}$ mit dem Al-Gehalt x und dem Ga-Gehalt $(1-x)$ können die Gitterkonstanten über die Vegard'sche Formel interpoliert werden [19]:

$$a(\text{Al}_x\text{Ga}_{(1-x)}\text{N}) = x \times a(\text{AlN}) + (1 - x) \times a(\text{GaN}) \quad (1.1)$$

$$c(\text{Al}_x\text{Ga}_{(1-x)}\text{N}) = x \times c(\text{AlN}) + (1 - x) \times c(\text{GaN}) \quad (1.2)$$

Diese Formeln gelten allerdings nur bei Mittelung über viele Einheitszellen, da die Abstände der einzelnen atomaren Bindungen sich mit der Zusammensetzung nur wenig ändern [20]. Die Bandlücke von ternärem $\text{Al}_x\text{Ga}_{(1-x)}\text{N}$ kann ebenso über Interpolation berechnet werden.

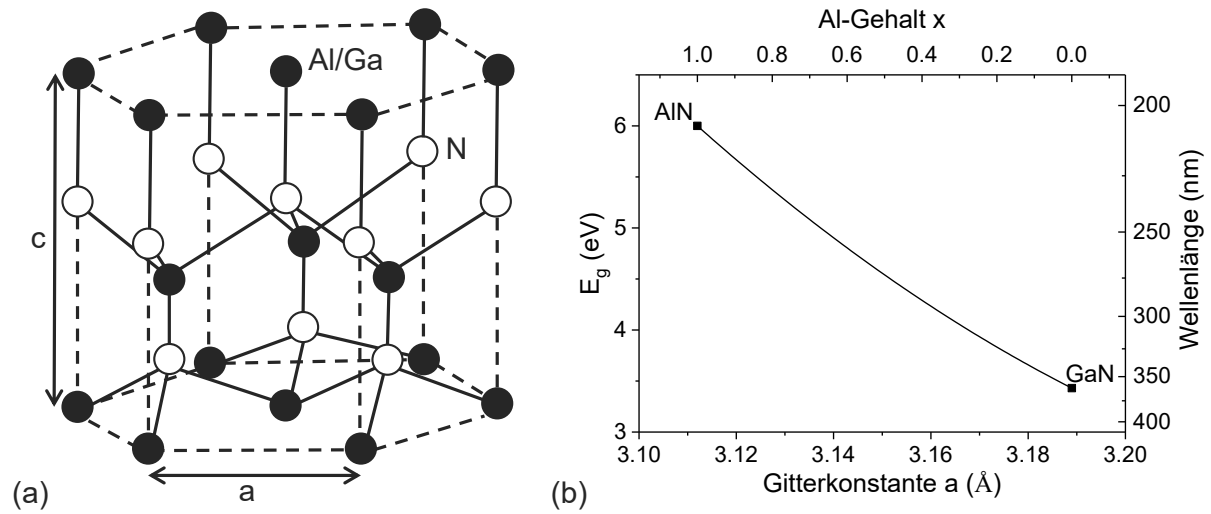


Abbildung 1.1.: (a) Schematische Darstellung der Einheitszelle von AlGaIn in der Wurtzitstruktur. Durchgezogene Linien repräsentieren chemische Bindungen, gestrichelte Linien dienen zur Veranschaulichung der hexagonalen Einheitszelle. (b) Bandlücke E_g von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ aufgetragen über der a -Gitterkonstante. Die rechte y -Achse zeigt entsprechende Wellenlänge und die obere x -Achse den Aluminiumgehalt x .

Experimentell zeigt sich allerdings ein nichtlinearer Zusammenhang, sodass ein zusätzlicher Bowingparameter $b = 0.7$ [21] eingeführt werden muss (Abb. 1.1(b)):

$$E_g(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}) = x \times E_g(\text{AlN}) + (1 - x) \times E_g(\text{GaN}) - x \times (1 - x) \times b \quad (1.3)$$

Tabelle 1.1.: Gitterkonstanten a und c sowie Bandlücken E_g von AlN und GaN (aus [22]).

Material	a (Å)	c (Å)	E_g (eV)	E_g (nm)
AlN	3.112	4.982	6.00	207
GaN	3.189	5.186	3.43	362

Die Bandlücke wird durch den Abstand des Leitungsband (LB) vom obersten Valenzband (VB) am Γ -Punkt definiert. Das Leitungsband wird dabei aus s-Orbitalen gebildet, während das Valenzband von p_x -, p_y - und p_z -Orbitalen gebildet wird [23]. Aus dieser Überlagerung ergibt sich eine dreifache Entartung, die in der Wurtzitstruktur durch das Kristallfeld und durch die Spin-Bahn-Kopplung aufgehoben wird, sodass sich das Valenzband in Leichtloch- (light hole, lh), Schwerloch- (heavy hole, hh) und Split-Off-Band (so) aufspaltet. Die Benennung von lh- und hh-Band erfolgt nach den effektiven Massen der Löcher, die über die 2. Ableitung der Energie-Impuls-Beziehung definiert werden:

$$E = \frac{\vec{p}^2}{2m_{\text{eff}}} = \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m_{ij}^*} \quad (1.4)$$

$$m_{ij}^* = \hbar^2 \left(\frac{\partial^2 E}{\partial k_i \partial k_j} \right)^{-1} \quad (1.5)$$

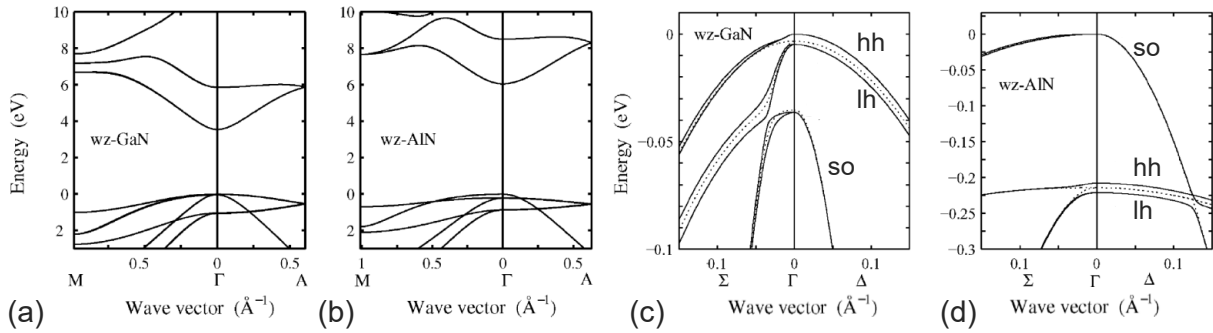


Abbildung 1.2.: (a), (b) Bandstruktur von GaN und AlN in der Nähe des Γ -Punkts, (c), (d) vergrößerter Ausschnitt, der die unterschiedliche Aufspaltung von lh, hh- und so-Valenzband in GaN und AlN zeigt. Abbildungen aus [24] mit Genehmigung von Elsevier.

Wie in Abb. 1.2 zu sehen ist die Krümmung des hh-Bands am Γ -Punkt kleiner als die des lh-Bands, d.h. die effektive Masse im hh-Band ist größer. Während bei GaN das hh-Band oben liegt, ist es bei AlN das so-Band. Dieses ist mit einem p_z -Orbital assoziiert, d.h. bei strahlenden Übergängen unter Beteiligung dieses Bandes schwingt das Dipolmoment entlang der c-Achse des Kristalls und die elektromagnetische Welle breitet sich demzufolge senkrecht dazu aus. Das Licht ist transversal magnetisch (TM) polarisiert und es erfolgt keine Abstrahlung in c-Richtung. Während dies für Kantenemitter-Laser kein fundamentales Problem ist, ergeben sich bei Licht emittierenden Dioden (LEDs), aber auch bei Photolumineszenz (PL)-Messungen Schwierigkeiten, wenn die Emission aus der Probenoberfläche detektiert werden soll. Der Aluminiumgehalt, bei dem das so-Band die oberste Position einnimmt, hängt stark von der Verspannung der Schicht ab. In auf AlN gewachsenen, kompressiv verspannten AlGaN-Quantenfilmen (Quantum Wells, QWs) ergibt sich typischerweise für Emissionswellenlängen unterhalb von 240–250 nm dominante TM-Polarisation [25], während dies bei unverspanntem AlGaN bereits unterhalb von ca. 300 nm der Fall ist [26, 27].

1.1.2. Polarisation

In einem idealen Wurtzitkristall sind die Bindungslängen aller Tetraederbindungen identisch. Aufgrund der großen Unterschiede in der Größe der Gruppe-III-Atome (Al, Ga) und des Stickstoffs ist dies in AlGaN jedoch nicht der Fall und das Gitterkonstanten-Verhältnis c/a ist deutlich niedriger als der Idealwert $\sqrt{8/3} \approx 1.633$, wobei der Unterschied mit zunehmendem Al-Gehalt zunimmt ($c/a(\text{GaN}) = 1.626$, $c/a(\text{AlN}) = 1.601$) [28]. Verbunden damit ist der interne Zellparameter u (Quotient aus Anion-Kation-Abstand und c-Gitterkonstante) größer als der Idealwert von $3/8$ [28]. Hinzu kommt, dass die unterschiedlichen Elektronegativitäten von (Al, Ga) und N zu einer Verschiebung der Bindungselektronen zum Stickstoff führen. Diese Effekte haben die Ausbildung eines Dipolmoments zur Folge, welches als spontane Polarisation P_{SP} bezeichnet wird. P_{SP} ist in AlGaN im gesamten Zusammensetzungsbereich negativ und nimmt mit zunehmendem Aluminiumgehalt zu [29]. Wird das Kristallgitter durch äußere Einflüsse, wie z.B. Verspannung in Heterostrukturen, weiter verzerrt, entsteht ein zusätzliches Dipolmoment, die piezoelektrische Polarisation

P_{PZ} . Im für diese Arbeit relevanten Fall von kompressiv auf metallpolarem AlN gewachsenen AlGaIn ist P_{PZ} positiv und damit P_{SP} entgegen gerichtet [30]. Die Gesamtpolarisation $P_{tot} = P_{SP} + P_{PZ}$ wird also durch die kompressive Verspannung reduziert. Maßgebliche theoretische Arbeiten zur Polarisation in Nitriden wurden von Bernardini und Fiorentini geleistet [29, 31–35]. Neuere Arbeiten deuten jedoch darauf, dass die berechneten Werte zumindest die spontane Polarisation überschätzen [36–40]. Mögliche Ursachen hierfür sind Grenzflächenzustände und höhere Ordnungen des piezoelektrischen Effekts, die ein entgegengesetztes Vorzeichen aufweisen können.

Die Differenz in der Polarisation zweier Schichten i, j führt zur Ausbildung einer Grenzflächenladung

$$\sigma_{i \rightarrow j} = -\Delta P_{tot} = -(P_{tot,i} - P_{tot,j}), \quad (1.6)$$

die z.B. an der Grenzfläche von unverspanntem AlN zu verspanntem AlGaIn negativ ist. Die durch die Grenzflächenladungen erzeugten elektrischen Felder weisen Feldstärken im Bereich von einigen MV/cm auf und verursachen daher starke Bandverbiegungen. In Quantenfilmen führt dies zum Quantum Confined Stark Effect (QCSE). Die Verkipfung der Bänder trennt die Elektronen- und Lochwellenfunktion und verringert gleichzeitig den Abstand der gebundenen Zustände, sodass es zu einer Rotverschiebung der Emissionswellenlänge kommt (Abb. 1.3)¹.

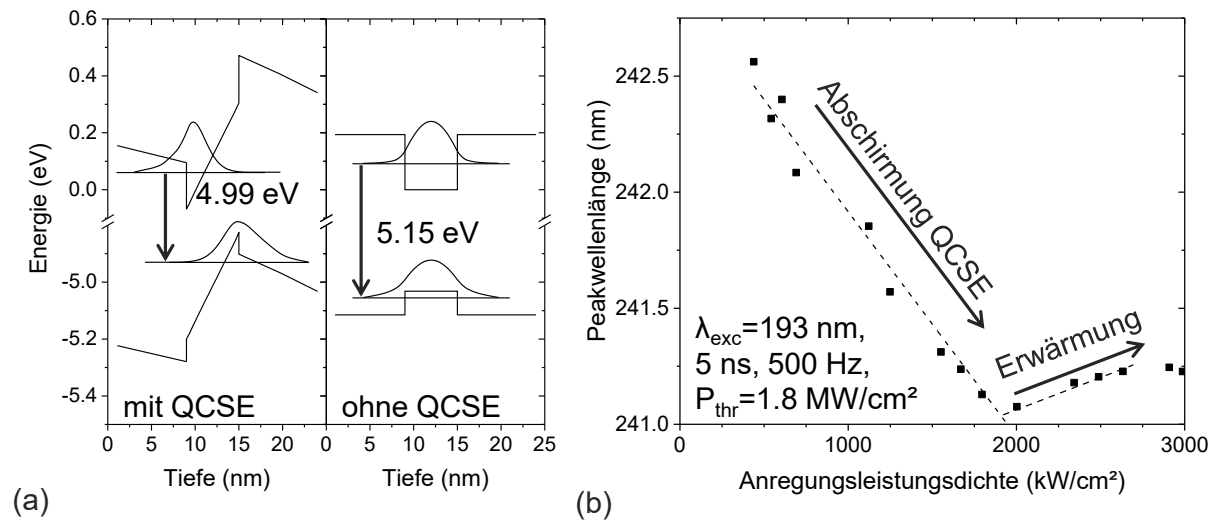


Abbildung 1.3.: (a) Bandstruktur sowie Elektronen- und Lochwellenfunktion in einem GaN/AlGaIn-Quantenfilm einmal mit und einmal ohne QCSE, (b) Experimentell bestimmte Abhängigkeit der Wellenlänge eines AlGaIn-Lasers von der Pumpleistung unter optischer Anregung. Die Laserschwelle P_{thr} liegt bei 1800 kW/cm^2 .

Der verringerte Überlapp der Wellenfunktionen reduziert die Wahrscheinlichkeit für strahlende Rekombination. Der Effekt nimmt mit der Quantenfilmdicke zu [41], sodass insbesondere für LEDs dünne Quantenfilme vorteilhaft sind [42, 43]. In die Heterostruktur

¹QCSE bezeichnet im engeren Sinne nur die Rotverschiebung der Emissionswellenlänge. In dieser Arbeit wird der Begriff weiter gefasst und auch für die Beeinflussung der Bandkanten durch die Polarisationsfelder verwendet.

injizierte Ladungsträger schirmen die internen Felder allerdings ab, sodass der Einfluss des QCSE auf Laser geringer ausfällt, da diese bei wesentlich höheren Anregungsleistungsdichten betrieben werden [44, 45]. Dies ist wie in Abb. 1.3(b) dargestellt auch an einer deutlichen Verschiebung der Emission mit zunehmender Pumpleistung hin zu kürzeren Wellenlängen erkennbar [46]. Die Wellenlängenverschiebung wird allerdings bei hohen Ladungsträgerdichten eventuell durch Band Filling (Burstein-Moss-Effekt) verstärkt [47–49], während Bandlückenrenormalisation durch die Wechselwirkung von Elektronen untereinander und mit Punktdefektionen zu einer kompensierenden Rotverschiebung führt [49, 50]. Für die Rotverschiebung ab 2 MW/cm^2 ist hauptsächlich Erwärmung verantwortlich, da die Ladungsträgerdichte in der aktiven Zone und damit auch der Einfluss ladungsträgerdichteabhängiger Effekte oberhalb der Schwelle konstant sind.

1.2. Laser

Laser (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation) erzeugen monochromatisches, kohärentes, gerichtetes Licht. Sie bestehen aus einem Resonator, in dem sich stehende Wellen des elektromagnetischen Feldes, sogenannte Moden ausbilden. Im Resonator befindet sich das Gewinnmedium, in dem die Photonen durch stimulierte Emission erzeugt werden.

Halbleiterlaser lassen sich auf vielfältige Weise realisieren. Dabei kann z.B. nach dem aktiven Medium (Quantenfilmlaser, Quantenpunktlaser, Quantenkaskadenlaser, etc.) oder nach der Bauform (Kantenemitter, Vertical Cavity Surface Emitting Laser (VCSEL), Scheibenlaser, etc.) unterschieden werden. Alle weiteren Erläuterungen beziehen sich auf die in dieser Arbeit relevanten Kantenemitter mit Quantenfilmen als aktivem Medium. Im Folgenden wird zunächst die Ladungsträgerdynamik als Grundlage für die Photonenemission erläutert, bevor anschließend näher auf die Eigenschaften des optischen Resonators eingegangen wird.

1.2.1. Ladungsträgerdynamik

In Halbleitern findet kontinuierlich die Generation und Rekombination von Ladungsträgern statt. Im stationären Fall, d.h. im thermodynamischen Gleichgewicht ohne äußere Störung ebenso wie unter kontinuierlicher Anregung beispielsweise mit Laserlicht, ist die Generationsrate G stets genauso groß wie ihre Rekombinationsrate R :

$$G - R = 0 \tag{1.7}$$

Bei gepulster Anregung führt die erhöhte Ladungsträgerdichte zeitweilig zu einer verstärkten Rekombinationsrate, die anschließend kontinuierlich auf den Gleichgewichtswert zurück geht.

Generation Die Generation der Ladungsträger kann durch Strominjektion (Diodenlaser), durch optische Anregung [51–53] oder auch durch einen Elektronenstrahl erfolgen [10, 54, 55]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die optische Anregung gewählt (Abb. 1.4(a)).

Damit Elektron-Loch-Paare erzeugt werden können, muss die Photonenenergie der Anregungsquelle mindestens so groß wie die Bandlücke des Halbleiters sein. Ist dies der Fall, so nimmt die Anregungsintensität I_0 beim Durchlaufen des Halbleitermaterials exponentiell ab [56, 57] und die in einer Schicht der Dicke d absorbierte Intensität I_{abs} kann über

$$I_{\text{abs}} = I_0 (1 - e^{-\alpha d}) \quad (1.8)$$

berechnet werden. Der Absorptionskoeffizient α hängt dabei unter anderem vom Übergangsmatrixelement der beteiligten Zustände sowie den Zustandsdichten (Density of States, DOS) und Besetzungswahrscheinlichkeiten ab. Da ein Quantenfilmlaser aus mehreren Halbleiterschichten mit unterschiedlicher Zusammensetzung und damit unterschiedlicher Bandlücke besteht, werden abhängig von der Anregungswellenlänge Ladungsträger entweder nur in den Quantenfilmen oder auch in den umliegenden Wellenleiter- und ggf. den Mantelschichten generiert. Die QWs weisen die niederenergetischsten Elektronen- und Lochniveaus aller Schichten auf, sodass sich die Ladungsträger in ihnen sammeln. Da bei der optischen Anregung im Gegensatz zur Strominjektion kein elektrisches Feld die Drift der Ladungsträger in die QWs verursacht, steigt die Wahrscheinlichkeit, dass Ladungsträger rekombinieren, bevor sie durch statistische Diffusion die Quantenfilme erreichen. Der Effekt ist aufgrund der exponentiellen Abnahme der Generationsrate mit der Eindringtiefe besonders groß, wenn das Pumplicht bereits in einer dicken oberen Mantelschicht absorbiert wird. Der Einfluss dieses Effekts lässt sich reduzieren, indem die Ladungsträgergeneration möglichst nah bei den Quantenfilmen erfolgt, z.B. indem die Anregungswellenlänge so gewählt wird, dass nur in den QWs und den Wellenleitern Elektron-Loch-Paare erzeugt werden. Abgesehen von praktischen Erwägungen (es muss eine Anregungsquelle mit passender Wellenlänge vorhanden sein), reduziert dies jedoch die Effektivität des Pumpprozesses und damit die Gesamtmenge der erzeugten Ladungsträger, da aufgrund der geringen Dicke der Wellenleiterschichten nur ein Teil des Pumplichts absorbiert wird. Ein alternativer Ansatz ist die Wahl einer dünnen oberen Mantelschicht, sodass auch bei Absorption des Pumplasers in allen Schichten möglichst viele Ladungsträger im Bereich der Diffusionslänge um die Quantenfilme generiert werden. Nachteilig bei Anregung der gesamten Heterostruktur ist der größere Wärmeeintrag, da die Differenz zwischen der Photonenenergie der Pumpquelle und der Bandlücke der QWs in Wärme umgewandelt wird, wenn die Ladungsträger an die Bandkanten bzw. in die Quantenfilme relaxieren [58, S. 281].

Strahlende Rekombination Die strahlende Rekombination bezeichnet hier die Rekombination von Leitungsband-Elektron und Valenzband-Loch unter Emission eines Photons. Es muss zwischen der spontanen und der stimulierten Emission unterschieden werden. Die stimulierte Emission wird durch ein bereits vorhandenes Photon ausgelöst, wobei das emittierte Photon identische Eigenschaften (Wellenlänge, Polarisation, Ausbreitungsrichtung) hat (Abb. 1.4(c)). Die Rate der stimulierten Emission R_{stim} für einen Übergang von einem Niveau E_2 im Leitungsband zu einem Niveau E_1 im Valenzband unter Aussendung eines Photons mit der Energie $E_{21} = h\nu$ hängt über

$$R_{\text{stim}}(E_{21}) = B_{21} \times n_{\text{ph}}(h\nu) \times D_{\text{LB}}(E_2 - E_{\text{LB}}) \times D_{\text{VB}}(E_{\text{VB}} - E_1) \times (f_2 - f_1) \quad (1.9)$$

vom Einsteinkoeffizienten der stimulierten Emission B_{21} , der Photonendichte n_{ph} sowie den Zustandsdichten D_{LB} , D_{VB} und Besetzungswahrscheinlichkeiten f_1 , f_2 der Niveaus im VB und LB ab [59, S. 50]. E_{VB} und E_{LB} sind die Valenz- und Leitungsbandkantenenergien. Der Einsteinkoeffizient wiederum beinhaltet das optische Übergangsmatrixelement. Die Formel für die Rate der spontanen Emission (Abb. 1.4(b)) hängt vom Einsteinkoeffizienten der spontanen Emission A_{21} ab und ist unabhängig von der Photonendichte n_{ph} :

$$R_{\text{sp}}(E_{21}) = A_{21} \times D_{\text{LB}}(E_2 - E_{\text{LB}}) \times f_2 \times D_{\text{VB}}(E_{\text{VB}} - E_1) \times (1 - f_1) \quad (1.10)$$

Im realen Halbleiter sind die Zustände kontinuierlich verteilt, sodass über alle Übergänge, die $h\nu$ bzw. E_{21} entsprechen, integriert werden muss [60, S. 197]. Unter Annahme parabolischer Bänder und bei Verwendung der Boltzmann-Näherung für die Verteilungsfunktion im nicht entarteten Halbleiter führt dies für die stimulierte Emission zu

$$R_{\text{stim}} = npB_{21}n_{\text{ph}} \quad (1.11)$$

und für die spontane Emission zu

$$R_{\text{sp}} = npA_{21} \quad (1.12)$$

Quantenfilme sind für die strahlende Rekombination in dreifacher Hinsicht vorteilhaft. Erstens sammeln Elektronen und Löcher sich in einem kleinen Bereich, sodass in diesem die Ladungsträgerdichte und damit die Besetzungswahrscheinlichkeit der Niveaus ansteigt, wodurch sich die Wahrscheinlichkeit für strahlende Rekombination erhöht. Zweitens verändert die eindimensionale Diskretisierung der Energieniveaus die DOS in den Quantenfilmen zu einer Rechteckfunktion, sodass bereits bei der minimalen Übergangsenergie eine höhere Zustandsdichte verfügbar ist [61]. Drittens erhöht die räumliche Konzentration der Ladungsträger den Überlapp ihrer Wellenfunktionen $\Psi_e(x)$, $\Psi_h(x)$ und damit auch die strahlende Rekombinationsrate, da die Einsteinkoeffizienten im Quantenfilm B_{QW} , A_{QW} über den Wellenfunktionsüberlapp $F_{\text{LV}} = \int_0^\infty \Psi_h^*(x)\Psi_e(x)dx$ mit den Einsteinkoeffizienten im Volumenhalbleiter B_{bulk} , A_{bulk} verknüpft sind [62–64]:

$$B_{\text{QW}} = |F_{\text{LV}}|^2 B_{\text{bulk}} \quad (1.13)$$

$$A_{\text{QW}} = |F_{\text{LV}}|^2 A_{\text{bulk}} \quad (1.14)$$

Dieser Vorteil wiederum wird durch den QCSE verringert, da die Verkipfung der Bänder zu einer räumlichen Trennung der Wellenfunktionen führt.

Nichtstrahlende Defektrekombination Defekte (Fremdatome, Versetzungen) – auch Traps genannt – bilden lokalisierte Energiezustände nahe der Mitte der Bandlücke aus. Werden ein Elektron aus dem Leitungsband und ein Loch aus dem Valenzband in demselben Defektzustand eingefangen, so können diese anschließend nichtstrahlend rekombinieren (Abb. 1.4(d)). Die Rekombinationsrate lässt sich nach der Shockley-Read-Hall (SRH)-Theorie [65, 66] berechnen über:

$$R_{\text{SRH}} = \frac{np - n_i^2}{\tau_n \left(p + N_{\text{VB}} \exp \left\{ \frac{E_{\text{VB}} - E_{\text{T}}}{k_{\text{B}} T} \right\} \right) + \tau_p \left(n + N_{\text{LB}} \exp \left\{ \frac{E_{\text{T}} - E_{\text{LB}}}{k_{\text{B}} T} \right\} \right)} \quad (1.15)$$

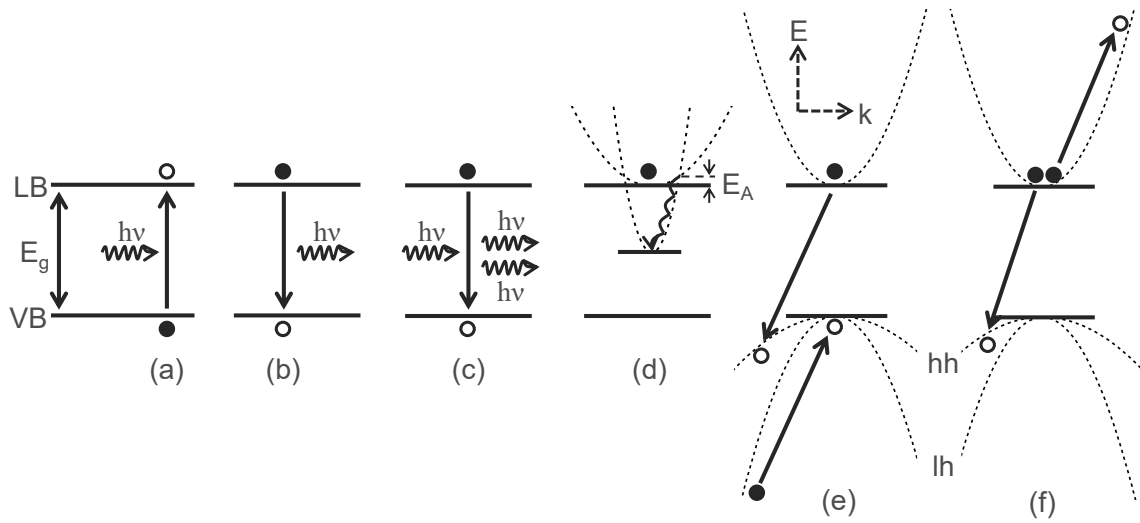


Abbildung 1.4.: (a) Generation eines Elektron-Loch-Paars durch Absorption eines Photons, (b) Rekombination unter spontaner Emission, (c) Rekombination unter stimulierter Emission, (d) Elektroneneinfang durch einen Defektzustand in der Mitte der Bandlücke unter Multiphononenemission, gestrichelt sind die Vibrationsniveaus dargestellt, (e) Augerrekombination unter Anhebung eines Elektrons im lh-VB, (f) Augerrekombination unter Anhebung eines Elektrons im LB. Gefüllte Kreise stellen besetzte Zustände/Elektronen dar, leere Kreise leere Zustände/Löcher.

Dabei sind

n, p	Konzentrationen von Elektronen und Löchern,
n_i	intrinsische Ladungsträgerkonzentration,
τ_n, τ_p	SRH-Lebensdauern,
N_{VB}, N_{LB}	Zustandsdichten in VB und LB,
E_{VB}, E_{LB}	Valenz- und Leitungsbandenergien,
E_T	Defektenergieniveau und
k_B	Boltzmann-Konstante,
T	Temperatur.

Davon ausgehend, dass Elektronen und Löcher in gleichem Maße generiert werden, also $n \approx p$, steht in Formel 1.15 die Ladungsträgerdichte im Zähler im Quadrat (np), im Nenner aber nur in der Summe. Die SRH-Rekombinationsrate ist also annähernd proportional zur Ladungsträgerkonzentration. Daraus folgt, dass die SRH-Rekombination mit steigender Anregungsleistung gegenüber der strahlenden Rekombination an Bedeutung verliert, da letztere quadratisch von der Ladungsträgerdichte abhängt (Formeln 1.11, 1.12).

Der Einfang von Elektron und Loch in den Defektzustand kann entweder durch Auger-Rekombination, durch Emission eines Photons oder über Multiphononenprozesse stattfinden. Störstellen-Augerrekombination ist proportional zur dritten Potenz der Ladungsträgerkonzentration und daher in der Regel vernachlässigbar. Der strahlende Einfang ist sowohl in GaN („gelbe Lumineszenz“) als auch in AlGaIn bekannt [67, 68]. Auch wenn die eigentliche Rekombination nichtstrahlend erfolgt, ist dieser Prozess aufgrund der Photonenemission einfach optisch detektierbar.

Der nichtstrahlende Einfang findet am wahrscheinlichsten über Multiphononenprozesse statt. Die SRH-Lebensdauern der Elektronen ($i = n$) und Löcher ($i = p$) können in diesem Falle ausgedrückt werden über

$$\tau_i = (\sigma_{T,i} v_{th,i} N_T)^{-1} \quad (1.16)$$

mit den Einfangquerschnitten $\sigma_{T,i}$, der Defektkonzentration N_T und den über die effektiven Massen m_i^* und die Elektronenruhemasse m_0 definierten thermischen Geschwindigkeiten

$$v_{th,i} = \sqrt{3k_B T / (m_i^* m_0)} \quad (1.17)$$

Gitterschwingungen führen zu einer Oszillation der Defektlevelenergie ebenso wie der Bandkanten um die jeweiligen Gleichgewichtspositionen. Ist die Oszillation stark genug, kann ein Ladungsträger von der Bandkante in einen angeregten Zustand des Defektlevels übergehen und anschließend unter Emission von Phononen in den Grundzustand relaxieren [69–71]. Die Abhängigkeit des Prozesses vom Vorhandensein von Gitterschwingungen lässt sich über eine charakteristische Aktivierungsenergie $E_{A,i}$ des Einfangquerschnitts $\sigma_{T,i}$ für Elektronen und Löcher ausdrücken:

$$\sigma_{T,i} \propto \exp\left(-\frac{E_{A,i}}{k_B T}\right) \quad (1.18)$$

Dies führt dazu, dass die nichtstrahlende Rekombination über Multiphononenprozesse mit abnehmender Temperatur stark zurückgeht und für ausreichend niedrige Temperaturen für die Ladungsträgerdynamik vernachlässigbar ist.

Auger-Rekombination Auger-Rekombination ist ebenfalls ein nichtstrahlender Rekombinationsmechanismus. Die frei werdende Energie (und der frei werdende Impuls) bei der Rekombination von Leitungsbandelektron und Valenzbandloch wird dabei an ein anderes Loch (R_{npp}) oder Elektron (R_{npn}) abgegeben (Abb. 1.4(e),(f)). Der angeregte Ladungsträger hat entweder genug Energie, um den Halbleiter zu verlassen oder er relaxiert unter Emission von Phononen wieder an die Bandkante. Da sowohl Energie- als auch Impulserhaltung gegeben sein müssen, hängt die Wahrscheinlichkeit eines Augerprozesses von der Bandstruktur des Halbleiters ab. Die Augerkoeffizienten $C_{n,p}^A$ sind daher Materialkonstanten und für die Rekombinationsrate gilt

$$R_{npp} = C_p^A n p^2 \quad (1.19)$$

$$R_{npn} = C_n^A n^2 p \quad (1.20)$$

Dass es sich um einen Dreiteilchenprozess handelt, reduziert die Wahrscheinlichkeit für Augerrekombination deutlich, sodass diese erst bei sehr hohen Ladungsträgerkonzentrationen relevant wird und häufig vernachlässigt werden kann. Konsistente Augerkoeffizienten für die III-Nitride sind noch nicht verfügbar. Experimentell ermittelte und berechnete Werte liegen für InGaN im Bereich von $10^{-29} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$ bis $10^{-31} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$ [72]. Für AlGaN finden sich ähnliche Angaben [73, 74].

1.2.2. Optische Moden

Die Heterostrukturen der in dieser Arbeit untersuchten Laser bestehen aus Mantelschichten, Wellenleiterschichten und den Quantenfilmen mit trennenden Quantenbarrieren (Quantum Barriers, QBs). Abbildung 1.5 zeigt eine typische AlGaN-Laserstruktur sowie das zugehörige Brechungsindexprofil und die Intensitätsverteilung der vertikalen Grundmode.

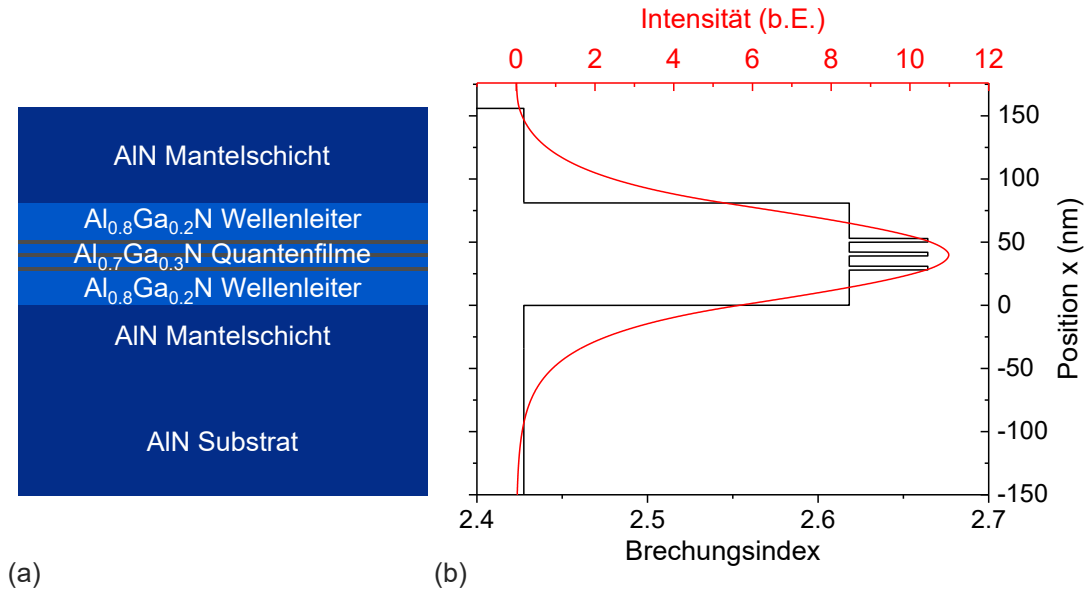


Abbildung 1.5.: (a) Exemplarische Heterostruktur eines AlGaN-Kantenemitter-Lasers mit typischen Materialzusammensetzungen (b) Brechungsindexprofil und Intensitätsverteilung der vertikalen Grundmode

Vertikale Moden In vertikaler Richtung, d.h. senkrecht zu den Heterogrenzflächen, haben die Wellenleiterschichten einen höheren Brechungsindex als die Mantelschichten, sodass es im strahlenoptischen Bild zu Totalreflexion des in den Quantenfilmen erzeugten Lichts kommt, wenn dieses unter einem ausreichend flachen Winkel auf die Grenzfläche trifft. Im korrekteren wellenoptischen Bild kommt es Ausbildung von Moden im Wellenleiter, stabilen Intensitätsverteilungen, die in den Mantelschichten exponentiell abklingen und über die Helmholtzgleichung berechnet werden können. Ob neben der in Abb. 1.5(b) dargestellten Grundmode auch höhere Moden mit mehreren Intensitätsmaxima möglich sind, hängt von der Gesamtdicke des Wellenleiters und der Brechungsindexdifferenz ab. Die minimale Wellenleiterdicke d_m , damit sich eine Mode der Ordnung m ausbreiten kann, ist näherungsweise gegeben durch

$$d_m = \frac{m\lambda}{2\sqrt{n_{\text{WL}}^2 - n_{\text{MS}}^2}} \quad (1.21)$$

mit der Wellenlänge λ und den Brechungsindizes n_{WL} bzw. n_{MS} von Wellenleiter und Mantelschicht [75, S.134]. Der Zusammenhang ist in Abbildung 1.6 verdeutlicht. Die Abbildung zeigt auch, dass sich in der Struktur aus Abb. 1.5 nur die vertikale Grundmode

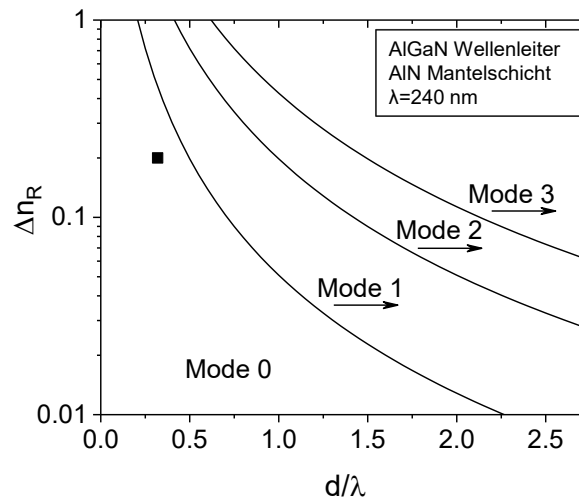


Abbildung 1.6.: Für die Ausbreitung vertikaler Moden der Wellenlänge λ in einem AlGaIn/AlN-Wellenleiter der Dicke d notwendiger Brechungsindexsprung $\Delta n_R = n_{WL} - n_{MS}$ in Abhängigkeit vom Verhältnis d/λ . Das Rechteck entspricht den Werten der Struktur aus Abb. 1.5.

ausbreiten kann. Aufgrund der geringen Wellenleiterdicken ist dies für alle in dieser Arbeit untersuchten Laserstrukturen der Fall.

Longitudinale Moden Der Resonator wird bei Kantenemittern in der Regel durch Brechen des Wafers entlang zweier gleichartiger Kristallebenen geformt, wobei die kristalline Fernordnung eine nahezu perfekte Parallelität garantiert. In longitudinaler Richtung laufen die Photonen zwischen diesen Facetten mit der Reflektivität R hin und her, wobei sie an jeder Facette mit der Wahrscheinlichkeit $(1 - R)$ den Resonator verlassen können. Für stabile longitudinalen Moden muss die Resonatorlänge L einem ganzzahligen Vielfachen q der halben Wellenlänge im Medium entsprechen:

$$L = q \frac{\lambda}{2n_R} \quad (1.22)$$

wobei n_R in diesem Fall der effektive mittlere Brechungsindex ist, den das Licht in der Heterostruktur erfährt. Aus der Formel kann der Abstand $\Delta\lambda$ zweier benachbarter longitudinaler Moden berechnet werden:

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{2n_R L} \quad (1.23)$$

Für eine typische Resonatorlänge von $1000 \mu\text{m}$ und eine Laserwellenlänge von 240 nm beträgt der longitudinale Modenabstand demzufolge ca. 0.012 nm .

Laterale Moden In lateraler Richtung, d.h. senkrecht zum Resonator, aber parallel zu den Heteroschichten kann Modenführung zu einem durch Änderung des Brechungsindex erreicht werden, z.B. indem neben dem Resonator Material weggeätzt wird, sodass ein Rippenwellenleiter entsteht. In diesem Fall wird die Struktur als indexgeführt beschrieben.

Alternativ kann der Imaginärteil des komplexen Brechungsindex, der Absorption und Verstärkung beschreibt, variiert werden. Wird in lateraler Richtung nur ein bestimmter Bereich durch Ladungsträgerinjektion zur Emission von Photonen angeregt, so kann sich eine stabile Mode nur innerhalb dieses Bereichs ausbilden, da sie außerhalb davon in den Quantenfilmen absorbiert würde. Man spricht in diesem Fall von Gewinnführung (vgl. z.B. [76]). Durch die größere Ausdehnung als in vertikaler Richtung werden dabei häufig mehrere Moden angeregt [77]. Außerdem kommt es durch inhomogene Ladungsträgerverteilungen zur Bildung von Filamenten [78–80].

1.2.3. Laserbedingungen

Die in den Quantenfilmen strahlend rekombinierenden Elektronen und Löcher erzeugen Photonen, die in die Moden des Resonators abgestrahlt werden. Die Photonendichte im Resonator wird durch Auskopplung an den Facetten und durch interne Verluste reduziert. Wichtige interne Verlustmechanismen sind

- Streuung, z.B. an Defekten oder Heterogrenzflächen,
- Interbandabsorption in ungepumpten Bereichen der Quantenfilme,
- Bandkantennahe Absorption im Bereich des „Urbach tails“ unterhalb der Bandkante der Wellenleiterschichten ($\alpha \propto \exp\left[\frac{\hbar\omega - E_g}{E_{\text{tail}}}\right]$) [81–83],
- Absorption durch freie oder an Störstellen gebundene Ladungsträger in Verbindung mit Elektron-Phonon-Streuung, Streuung an geladenen Defekten, Streuung an Inhomogenitäten des Kristallpotentials [84, 85].

Die verschiedenen Moden erfahren unterschiedlich starke Verluste, beispielsweise durch einen unterschiedliche großen Überlapp mit ungepumpten Bereichen der Quantenfilme. Photonen in den Moden mit den geringsten Verlusten haben eine höhere Lebensdauer im Resonator und damit eine höhere Wahrscheinlichkeit, die stimulierte Emission neuer Photonen in dieselbe Mode anzuregen. Damit die Photonendichte tatsächlich ansteigt, d.h. damit in den Quantenfilmen Verstärkung/Gewinn stattfindet, muss die Wahrscheinlichkeit für stimulierte Emission größer sein als die Wahrscheinlichkeit für Absorption, d.h. in Gleichung 1.9 muss die Besetzungswahrscheinlichkeit des VB-Niveaus f_2 größer sein als die des LB-Niveaus f_1 . Dies ist genau dann erfüllt, wenn der Abstand der Quasifermilevel von Elektronen E_{fc} und Löchern E_{fv} größer ist als die Bandlücke E_g [86, S. 37]:

$$E_g < E_{\text{fc}} - E_{\text{fv}} \quad (1.24)$$

Die Ladungsträgerdichte, für die diese Bedingung gerade erfüllt ist, heißt Transparenzladerdichte N_{tr} . Wird die Ladungsträgerdichte weiter erhöht, so nimmt die Verstärkung in den Quantenfilmen – auch als Materialgewinn G bezeichnet – ebenfalls zu. Die modale Verstärkung g_{mod} für eine bestimmte Resonatormode mit der vertikalen Intensi-

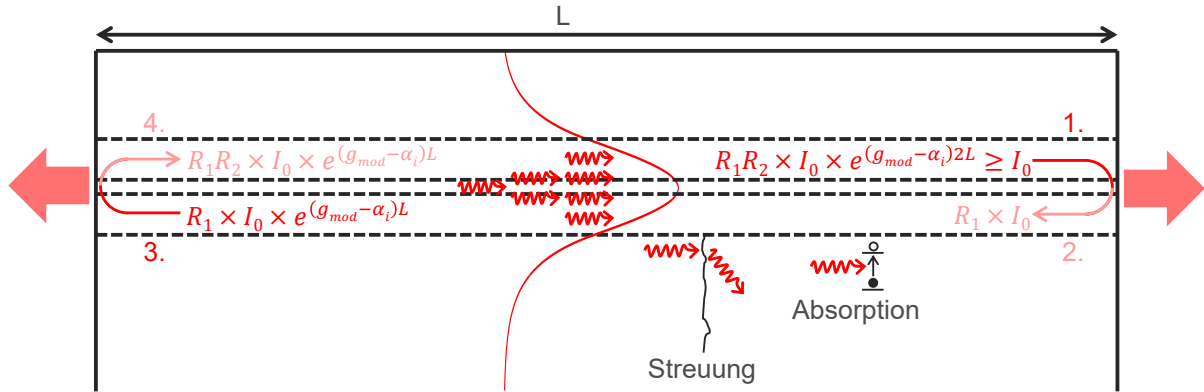


Abbildung 1.7.: Schematische Darstellung der Laserbedingung in einem Kantenemitter mit den Facettenreflektivitäten R_1 und R_2 . Die Anfangsintensität I_0 (1.) wird an der Facette reflektiert (2.), erfährt bei Durchlaufen des Resonators Verstärkung und Verluste (3.), wird an der zweiten Facette reflektiert (4.) und durchläuft den Resonator in Gegenrichtung. Ist die Intensität danach immer noch mindestens I_0 , ist die Laserschwelle erreicht. Als Verlustmechanismen sind die Streuung an einer Versetzung und Absorption durch ein Elektron in einem Defektzustand skizziert.

tätsverteilung $I_{\text{mod}}(x)$ ergibt sich aus Multiplikation von G mit dem Überlapp Γ zwischen der Mode und den Quantenfilmen:

$$g_{\text{mod}} = G\Gamma \quad (1.25)$$

$$\Gamma = \frac{\int_{\text{QWs}} I_{\text{mod}}(x) dx}{\int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{mod}}(x) dx} \quad (1.26)$$

Wenn die optische Intensität I_0 in einer Mode bei einem vollständigen Umlauf im Resonator konstant bleibt, d.h. wenn sich die Verluste α und die Verstärkung g genau ausgleichen, ist die Laserschwelle erreicht (Abb. 1.7):

$$I_0 = I_0 R_1 R_2 \exp[(g_{\text{thr}} - \alpha_i) \times 2L] \quad (1.27)$$

$$g_{\text{thr}} = \alpha_i + \frac{1}{2L} \ln\left(\frac{1}{R_1 R_2}\right) \quad (1.28)$$

Dabei sind

R_1, R_2	Reflektivitäten der Facetten (ohne Beschichtung gilt $R_1 = R_2$),
g_{thr}	modaler Gewinn an der Laserschwelle,
α_i	interne Verluste,
L	Resonatorlänge.

Jede Resonatormode hat eine eigene Schwelle. Als Laserschwelle wird in der Regel die minimale Anregungsleistung definiert, bei der eine der Moden zu lasen beginnt. Mehrere Moden können nur dann gleichzeitig lasen, wenn sie entweder räumlich (laterale Moden) oder spektral (longitudinale Moden) getrennt sind, da eine Mode in dem Bereich, in dem sie mit den Quantenfilmen überlappt, die Ladungsträgerrekombination bei den ihrer

Wellenlänge entsprechenden Übergangsenergien dominiert. Das Anschwingen mehrerer longitudinaler Moden ist die Regel, weil das Gewinnspektrum deutlich breiter als der spektrale Modenabstand ist [87, 88].

Oberhalb der Schwelle sind die Ladungsträgerdichte und die Verstärkung konstant, da alle zusätzlich in die Quantenfilme injizierten Ladungsträger zur stimulierten Emission beitragen. Die emittierte Intensität steigt daher linear mit der Anregungsleistung (=injizierte Ladungsträgerdichte) an.

Kapitel 2.

MOVPE-Wachstum und Charakterisierungsmethoden

2.1. Probenpräparation

2.1.1. MOVPE-Reaktor

Sämtliche in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden mittels metallorganischer Gasphasenepitaxie (Metalorganic Vapor Phase Epitaxy, MOVPE) in einem AIX2400 G3 HT Planetenreaktor der Firma AIXTRON gewachsen. Der Reaktor selbst befindet sich in einer Glovebox, die über eine Probenschleuse mit der Umgebung verbunden ist. Dadurch kann in der Reaktorumgebung ein Sauerstoff- und Wassergehalt von 1 ppm oder weniger erreicht werden. Als Ausgangsstoffe wurden Trimethylaluminium (TMAI, $\text{Al}(\text{CH}_3)_3$), Trimethylgallium (TMGa, $\text{Ga}(\text{CH}_3)_3$), Ammoniak (NH_3) und Disilan (Si_2H_6) verwendet. Das Trägergas war Wasserstoff (H_2) mit einer Reinheit von 9.0 (99.999 999 90 %). Ammoniak und Wasserstoff werden über Leitungen aus Tanks in das Gasmischsystem des Reaktors transportiert, während TMAI und TMGa in so genannten Bubbler in flüssiger Form bei einer definierten Temperatur vorliegen. Wird das Trägergas durch die Bubbler geleitet, so wird es in Abhängigkeit vom Dampfdruck des entsprechenden metallorganischen Ausgangsstoffs mit diesem gesättigt und transportiert diesen in den Reaktor. Dabei wird über Bubblerdruck und -temperatur sowie durch den Trägergasfluss durch den Bubbler die transportierte Stoffmenge kontrolliert¹. Die Flüsse aller Gase werden durch Massenflussregler gesteuert, wobei während eines Wachstumsprozesses versucht wird, den Gesamtfluss in den Reaktor konstant zu halten, um ein stabiles Strömungsprofil zu erzielen. Dazu wird eine Veränderung der Aktivgase (NH_3 , H_2 mit TMAI, H_2 mit TMGa) durch eine entgegengesetzte Veränderung des H_2 -Flusses ausgeglichen. Die Gase werden in der Mitte des runden Reaktors durch einen Dreifacheinlass injiziert (Abb. 2.1), wobei die Metallorganika durch den mittleren Einlass strömen während ober- und unterhalb Ammoniak einströmt. Der Druck im Reaktor wird durch ein Ventil im Abgassystem geregelt, welches den Gasabfluss steuert. Der Tantalkarbid-beschichtete Graphitsuszeptor wird über eine darunter befindliche RF-Heizung auf die Wachstumstemperatur von 900 °C bis 1200 °C erhitzt, wobei ein Temperatursensor auf der Rückseite des Suszeptors als Regelement dient.

¹Nähere Erläuterungen zur Berechnung der Stoffmengenflüsse und Partialdrücke finden sich im Anhang ab Seite 104.

Auf dem rotierenden Suszeptor befinden sich die elf Satelliten genannten Halterungen für Zwei-Zoll-Wafer. Diese sind entweder mit Siliziumkarbid oder mit Tantalkarbid beschichtet und werden durch die sogenannte Gas Foil Rotation (GFR) in Rotation versetzt, indem Trägergas in geschwungenen Kanälen zwischen Satellit und Suszeptor hindurch geleitet wird. Der Gasfluss teilt sich dabei automatisch zwischen den 11 Satelliten auf. Daraus folgt allerdings, dass geringe Unterschiede zwischen den Satelliten auch zu einer leicht unterschiedlichen Flussverteilung führen können. Die unterschiedliche Höhe des Gaspolsters verändert die thermische Kopplung zwischen Suszeptor und Satellit und kann damit zu Unterschieden in der Wafertemperatur von bis zu 10 °C zwischen den Satelliten führen. Die Suszeptoroberfläche ist zwischen dem Gaseinlass und den Satelliten von einer Quarzplatte abgedeckt, die durch Abstandshalter den Suszeptor allerdings nicht direkt berührt.



Abbildung 2.1.: Verwendete AIX2400 G3 HT MOVPE-Anlage. Die Detailaufnahmen zeigen den aufgeklappten Reaktordeckel mit Gaseinlass sowie den Reaktorraum mit Wafern, Suszeptor und Abgasring.

Zur Überwachung des Schichtwachstums verfügt die Anlage über ein LayTec EpiCurveTT-System. Mit diesem kann die Probenreflektivität bei 950 nm, 633 nm und 405 nm, ihre thermische Emission bei 950 nm und die Reflexion von drei Laserstrahlen mit definiertem Abstand gemessen werden. Mehrfachreflexionen an den Heterogrenzflächen der Probe führen zu schichtdickenabhängigen Oszillationen der Reflektivität, aus denen die Wachstumsrate bestimmt werden kann. Aus der thermischen Emission lässt sich über Pyrometrie die Satellitentemperatur berechnen. Eine Bestimmung der Temperatur der Waferoberfläche ist nicht möglich, da beim AlGaIn-Wachstum auf Saphir das Halbleitermaterial für alle verwendeten Wellenlängen transparent ist. Über die sich verändernden Abstände der drei Laserstrahlen kann die Krümmung der Wafer ermittelt werden. Diese ist zum einen relevant, um die Verspannung zu bestimmen und eine mögliche Relaxation durch Rissbildung beobachten zu können. Zum anderen führt die Verkrümmung zu einem teilweise Abheben der Wafer vom Satelliten, sodass sich eine radial inhomogene Temperaturverteilung ergibt.

2.1.1.1. Simulation des MOVPE-Wachstums

Im Rahmen dieser Arbeit ist in Kooperation mit der Firma STR und basierend auf der Software CVDSim–Nitride Edition [89] das Wachstum von $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ in dem verwendeten Reaktor bei einer Vielzahl von Wachstumsbedingungen simuliert worden. Die Ergebnisse werden in Abschnitt 3.1 vorgestellt. Im Folgenden soll auf die Grundlagen der Simulation eingegangen werden und exemplarisch anhand einiger Ergebnisse die typischen Reaktionswege während des Wachstums beschrieben werden.

Aufgrund der Rotationssymmetrie des Reaktors ist eine zweidimensionale Simulation des halben Reaktorquerschnitts ausreichend (Abb. 2.2). Die Simulation basiert auf Modellen der numerischen Strömungsmechanik [90] und berechnet den konvektiven laminaren Fluss der Gasmischung gekoppelt an den Massentransport der beteiligten Einzelkomponenten, den konvektiven und radiativen Wärmetransport sowie Oberflächen- und Gasphasenreaktionen basierend auf dem Modell von Mihopoulos et al. [91]. Für die Reaktionen an der Kristalloberfläche wird dabei ein Dreizonenmodell verwendet, in dem zwischen Gasphase, Adatomschicht und Volumenkristall unterschieden wird.

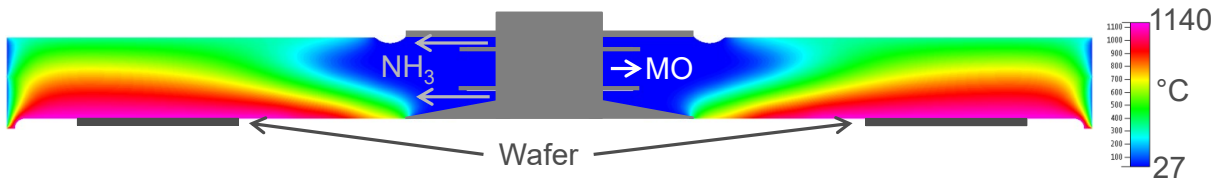


Abbildung 2.2.: Reaktorquerschnitt mit berechnetem Temperaturprofil. Der Gaseinlass und die Lage der Wafer sind skizziert. Aufgrund der rotationssymmetrischen Reaktorgeometrie ist die Simulation des halben Querschnitts ausreichend. (Simulationsrechnung durchgeführt von Dr. Anna Lobanova, STR.)

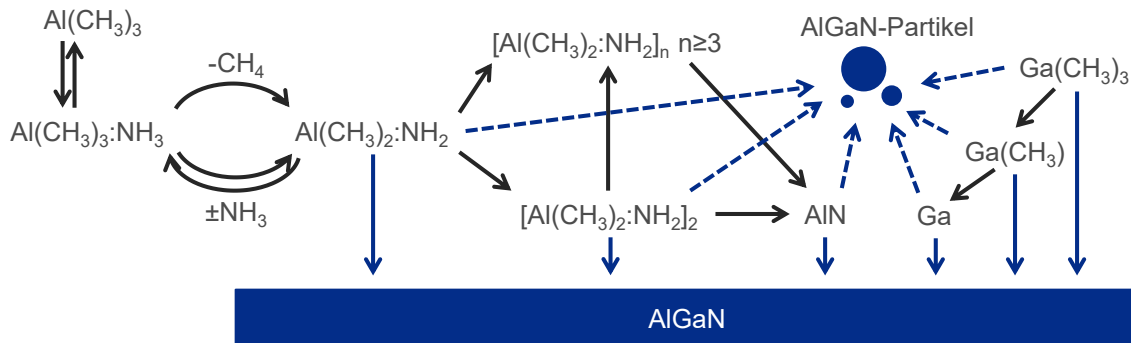
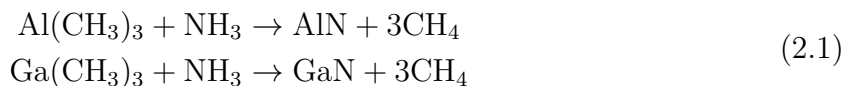


Abbildung 2.3.: Reaktionswege bei der AlGaN-MOVPE

In einem sehr vereinfachten Bild findet beim AlGaN-Wachstum die folgende Reaktion statt:



Real ist die Wachstumschemie jedoch komplizierter (Abb. 2.3). Das TMAI bildet zunächst $\text{Al}(\text{CH}_3)_3:\text{NH}_3$ Addukte, die anschließend entweder durch Abspaltung von Methan oder

durch Reaktion mit Ammoniak zu $\text{Al}(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2$ weiterreagieren. Diese Dimethylaluminium-Addukte können entweder zum Kristallwachstum beitragen oder in der Gasphase langkettige Molekülketten der Form $[\text{Al}(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2]_n$ bilden, welche schließlich AlN-Partikel mit einer Größe von bis zu 100 nm formen können [92]. Die Partikel werden durch thermophoretische Kräfte von der Kristalloberfläche ferngehalten und tragen somit nicht zum Kristallwachstum bei [93, 94].

Für TMGa ist aufgrund der bei der AlGaN-MOVPE hohen Temperaturen der primäre Reaktionsweg die sukzessive thermische Zerlegung (Pyrolyse) in DMGa, MMGa und schließlich Gallium. Daher bildet das Gallium selbst keine Partikel in der Gasphase, es reagiert aber mit den Al-haltigen Partikeln, sodass es auch zu einem Verlust der Ga-Spezies durch die parasitären Gasphasenreaktionen kommt. Ein weiterer relevanter Effekt beim GaN-Wachstum ist die Ätzung von bereits in den Kristall eingebautem Gallium durch Wasserstoff, sodass betroffene Ga-Atome wieder in die Adatomschicht übergehen und von dort desorbieren können [95, 96].

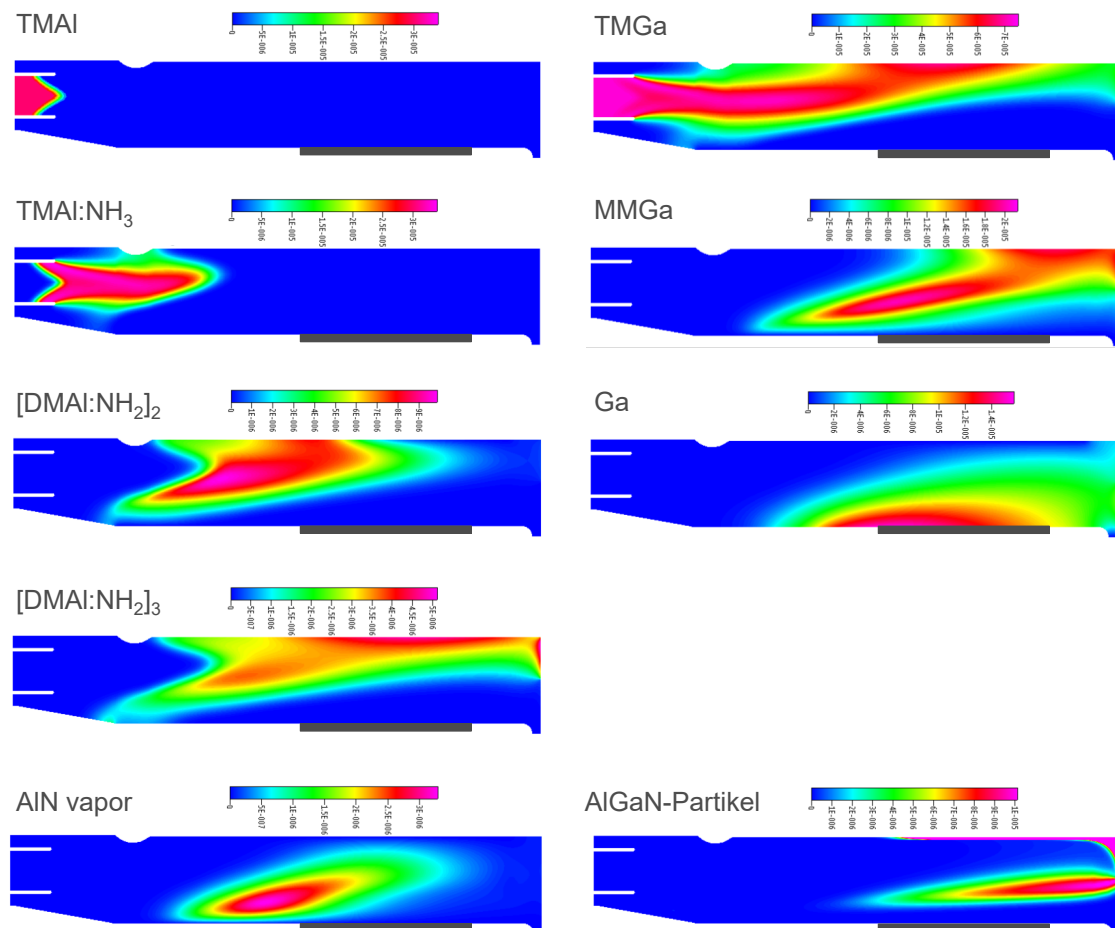


Abbildung 2.4.: Simulierte Verteilungen der Reaktionsedukte und -produkte bei der AlGaN-MOVPE im AIX2400 G3 HT Planetenreaktor (für 1110 °C, 200 mbar, V/III 550, 71 $\mu\text{mol}/\text{min}$ TMAI, 173 $\mu\text{mol}/\text{min}$ TMGa, 67.2 mol/min NH_3 , 60 l/min H_2). Es ist jeweils ein Querschnitt durch den halben Reaktorraum dargestellt. Der Gaseinlass befindet sich links, der Auslass mittig rechts. Alle Konzentrationen sind in kg/cm^2 angegeben. (Simulationsrechnungen durchgeführt von Dr. Anna Lobanova, STR.)

Die aus der Simulation für ein exemplarisches Set von Wachstumsparametern berechneten Verteilungen der beschriebenen Reaktionsedukte und -produkte im Reaktor sind in Abbildung 2.4 dargestellt. Bei der Interpretation ist zu beachten, dass der hohe Druck von 200 mbar für das AlGaN-Wachstum eher ungewöhnlich ist und zu einer relativ langen Residenzzeit der Moleküle im Reaktor führt. Ein geringerer Druck würde diese verkürzen und damit auch die Reaktionsprofile Richtung Auslass (nach rechts in Abb. 2.4) verschieben, sodass Akkumulationsbereiche von AlN-Dampf und Gallium besser mit der Waferposition übereinstimmen würden.

2.1.2. AlN/Saphir-Templates

Der mittlere Aluminiumgehalt aller in dieser Arbeit untersuchten Heterostrukturen liegt bei mehr als 70 %. Für möglichst verspannungsfreies Wachstum wären daher AlN-Substrate am besten geeignet. Diese befinden sich jedoch noch in der Entwicklung, sodass selbst kleine Wafergrößen <2 Zoll nur begrenzt verfügbar und sehr teuer sind. Daher werden für diese Arbeit AlN/Saphir-Templates als Pseudosubstrate verwendet, deren Eigenschaften im Folgenden kurz vorgestellt werden sollen.

Der rhomboedrische Saphir hat eine a -Gitterkonstante von $4.759 \text{ \AA}$ [97], woraus sich für AlN eine Gitterfehlانpassung von -34.6% ergäbe. Beim Wachstum von AlN auf c -planarem Saphir verdreht sich die Wurtzitstruktur allerdings wie in Abbildung 2.5(a) dargestellt um 30° , wodurch die Gitterfehlانpassung auf 13.3% reduziert wird [98]. Dies hat zur Folge, dass auf einem Zwei-Zoll-Saphirwafer das Flat die a -Richtung des Saphir, aber die m -Richtung des AlN anzeigt (Abb. 2.5(b)).

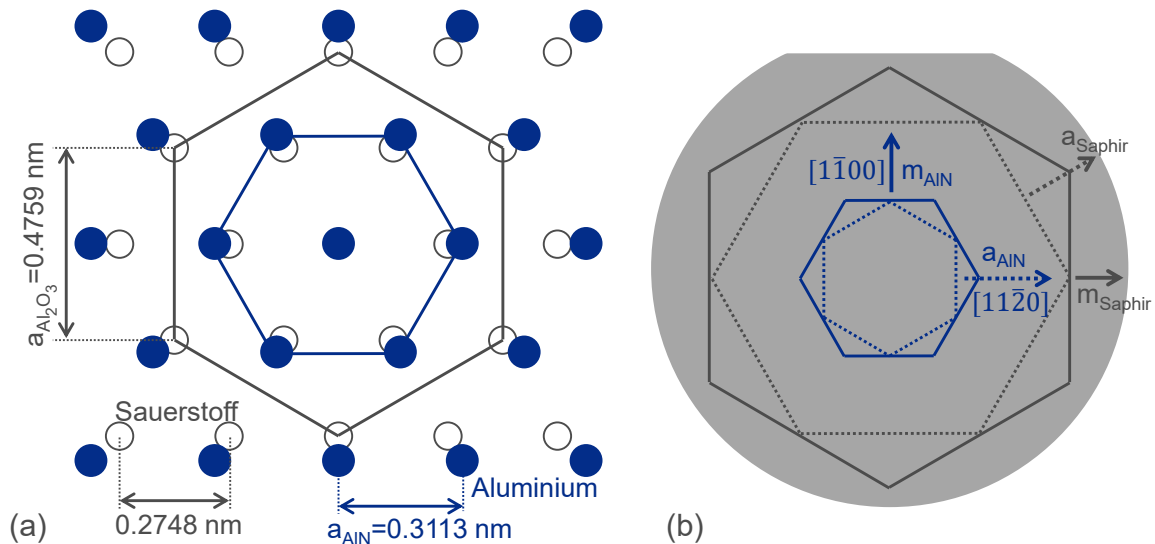


Abbildung 2.5.: (a) Gitteranpassung bei Wachstum von c -planarem AlN auf c -planarem Al₂O₃. Die Al-Atome des AlN sind in Blau dargestellt, die Sauerstoffatome des Saphir in Schwarz. (b) Anordnung der Kristallrichtungen bei Wachstum von AlN auf einem c -planaren Saphirwafer mit Waferflat parallel zur Saphir a -Gitterebene. Durchgezogene Linien stehen für m -Ebenen, gepunktete Linien für a -Ebenen.

Die Oberflächen der Zwei-Zoll-Saphirwafer sind in der Regel nicht exakt senkrecht zur c-Achse geschnitten, sondern weisen einen definierten Fehlschnitt auf. Soweit nicht anders angegeben, ist die Fehlschnitttrichtung die Saphir-m-Richtung parallel zum Waferflat. In Abschnitt 4.1 werden auch Laserstrukturen mit einem Fehlschnitt in Saphir-a-Richtung, d.h. 60° zum Flat verdreht (Abb. 2.5(b)), untersucht. Der Fehlschnittwinkel liegt zwischen $(0.1 \pm 0.1)^\circ$ und $(0.25 \pm 0.10)^\circ$.

Zwei Arten von AlN/Saphir-Templates wurden für die in dieser Arbeit analysierten Proben verwendet.

- **Planare Templates** bestehen aus einer 500 nm dicken MOVPE-AlN-Schicht auf c-planarem Saphir (Abb. 2.6(a)). Die Oberflächenmorphologie ist glatt und die Durchstoßversetzungsdichte (Threading Dislocation Density, TDD) beträgt ca. $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ [99]. Aufgrund der hohen TDD sind die Templates nicht für das Wachstum von Laserstrukturen geeignet, da die Versetzungen Zentren für nicht-strahlende Rekombination bilden. Der einfache Herstellungsprozess prädestiniert planare Templates jedoch für Vorversuche, bei denen eine hohe Materialqualität nicht notwendig ist.
- **Epitaktisch lateral überwachsene (ELO) Templates** werden hergestellt, indem in planare Templates Streifen mit einer Breite von $1.5 \mu\text{m}$ und einem Abstand von $2 \mu\text{m}$ senkrecht zum Waferflat geätzt werden, die bis in den Saphir reichen (Abb. 2.6(b)). Anschließend wird der strukturierte Wafer mit einer hohen lateralen Wachstumsrate mit AlN überwachsen, sodass die auf den noch vorhandenen AlN-Streifen wachsenden Schichten nach einer Dicke von ca. $2.5 \mu\text{m}$ koaleszieren und eine geschlossene Schicht bilden. Auf dieser werden anschließend noch weitere $2.5\text{--}5 \mu\text{m}$ AlN gewachsen (Abb. 2.6(c)). Die Streifenstrukturierung und die entstehenden Hohlräume verringern die Verspannung im AlN. Außerdem sind oberhalb der Hohlräume keine Durchstoßversetzungen vorhanden (abgesehen von einem von den Koaleszenzlinien ausgehenden Versetzungsbündel) und auch auf den Streifen ist die TDD durch die größere Schichtdicke reduziert. Dadurch ergibt sich eine mittlere TDD von ca. $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ [100, 101]. Die Oberflächenmorphologie wird durch das Streifenmuster beeinflusst und zeigt je nach Fehlschnittwinkel und -richtung leichte Undulationen oder deutliches Aufeinanderlaufen von Stufen mit Stufenhöhen von bis zu 20 nm [99]. Die Fehlschnittabhängigkeit und ihr Einfluss auf die Emissionseigenschaften der Heterostruktur werden in Abschnitt 4.2 näher untersucht.

Die Epitaxie der Templates findet in demselben Reaktor statt wie die der Heterostrukturen, d.h. je 11 Templatewafer können gleichzeitig gewachsen werden. Durch leichte Schwankungen der Saphireigenschaften (Fehlschnitt, Oberflächenbelegung mit Fremdatomen) sowie durch Unterschiede in der Satellitenrotation kann es jedoch trotzdem zu leichten Unterschieden in den Eigenschaften dieser Templates kommen.

2.1.3. Prozessstabilität

Der Vergleich von Probenserien unter Variation spezifischer Parameter kann nur dann zu aussagekräftigen Ergebnissen führen, wenn alle anderen Parameter mit ausreichender

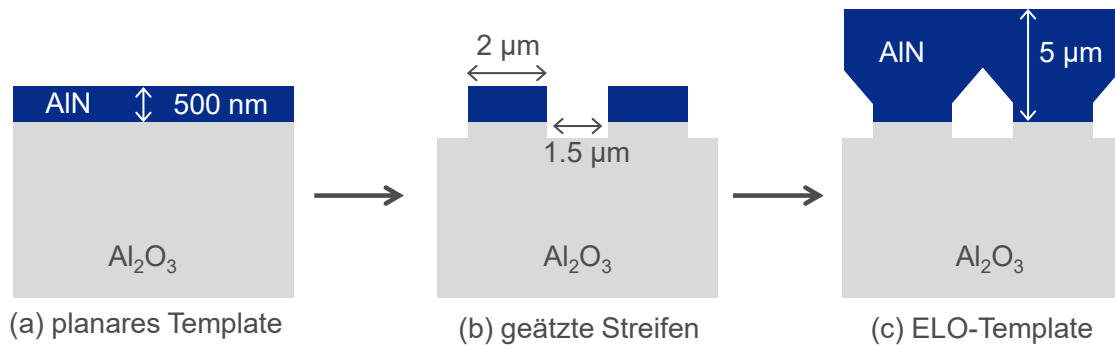


Abbildung 2.6.: Schematische Darstellung der verschiedenen AlN/Saphir-Templates **(a)** planares Template, $TDD=1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, **(b)** geätzte Streifenstruktur vor dem Überwachsen, **(c)** ELO-Template, $TDD=1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$

Genauigkeit konstant gehalten werden können. Anders ausgedrückt müssen zwei unter nominell identischen Bedingungen hergestellte Proben auch dieselben Eigenschaften haben. Die Prozessstabilität für die Herstellung optisch pumpbarer AlGaIn-Heterostrukturen hat drei wesentliche Aspekte:

Die **Templatewafer** zeigen häufig leichte Unterschiede im Fehlschnittwinkel, der daraus resultierenden Oberflächenmorphologie oder auch im wachstumstemperaturabhängigen Auftreten von V-Pits. Abbildung 2.7 vergleicht für 12 verschiedene Heterostrukturen die Laserschwelen von je zwei Proben, die im selben Wachstumsversuch auf unterschiedlichen Templates derselben Charge gewachsen wurden. Es zeigen sich teilweise deutliche Abweichungen in den ermittelten Schwellen. Durch die Begrenzung von Probenreihen auf vier Einzelproben können diese auf vier Vierteln desselben Templatewafers gewachsen werden, sodass tatsächlich identische Templateeigenschaften vorliegen.

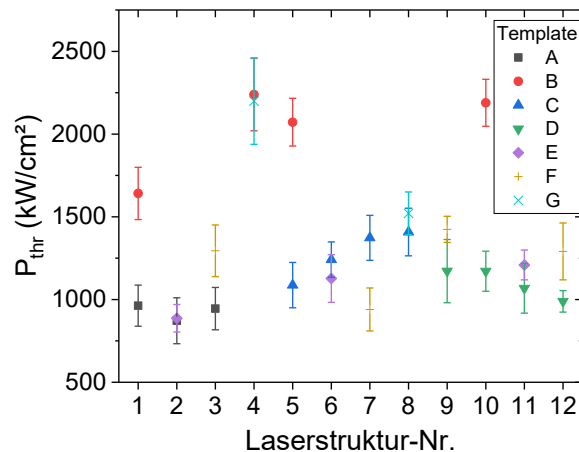


Abbildung 2.7.: Vergleich der Laserschwelen von je zwei im selben Wachstumsversuch auf unterschiedlichen Templates derselben Charge gewachsenen Proben unter optischer Anregung für 12 verschiedene Laserstrukturen. Die Unterschiede zwischen den Laserstrukturen 1–12 sind Heterostrukturvariationen geschuldet. Datenpunkte von Proben auf demselben Template haben dieselbe Farbe und Form.

Die **Stabilität des MOVPE-Reaktors** wird hauptsächlich durch die variierende Belegung verschiedener Reaktoroberflächen mit den Epitaxiestoffen (AlN, GaN, Si, etc.) beeinflusst. Oberflächenbelegungen können während des Wachstums thermisch aktiviert abdampfen oder sich durch chemischen Reaktionen lösen, in den Kristall eingebaut werden und so den Gallium- oder Siliziumgehalt ändern. Daneben verfärbt eine starke Galliumbelegung den Reaktordeckel dunkel, sodass er mehr Wärme absorbiert und das Temperaturprofil in der Gasphase ändert. Einen wesentlichen Einfluss hat auch die Belegung des Fensters für die in-situ Analytik, welche dessen Transparenz verringert, wodurch sich andere Werte für die Wafertemperatur ergeben können. Dies ist besonders dann relevant, wenn zwischen den Wachstumszeiten verschiedener Probenserien mehrere Monate liegen, in denen andere Wachstumsprozesse stattfanden. Um den Einfluss dieses Effekts zu reduzieren, wurde zum einen die Messung regelmäßig mit einem Saphirwafer bekannter Reflektivität kalibriert. Zum anderen wurde am Anfang einer jeden Probenserie eine Standardstruktur, bestehend aus 130 nm AlGaIn und 130 nm AlN gewachsen. Über die Schwankung der Wachstumsraten und Zusammensetzungen konnte so die Drift der Reaktortemperatur abgeschätzt und korrigiert werden (Abb. 2.8).

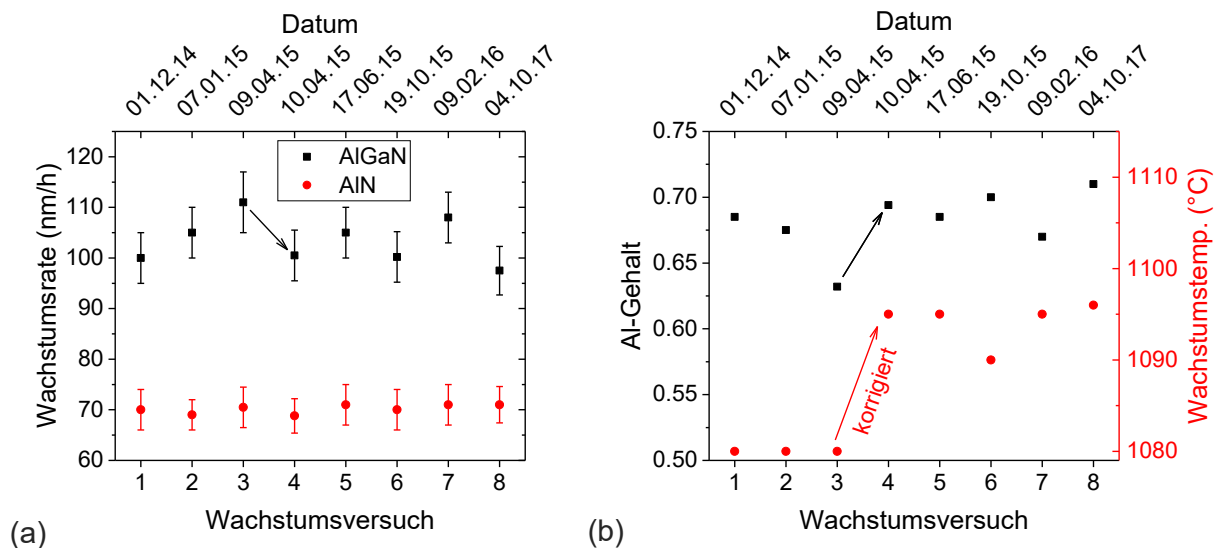


Abbildung 2.8.: (a) AlGaIn- und AlN-Wachstumsraten für die am Anfang jeder Probenserie gewachsenen Standardstrukturen zur Überprüfung der Anlagenstabilität, (b) zugehörige Al-Gehalte der AlGaIn-Schichten, bestimmt über Röntgendiffraktometrie. Auf der rechten y-Achse ist die in-situ gemessene Wachstumstemperatur aufgetragen.

Die **Prozessierung** beschränkt sich bei Heterostrukturen für das optische Pumpen im Wesentlichen auf die Vereinzelung von Resonatoren und das damit verbundene Spalten von Facetten. Variationen können sich hier aufgrund von Unterschieden in der genauen Vorgehensweise während der Prozessierung oder durch Schwankungen in den Geräten (z.B. der Ausgangsleistung des Ritzlasers und damit der Ritztiefe) ergeben. Der Einfluss dieser Effekte kann vermindert werden, indem die Proben einer Serie gemeinsam, d.h. von derselben Person mit möglichst geringem zeitlichen Abstand prozessiert werden.

Trotz der beschriebenen Maßnahmen können Schwankungen der Probenparameter, auch auf einem Wafer nicht verhindert werden und auch durch die begrenzte Genauigkeit jeder Messung ergeben sich statistische Schwankungen. Insbesondere bei der Bestimmung der Laserschwelen wurde daher versucht, die Größe dieser Effekte durch Mehrfachmessungen abzuschätzen und mithilfe von Fehlerbalken anzugeben (Details zur Fehlerrechnung siehe Anhang, S. 111).

2.1.4. Si-Dotierung

Für die in Kapitel 5 vorgestellten Laserstrukturen mit variierender Siliziumdotierung war es notwendig, zunächst zu bestimmen, welcher Disilanfluss bei definierten Wachstumsbedingungen zu welcher Siliziumkonzentration im Material führt. Dabei kann näherungsweise angenommen werden, dass die Siliziumkonzentration direkt proportional zum Verhältnis aus Disilanfluss und Gruppe-III-Fluss ist. Anhand der Ergebnisse von Abschnitt 3.2 wurden Wachstumsbedingungen gewählt, die zu einer möglichst geringen Silizium-Hintergrundkonzentration führen (1050 °C, 200 mbar, V/III 2200). Bei diesen Bedingungen wurden anschließend mehrere AlGa_{1-x}N-Schichten mit Disilanflüssen zwischen 0.006 nmol/min und 2.25 nmol/min gewachsen, deren Siliziumgehalt mittels Sekundärionenmassenspektrometrie ermittelt wurde. Die Ergebnisse sind in Abbildung 2.9(a) dargestellt und bestätigen den linearen Zusammenhang. Die Si-Konzentration im undotierten Material beträgt $6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und es kann eine maximale Dotierung von mehr als $1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ erreicht werden. Um eine Einordnung der sich ergebenden elektrischen Eigenschaften zu ermöglichen, zeigt Abbildung 2.9(b) anhand anderer, in demselben Reaktor gewachsener Proben, welche spezifischen Widerstände für die jeweiligen Siliziumkonzentrationen bei

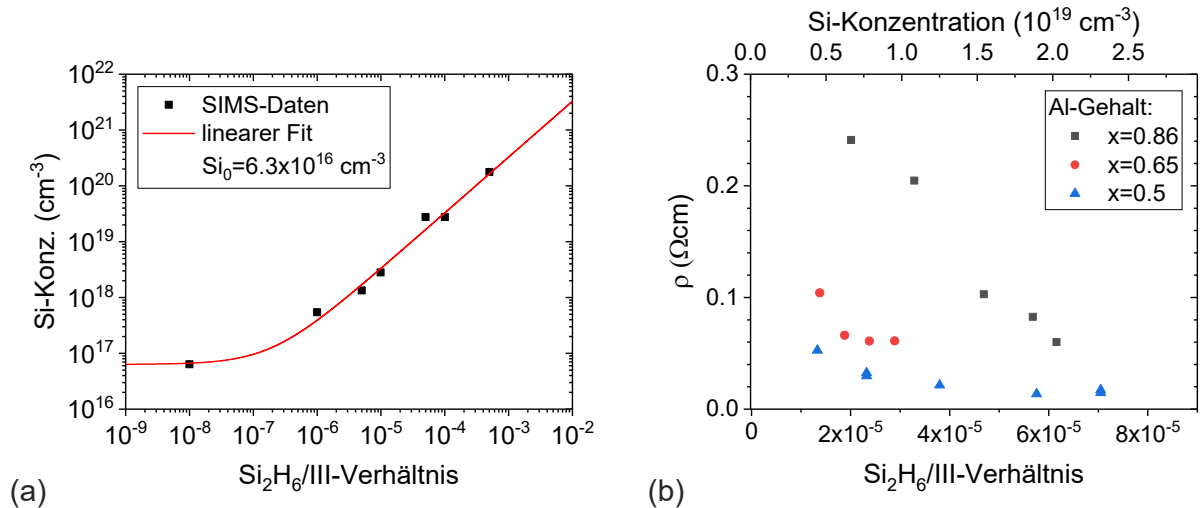


Abbildung 2.9.: (a) Mit SIMS gemessene Siliziumkonzentrationen aufgetragen über dem $\text{Si}_2\text{H}_6/\text{III}$ -Verhältnis für 130 nm dicke $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten gewachsen bei 1050 °C, 200 mbar und einem V/III-Verhältnis von 2200. (b) Spezifische Widerstände ρ von auf ELO-Templates gewachsenen $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Schichten mit variierendem Al-Gehalt x aufgetragen über dem $\text{Si}_2\text{H}_6/\text{III}$ -Verhältnis, gemessen über Wirbelströme [102]. Die obere x-Achse zeigt die aus (a) bestimmte Si-Konzentration. (Daten in (b) zur Verfügung gestellt von Dr. Arne Knauer.)

verschiedenen Aluminiumgehalten ungefähr zu erwarten sind. Die Aktivierungsenergie für Si in $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{N}$ liegt zwischen 10 und 50 meV [103, 104], sodass die Elektronendichte 15 bis 68 % der Donatordichte beträgt.

2.1.5. Prozessierung von optisch pumpbaren Laserstrukturen

Die Prozessierung der auf Zwei-Zoll-Viertelwafern gewachsenen Heterostrukturen zu Kantenemitter-Lasern, die optisch angeregt werden können, ist relativ einfach. Es werden zunächst mit einer Maske metallene Positioniermarken sowie eindeutige Beschriftungen für die einzelnen Riegel aufgebracht, durch die auch nachträglich die genaue Ursprungsposition auf dem Wafer nachvollzogen werden kann. Anschließend werden die Viertelwafer an den Marken ausgerichtet von der Rückseite entlang der gewünschten Bruchkanten mit einem Laser ca. 260 μm tief eingeritzt, sodass eine Restdicke von ca. 170 μm verbleibt (Abb. 2.10). Die Ausrichtung erfolgt dabei so, dass die Laserfacetten von den glatte Spaltkanten formenden m-Ebenen des AlGa N gebildet werden [105]. Durch das Vorritzen können die Facetten anschließend mit geringem Kraftaufwand in Riegel mit einer Resonatorlänge von 600–1400 μm und einer Breite von 6 mm gebrochen werden.

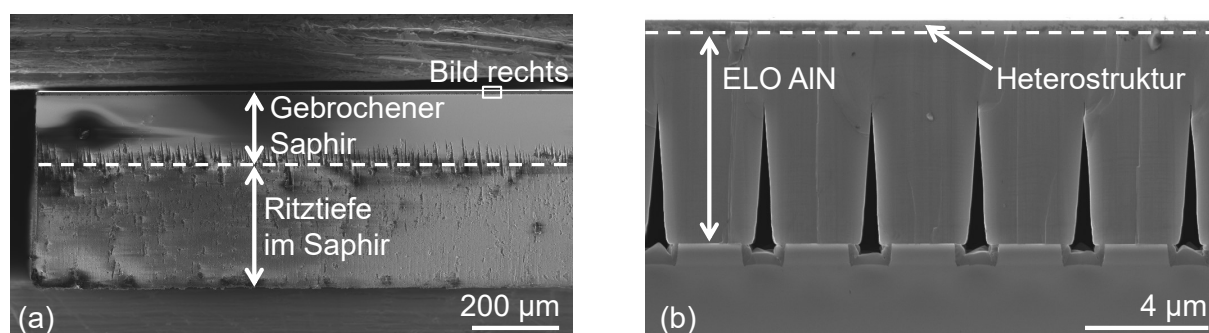


Abbildung 2.10.: (a) Rasterelektronenmikroskop-Aufnahme einer geritzten und anschließend gebrochenen Facette einer AlGa N -Laserstruktur auf Saphir, (b) Ausschnitt, der nur die Al(Ga) N -Schichten zeigt. (Bilder aufgenommen von Dr. Ute Zeimer.)

2.2. Charakterisierungsmethoden

Im Folgenden werden die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Charakterisierungsmethoden kurz beschrieben, wobei insbesondere auf die für die durchgeführten Analysen relevanten Eigenschaften und Messmodi eingegangen wird.

2.2.1. Röntgendiffraktometrie

Hochauflösende Röntgendiffraktometrie (High Resolution X-Ray Diffraction, HRXRD) basiert auf der Beugung monochromatischer Röntgenstrahlen an den Gitterebenen von Kristallen. Durch Überlagerung der an parallelen Gitterebenen reflektierten Strahlen interferieren diese und es ergeben sich für definierte Einstrahlwinkel ω und Detektionswinkel

2 θ scharfe Peaks, deren Lage vom Abstand der Gitterebenen abhängt. Ausführliche Beschreibungen zur HRXRD im Allgemeinen und an Nitriden im Speziellen finden sich zum Beispiel in [106–110].

Über ω -Scans von symmetrischen (0002) und asymmetrischen (30 $\bar{3}$ 2) Reflexen kann anhand der Halbwertsbreite (Full Width at Half Maximum, FWHM) der Peaks die Schraubenversetzungsdichte (Screw Dislocation Density, SDD), die Stufenversetzungsdichte (Edge Dislocation Density, EDD) und in der Summe die TDD abgeschätzt werden. Der Abschätzung liegt das Mosaikblockmodell zugrunde, nach dem ein Kristall aus einzelnen, perfekt einkristallinen Blöcken besteht, die zueinander verdreht und verkippt sein können [111, 112]. An den Grenzen dieser Blöcke entstehen bei Verdrehung Schraubenversetzungen und bei Verkipfung Stufenversetzungen. Die SDD und die EDD können wie folgt berechnet werden [113–116]:

$$SDD_{\text{AlN}} \approx \frac{(\text{FWHM}_{0002})^2}{4.35 \times b_s^2} \quad (2.2)$$

$$EDD_{\text{AlN}} \approx \frac{(1.14 \times \text{FWHM}_{30\bar{3}2})^2}{4.35 \times b_E^2} \quad (2.3)$$

wobei $b_s = 0.498 \text{ nm}$ und $b_E = 0.311 \text{ nm}$ die Burgers-Vektoren der Schrauben- und Stufenversetzungen in AlN sind. Bei Abschätzung der TDD mit dieser Methode ist zu beachten, dass die Röntgenstrahlung mehrere Mikrometer tief in das Material eindringt und daher sowohl lateral als auch vertikal über einen großen Bereich mittelt. Da bei den verwendeten AlN/Saphir-Templates die TDD mit zunehmender Schichtdicke abnimmt, für Bauelemente aber die TDD im Bereich der Heterostruktur relevant ist, sind die aus den HRXRD-Messungen ermittelten Werte tendenziell zu hoch.

Ist nicht die Versetzungsdichte, sondern die Materialzusammensetzung von Interesse, so kann diese über ω -2 θ -Scans der AlGaIn- und AlN-(0002)-Peaks bestimmt werden. In der Praxis wird mit entsprechender Software die Röntgenbeugung an einem Modellkristall simuliert, dessen Schichtdicken und -zusammensetzungen so variiert werden, dass der simulierte ω -2 θ -Scan möglichst gut mit dem gemessenen übereinstimmt. Prinzipiell läuft dies auf einen Abgleich der Lage des relevanten AlGaIn-Peaks mit dem stets klar erkennbaren AlN-Substratpeak hinaus. Damit kann die Gitterkonstante und über das Vegard'sche Gesetz die Zusammensetzung der AlGaIn-Schicht bestimmt werden [19]. Dabei ist der Spannungszustand der Schicht zu berücksichtigen, da eine Anpassung der a-Gitterkonstante des AlGaIn (bei Wachstum auf c-planarem Material) an die des AlN auch eine Änderung der über die Röntgenbeugung gemessenen c-Gitterkonstante zur Folge hat [110]. Bei fast allen in dieser Arbeit analysierten Proben liegt die Gesamtdicke der Ga-haltigen Schichten bei weniger als 100 nm und der durchschnittliche Al-Gehalt bei mehr als 70 %. Es wurde daher davon ausgegangen, dass diese Schichten auf AlN vollverspannt sind, d.h. dass ihre a-Gitterkonstante der des AlN entspricht. Um diese Annahme zu bestätigen, wurden stichprobenhaft an einigen Proben Reciprocal Space Maps (RSMs) von asymmetrischen Reflexen aufgenommen, die alle vollverspannte Schichten zeigten (Abb. 2.11).

Einzelne QWs sind zu dünn, um ihre Zusammensetzung und Dicke mittels HRXRD zu bestimmen. Um dennoch Zugang zu diesen Größen zu bekommen, wurden Stapel aus 10 Al_xGa_{1-x}N-QWs mit AlN-QBs gewachsen, wobei stets nur der TMGa-Fluss geändert und

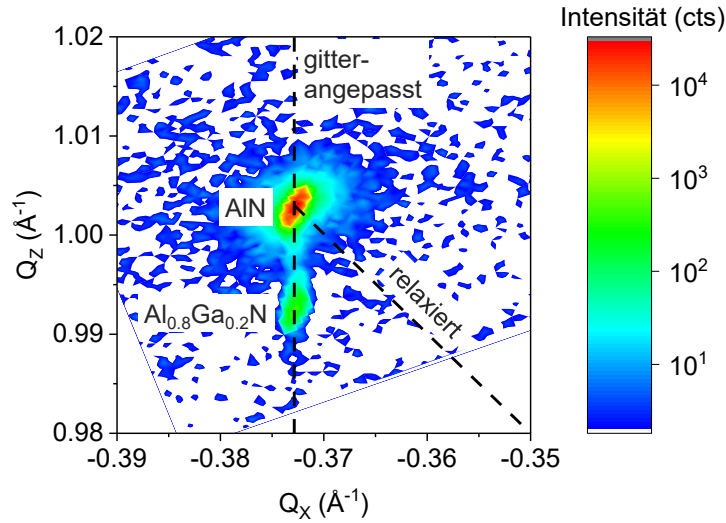


Abbildung 2.11.: RSM der $(\bar{1}012)$ -Reflexe einer AlGaIn-Laserstruktur (vgl. Tab. 4.1). Der $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{N}$ -Wellenleiter hat dieselbe laterale Gitterkonstante wie das AlN, ist also vollverspannt. Die 3 nm dünnen Quantenfilme sind nicht erkennbar.

der TMAI-Fluss konstant gehalten wurde. Diese Schichtstapel erzeugen ein Übergitter (Superlattice, SL) mit der Periode $d_{\text{SL}} = d_{\text{QW}} + d_{\text{QB}}$, welches in HRXRD-Messungen zu einem Interferenzmuster führt. Mit Quantenfilmdicke, Barrierendicke und Quantenfilmzusammensetzung gibt es allerdings zu viele freie Parameter, um diese eindeutig bestimmen zu können. Einzig d_{SL} ist direkt messbar. Es wurde daher als Näherung angenommen, dass beim AlGaIn-Wachstum die AlN-Wachstumsrate und die GaN-Wachstumsrate voneinander unabhängig sind. Damit kann über die Wachstumszeiten t_{QW} und t_{QB} ein eindeutiger Zusammenhang zwischen den Schichtdicken und der Zusammensetzung x der QWs hergestellt werden²:

$$d_{\text{QB}} = d_{\text{SL}} \times \left(1 + \frac{t_{\text{QW}}}{x \times t_{\text{QB}}} \right)^{-1} \quad (2.4)$$

$$d_{\text{QW}} = d_{\text{SL}} \times \left(1 + \frac{x \times t_{\text{QB}}}{\text{QW}} \right)^{-1} \quad (2.5)$$

Durch freie Variation der Zusammensetzung kann die Simulation an die Messkurve angepasst und so x , d_{QW} und d_{QB} bestimmt werden.

2.2.2. Rasterelektronenmikroskopie und Kathodolumineszenz

In einem Rasterelektronenmikroskop (REM) wird ein Elektronenstrahl mit einer Energie von typischerweise 3–30 keV auf die Probenoberfläche fokussiert und über diese gerastert. In dem für diese Arbeit verwendeten Gerät, einem Zeiss Ultra Plus mit Feldemissionskathode, beträgt der Durchmesser des Anregungsspot an der Probenoberfläche ca. 1 nm. Dieser verbreitert sich allerdings mit zunehmender Eindringtiefe durch Streuprozesse

²Für die Herleitung der Gleichungen sei auf den Anhang S. 106 verwiesen.

in Abhängigkeit vom Material und der Elektronenenergie und beträgt für 5 keV in einer AlGa_N-Laserstruktur im Bereich der Quantenfilme ungefähr 100 nm (Abb. 2.12(a)). Die Primärelektronen wechselwirken mit dem Probenmaterial und erzeugen dabei eine Vielzahl von Signalarten, die mit verschiedenen Detektoren analysiert werden können. Für detaillierte Informationen sei auf [117–119] verwiesen. In dieser Arbeit werden Oberflächenaufnahmen, die aus den niederenergetischen Sekundärelektronen gewonnen wurden und Kathodolumineszenzaufnahmen verwendet. Sekundärelektronen entstehen durch inelastische Streuprozesse und können aufgrund ihrer geringen Energie nur aus dem Halbleitermaterial austreten, wenn sie nahe der Oberfläche erzeugt werden. Sie bilden daher die Morphologie der Probe ab, da an Kanten die Austrittswahrscheinlichkeit erhöht ist. Kathodolumineszenz (Cathodoluminescence, CL) entsteht, indem die Primärelektronen Energie an Valenzelektronen abgeben und diese in das Leitungsband anheben. Die Elektronen-Loch-Paare können anschließend rekombinieren, wobei die bei der strahlenden Rekombination emittierten Photonen das Kathodolumineszenzsignal erzeugen. Dieses kann mit einem Hohlspiegel eingefangen und in einen Monochromator mit angeschlossenem Detektor geleitet werden. Im verwendeten REM können die Proben bei 80 K und bei Raumtemperatur untersucht werden. Bei 80 K werden nichtstrahlende Rekombinationsprozesse bereits stark unterdrückt, sodass sich eine deutlich erhöhte Intensität des CL-Signals ergibt. Durch Vergleich der Intensitäten bei 80 K und bei Raumtemperatur lässt sich analog zur internen Quanteneffizienz (IQE) in der Photolumineszenz die Effizienz der strahlenden Rekombination bei Raumtemperatur in den Proben abschätzen. Die Referenztemperatur ist mit 80 K allerdings relativ hoch, sodass nichtstrahlende Rekombinationsprozesse nicht vollständig unterdrückt werden [120–122]. Die Ergebnisse sind daher nicht so verlässlich wie die über temperaturabhängige Photolumineszenzmessungen (10 K–300 K) bestimmten IQEs, können aber grobe Trends wiedergeben.

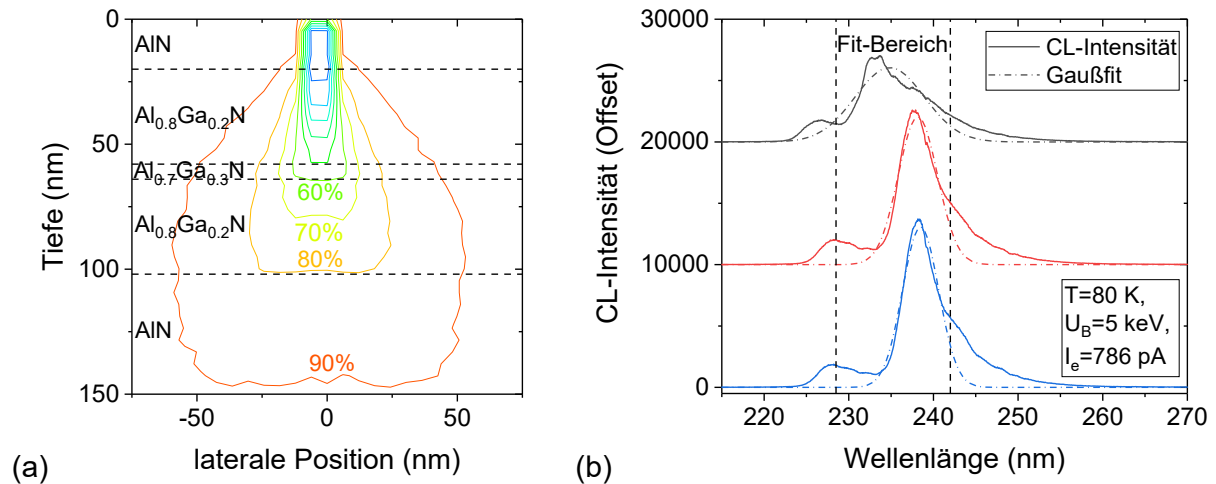


Abbildung 2.12.: (a) Verteilung der Absorption der Elektronenstrahlenergie in einer AlGa_N-Laserstruktur im REM, berechnet mit CASINO [123] für 5 keV. Die Linien geben an, wie viel Energie bereits absorbiert wurde. (b) Extrahierte Punktspektren eines CL-Mappings aufgenommen bei 80 K. Für die Gaußfits wurde bei allen Spektren derselbe Fit-Bereich gewählt, um den Einfluss von Peakverschiebungen auf die Fitgenauigkeit zu zeigen.

Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Gatan MonoCL4 System erlaubt auch die Aufnahme so genannter CL-Mappings. Dabei wird in einem definierten Gebiet mit einem vorgegebenen Punktabstand an jedem Punkt ein Spektrum aufgenommen. Die Punktabstände wurden in der Größenordnung von 100 nm gewählt, um der Größe des Anregungsvolumens Rechnung zu tragen. Über einen Gaußfit können nach der Messung für jedes Spektrum unter Definition eines Fit-Bereichs automatisiert die Peakwellenlänge, Intensität und Linienbreite einzelner Peaks extrahiert und diese Größen orts aufgelöst dargestellt werden. Da derselbe Fitbereich für alle Spektren verwendet wird, kann es jedoch bei einer starken lateralen Variation der Emissionswellenlänge und dem Vorhandensein mehrerer, dicht beieinander liegender Peaks zu beträchtlichen Unterschieden in der Fitgenauigkeit kommen. Dies ist in Abbildung 2.12(b) exemplarisch für drei Spektren aus demselben Mapping dargestellt und wurde bei der Auswertung entsprechender Aufnahmen berücksichtigt.

2.2.3. Sekundärionenmassenspektrometrie

Mittels SIMS lassen sich Tiefenprofile der Elementkonzentrationen in Festkörpern messen. In einem Ultrahochvakuum wird dazu ein Primärionenstrahl, z.B. O_2^+ oder Cs^+ , mit einer Energie von einigen keV auf die Probe gerichtet, durch den aus dieser geladene und ungeladene Sekundärionen freigesetzt werden. Mit der Zeit entsteht am Einschlagort des Primärstrahls ein sich vertiefendes Loch, sodass Tiefenprofile aufgenommen werden können. Während die ungeladenen Sekundärionen für die Analyse verloren sind, werden die geladenen in einem Massenspektrometer anhand ihres spezifischen Verhältnisses von Ladung zu Masse identifiziert und gezählt, sodass ihre Konzentration in der Probe bestimmt werden kann. Die Tiefenauflösung hängt von der Primärionenenergie und dem Primärionenfluss ab, da erstere bestimmt wie groß das Wechselwirkungsvolumen in der Probe ist, während letztere die Abtragrate beeinflusst.

Unabhängig davon treffen aufgrund der begrenzten Fokussierbarkeit des Primärstrahls einige Primärionen stets die Ränder des erzeugten Lochs oder auch die Probenoberfläche, d.h. das Signal aus einer bestimmten Tiefe wird von den darüber liegenden Schichten verfälscht, wobei der Effekt mit zunehmender Tiefe ansteigt. Bei der Kalibrierung der Si-Dotierungen (Abschnitt 2.1.4) wurde dies insofern berücksichtigt, als dass die am wenigsten dotierten Schichten am nächsten an der Probenoberfläche lagen, während stärker dotierte Schichten tiefer platziert wurden. Dadurch wird verhindert, dass die Siliziumkonzentration in einer Schicht aufgrund darüber liegender, hochdotierter Schichten überschätzt wird. Auch eine elektrostatische Aufladung der Halbleiterschichten, wie sie bei AlGaIn aufgrund der in der Regel schlechten Leitfähigkeit häufig auftritt, kann zu einer Verfälschung des Messsignals führen. Da die Aufladung, falls vorhanden, oft mit der Messzeit zunimmt, kann sie an einer Änderung von erwartbar konstanten Konzentrationen, wie z.B. der Aluminiumkonzentration in einer homogenen Schicht erkannt werden. Schließlich ist bei SIMS-Messungen zu beachten, dass sich Sauerstoff und Silizium an allen Oberflächen anlagern, die der Umgebungsluft ausgesetzt sind. Dies führt zu deutlichen Peaks in den entsprechenden SIMS-Signalen, sodass die ersten 100–200 nm um derartige Grenzflächen kaum verwertbare Daten liefern. Die beschriebenen Effekte sind in Abbildung 2.13 an einem exemplarischen Tiefenprofil dargestellt.

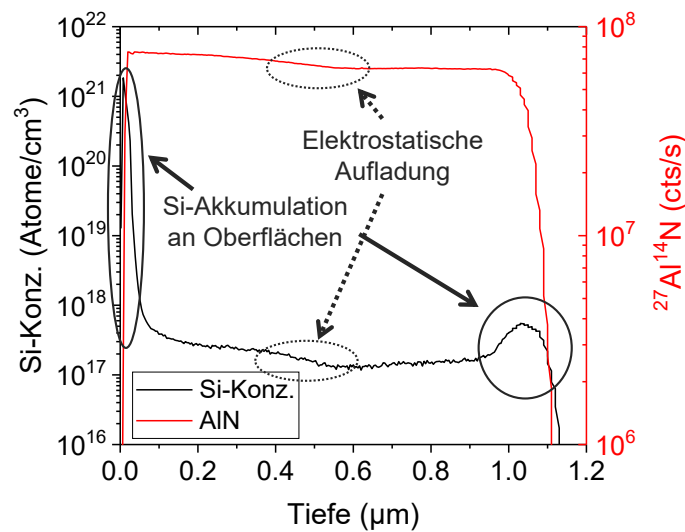


Abbildung 2.13.: Mittels SIMS bestimmtes Tiefenprofil der Siliziumkonzentration sowie des Signals vom $^{27}\text{Al}^{14}\text{N}$ -Molekül in einer 1 µm dicken AlN-Schicht auf Saphir (Grenzfläche bei ca. 1.1 µm). Die durchgezogenen Ellipsen markieren die Si-Akkumulation an der Saphir- und der AlN-Oberfläche. Die gestrichelten Ellipsen zeigen eine Signalverfälschung durch elektrostatische Aufladung. (Messung durchgeführt von RTG Mikroanalyse.)

Sämtliche in dieser Arbeit vorgestellten SIMS-Messungen wurden von der Firma RTG Mikroanalyse durchgeführt. Die Auflösungsgrenzen lagen für Kohlenstoff und Sauerstoff bei $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und für Silizium bei $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

2.2.4. Photolumineszenz

Bei der Photolumineszenz (PL) werden in der Halbleiterprobe mit einem Anregungslaser Elektron-Loch-Paare erzeugt. Die anschließend bei der strahlenden Rekombination dieser Ladungsträger entstehenden Photonen werden mit einem wellenlängenselektiven Detektor analysiert. Die Photonenenergie des Anregungslasers muss dabei größer sein als die Bandlückenenergie wenigstens einer der Halbleiterschichten, damit Ladungsträger erzeugt werden können. Bei den in dieser Arbeit gezeigt PL-Messungen wurden folgende Laserquellen verwendet:

- Ein frequenzverdoppelter Argon-Ionen-Laser mit einer Emissionswellenlänge von 229 nm und einer kontinuierlichen (continuous wave, cw) Emission,
- Ein ArF-Excimerlaser mit einer Emissionswellenlänge von 193 nm, einer Pulsdauer von 5 ns, einer Wiederholfrequenz von 50–500 Hz und maximalen Anregungsleistungen von mehreren MW/cm².

Die Anregungsleistung beider Laser kann mit Filtern über mehrere Größenordnungen variiert werden. Die Proben selbst befinden sich in einem Heliumkryostaten, sodass sie bei Temperaturen zwischen 10 K und 300 K vermessen werden können.

Häufig wird zur Charakterisierung von Halbleiterschichten für optische Emittoren die IQE herangezogen, welche das Verhältnis der gesamten Rekombinationsrate zur strahlenden

Rekombinationsrate angibt. Da bei 10 K die nichtstrahlende Rekombination an Defekten aufgrund der temperaturabhängigen Einfangquerschnitte kaum noch stattfindet (vgl. S. 9), wird häufig davon ausgegangen, dass die IQE bei dieser Temperatur gleich 1 ist, sodass durch Vergleich der PL-Intensitäten bei 10 K und 300 K die IQE bei Raumtemperatur bestimmt werden kann

$$\text{IQE}_{300\text{ K}} = \frac{\text{Intensität}(300\text{ K})}{\text{Intensität}(10\text{ K})} \quad (2.6)$$

Dabei ist zu beachten, dass die IQE von der generierten Ladungsträgerdichte, also von der Anregungsleistungsdichte abhängt, da, wie in Abschnitt 1.2.1 beschrieben, die strahlende Rekombinationsrate proportional zum Quadrat der Ladungsträgerdichte n ist, während die SRH-Rekombination proportional zu n und die Augerrekombination proportional zu n^3 ist. Für niedrige Anregungsleistungsdichten wird die Ladungsträgerdynamik daher von der SRH-Rekombination dominiert, die jedoch durch die Dichte der Rekombinationszentren begrenzt ist, sodass mit steigender Ladungsträgerdichte die strahlende Rekombination an Bedeutung gewinnt und folglich die IQE ansteigt. Für sehr hohe Anregungsleistungen nimmt die Augerrekombination zu und die IQE sinkt wieder.

Neben der BKE bzw. der Emission aus den Quantenfilmen treten häufig weitere Lumineszenzbanden auf, die durch Rekombination unter Beteiligung von Defekten hervorgerufen werden und bei AlGaIn vom UV-Bereich bis in den blau-grünen Spektralbereich reichen können [124–126]. Aufgrund der Wellenlängendispersivität der Optiken, die das PL-Signal in den Monochromator fokussieren, werden nicht alle Lumineszenzbanden mit derselben Effizienz eingekoppelt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die Optiken stets auf die Bandkantenlumineszenz justiert, wodurch deren gemessene Intensität verglichen mit einer Justage auf die DL um bis zu eine Größenordnung ansteigt. Die unterschiedlichen Detektionseffizienzen η_{det} haben zur Folge, dass beim Vorhandensein mehrerer Lumineszenzbanden

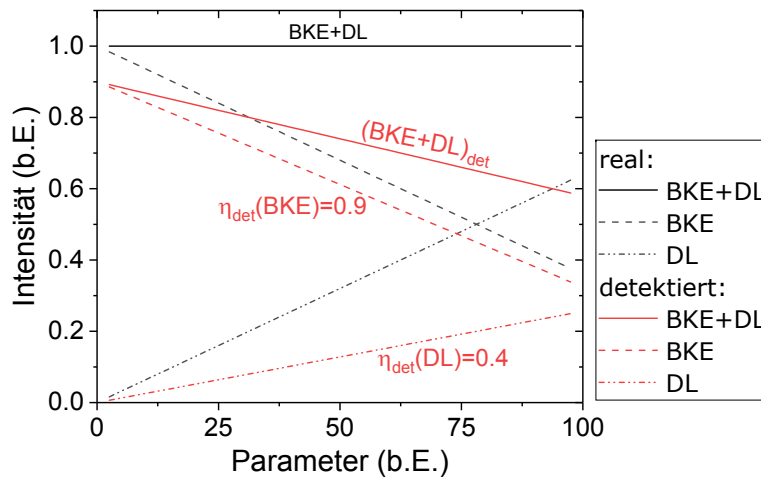


Abbildung 2.14.: Beispielhafte, hypothetische Abhängigkeit der PL-Intensitäten von Bandkantenemission und Defektlumineszenz einer Probe von einem beliebigen Parameter. Es wurde eine lineare Abnahme der BKE-Intensität angenommen, verbunden mit einem Anstieg der DL-Intensität im selben Maße, sodass die Gesamt-PL-Intensität konstant bleibt. Durch die unterschiedlichen Detektionseffizienzen ($\eta_{\text{det.}}(\text{BKE}) = 0.9$, $\eta_{\text{det.}}(\text{DL}) = 0.4$) scheint die gemessene Gesamt-PL-Intensität jedoch abzunehmen.

aus einer gemessenen Abnahme der Gesamt-PL-Intensität (BKE+DL) nicht auf eine Zunahme nichtstrahlender Prozesse geschlossen werden kann. Abbildung 2.14 verdeutlicht dies anhand einer simplen Modellrechnung.

In dem verwendeten Kryostaten ist nur Platz für eine begrenzte Anzahl von Proben (je nach Größe ca. 4–5). Sollen die Intensitäten/IQEs von mehr Proben verglichen werden, so müssen diese nacheinander vermessen werden. Da die Optiken stets neu justiert werden müssen, ist dieser Vergleich jedoch nicht unbedingt trivial. Daher wurde in einem solchen Fall eine Referenzprobe gewählt, die stets im Kryostaten verblieb und gemeinsam mit allen Proben gemessen wurde. Das Verhältnis zwischen diesen Messungen wurde anschließend als Korrekturfaktor auf die anderen Proben angewendet. Gleichzeitig wurde jede Messung an jeder Probe an drei verschiedenen Positionen durchgeführt, um durch Mittelwertbildung lokale Variationen der Probeneigenschaften zu berücksichtigen.

2.2.5. Optisches Pumpen

Optisches Pumpen ist im Prinzip nichts anderes als Photolumineszenz, allerdings mit dem Ziel in der Probe Lasing zu erzeugen und, daraus resultierend, mit einem spezifischen experimentellen Aufbau.

Alle optischen Pumpexperimente wurden mit einem 193 nm ArF-Excimerlaser durchgeführt, der mit einer Pulslänge von 5 ns, einer Wiederholfrequenz von 50 oder 500 Hz und einer Pulsenergie von 1 mJ betrieben wurde. Eine vereinfachte schematische Darstellung des Aufbaus ist in Abbildung 2.15 zu sehen. Die Anregungsleistungsdichte wird über drei hintereinander angeordnete Filterräder zwischen wenigen kW/cm^2 und bis zu $50 \text{ MW}/\text{cm}^2$ variiert. Der Laserstrahl wird über eine Zylinderlinse zu einem Streifen geformt, dessen Länge durch einen Spalt und dessen Breite durch den Abstand zur Probenoberfläche einstellbar sind. Die Länge wird mit $>2 \text{ mm}$ größer als die maximale Resonatorlänge der Proben (1.6 mm) gewählt, sodass stets über den gesamten Resonator Ladungsträger generiert werden. Die Strichbreite auf der Probe betrug $15 \mu\text{m}$. Durch Verfahren der Probe senkrecht zur Resonatorrichtung können die Lasereigenschaften an verschiedenen Positionen eines Riegels untersucht werden. Das aus der Facette der Probe emittierte Licht wird von einer Glasfaser eingefangen und zum Monochromator geleitet. Gegebenenfalls

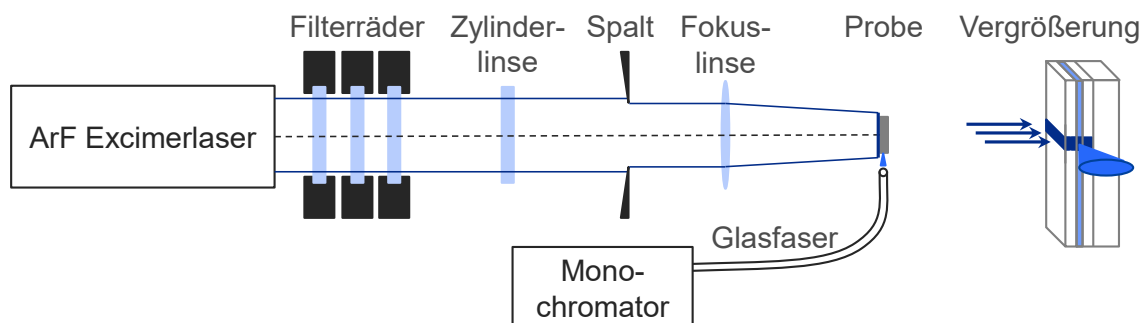


Abbildung 2.15.: Schematische Darstellung des Messaufbaus zum optischen Pumpen. Es sind nur die wichtigsten Komponenten dargestellt. Der Anregungslaserstrahl wird auf eine Größe von $15 \mu\text{m} \times 2000 \mu\text{m}$ auf der Probenoberfläche fokussiert.

kann zwischen Glasfaser und Probe ein Polarisator in den Strahlengang eingebracht werden, um die Polarisation des emittierten Lichtes zu messen.

Mit dem beschriebenen Aufbau kann das Einsetzen von Laseremission aus der Probe anhand dreier Kriterien bestimmt werden:

- dem Schwellenverhalten der emittierten Intensität, d.h. exponentieller Anstieg mit der Anregungsleistung gefolgt von einem linearen Anstieg,
- der starken Verringerung der spektralen Linienbreite durch den Übergang vom breiten Spektrum der spontanen Emission zum Lasing einiger weniger Moden,
- der TE- oder TM-Polarisation des emittierten Lichtes.

Aus praktischen Gründen wurden in der Regel nur die ersten beiden Kriterien berücksichtigt, da Polarisationsmessungen einen deutlichen Mehraufwand bedeuteten. Abbildung 2.16 zeigt exemplarisch für eine Laserprobe, wie die Schwelle aus der Intensitätskennlinie und aus der Verringerung der FWHM bestimmt werden kann. Beide Verfahren liefern annähernd identische Werte für die Laserschwelle.

Eine Schwierigkeit bei der experimentellen Bestimmung von Laserschwellen unter optischer Anregung stellt die Berechnung der Anregungsleistungsdichte dar. Für diese müssen sowohl die Abmessungen des Anregungsstrichs auf der Probe als auch die Intensitätsverteilung in diesem bekannt sein. Die Intensitätsverteilung ist allerdings in der Regel inhomogen und die Breite des Anregungsstrichs hängt stark vom Abstand zwischen Probenoberfläche und Fokussierlinse ab. Um die Vergleichbarkeit der ermittelten Laserschwellen mit Ergebnissen anderer Gruppen besser abschätzen zu können, wurden einige Laserstrukturen sowohl an dem hier beschriebenen Messplatz untersucht als auch an anderen Forschungseinrichtungen. Dabei ergaben sich an dem hier verwendeten Messplatz doppelt bis zehnmal so hohe Laserschwellen. Bekannt ist, dass in der Vergleichsgruppe der Anregungsstreifen wesentlich

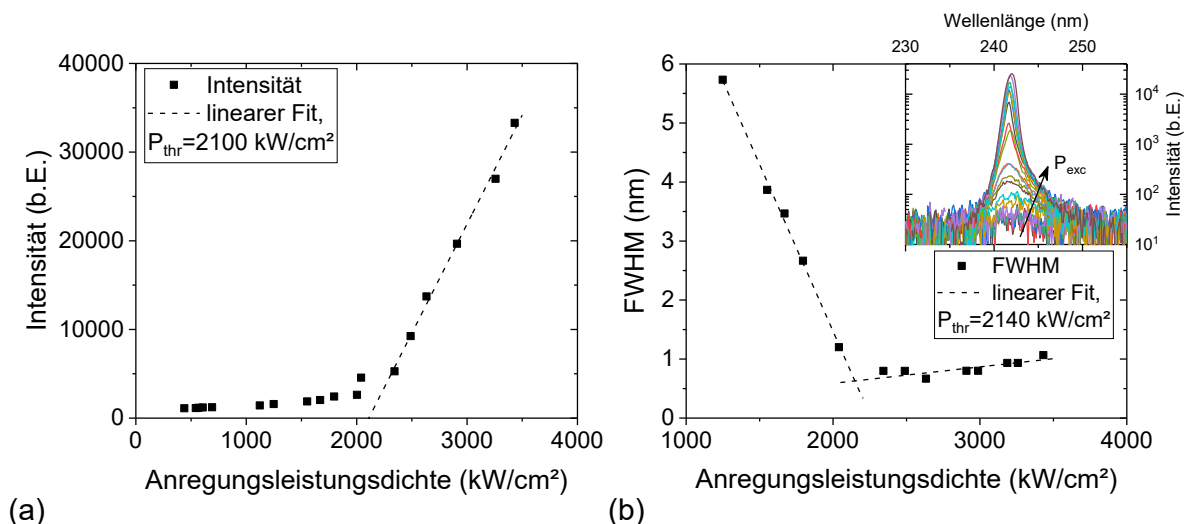


Abbildung 2.16.: Veranschaulichung der Bestimmung der Laserschwelle P_{thr} (a) über den linearen Bereich der Kennlinie, (b) über die Einengung der spektralen Halbwertsbreite. Der Inset zeigt die zugehörigen Spektren.

breiter ist, sodass Ladungsträger in einen deutlich größeren Bereich injiziert werden. Dies könnte ebenfalls die Laserschwelle beeinflussen. Die genaue Ursache für die beobachteten Unterschiede ist allerdings unklar, sodass auch keine Aussage darüber getroffen werden kann, welche Ergebnisse richtiger sind.

Für jede untersuchte Probe wurde die Laserschwelle an mehreren Riegeln von unterschiedlichen Stellen des Wafers und auf jedem Riegel an mehreren Positionen untersucht, sodass je Probe ca. 5–10 Laserschwellen gemessen wurden. Bei stark schwankenden Ergebnissen für eine Probe wurden der höchste und der geringste gemessene Wert vor Bildung des Mittelwerts gestrichen. Während die Berechnung von Mittelwert und Standardabweichung das übliche Vorgehen bei der experimentellen Bestimmung von Probenparametern ist, wäre auch ein Vergleich der geringsten Schwellen jeder Probe denkbar. Man kann argumentieren, dass diese Bestwerte die minimal möglichen Schwellen einer Probe widerspiegeln, wenn keine lokalen Inhomogenitäten, wie z.B. Partikel auf der Facette oder der Oberfläche, lokale Wachstumsstörungen, o. Ä., die Schwelle erhöhen. Gegen die Verwendung der Bestwerte spricht, dass nicht erkennbar ist, ob der Bestwert bereits gemessen wurde oder ob eine andere Probenposition nicht möglicherweise eine noch geringere Schwelle zeigen würde. Es wurden daher für die Analyse die Mittelwerte herangezogen, wobei die Trends der Bestwerte in der Regel kaum Abweichungen zeigten.

2.2.5.1. Simulation des optischen Pumpens

Um ein besseres Verständnis für die Ursachen der beobachteten Auswirkungen von Parametervariationen auf die Laserschwellen zu bekommen, wurde das Lasing unter optischer Anregung mit der Software Silvaco Atlas simuliert [127].

Für die Simulationsrechnungen wurden jeweils zweidimensionale Modelle der Heterostrukturen mit einer Breite von 10 μm erstellt und es wurde eine homogene optische Anregung mit einer monochromatischen Wellenlänge von 193 nm unter senkrechtem Einfall auf die gesamte Probenoberfläche angenommen (Abb. 2.17(a)). Die Dicke des Templates wurde auf 200 nm reduziert, um den Rechenaufwand zu verringern. Abbildung 2.17(b) zeigt, dass die optische Feldverteilung bei dieser Dicke bereits auf Null abgefallen ist. Ein Einfluss auf die Ladungsträgerverteilung ist auch nicht zu erwarten, da zum einen die Generationsrate mit dem Abstand von der Oberfläche exponentiell abnimmt und zum anderen derart weit von den QWs entfernte Ladungsträger rekombinieren würden, bevor sie zu diesen diffundieren können. An der Unterseite der Heterostruktur wurde eine Metallschicht simuliert, um ein Referenzniveau für Valenz- und Leitungsband zu definieren. In allen Halbleiterschichten wurde, basierend auf SIMS-Ergebnissen eine Hintergrunddotierung mit Silizium in Höhe von $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ angenommen.

Die Simulation löst zur Berechnung der Ladungsträgerverteilung die Drift-Diffusions-Gleichung und berechnet die gebundenen Zustände in den Quantenfilmen über die k·p Methode. Es werden jeweils die beiden niedrigsten Zustände in den drei Valenzbändern und dem Leitungsband berechnet. Die Ladungsträgerbeweglichkeiten werden als konstant angenommen und in allen Schichten auf $100 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ für Elektronen und $5 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ für Löcher festgesetzt [128–130]. Für spontane und piezoelektrische Polarisierung werden die von Vurgaftmann et al. aufgeführten Materialkonstanten [131] zugrunde gelegt und

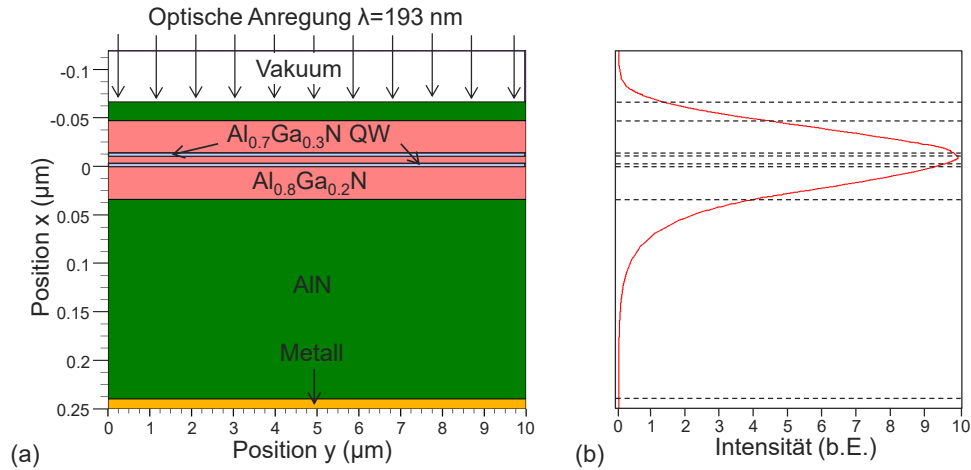


Abbildung 2.17: (a) Exemplarische Modell einer typischen AlGaIn-Laserstruktur für die Simulationsrechnungen, (b) Zugehörige vertikale Intensitätsverteilung der Lasermode.

die daraus berechneten Flächenladungen an Heterogrenzflächen zu 60 % berücksichtigt [132]. SRH-Lebensdauern wurden basierend auf dem Modell von Karpov und Makarov in Abhängigkeit von der TDD berechnet [133]. Das Modell wurde allerdings um einen TDD-unabhängigen Term erweitert, um die Rekombination an Punktdefekten zu berücksichtigen, für die Lebensdauern von 350 ps für Löcher und 35 ps für Elektronen abgeschätzt wurden (vgl. Anhang S. 108). Nichtstrahlende Rekombination an den Heterogrenzflächen wurde mit einer Rekombinationsgeschwindigkeit von 10^3 cm s^{-1} berücksichtigt [134, 135]. Für die Augerrekombination wurde ein Rekombinationskoeffizient von $C_n = C_p = 3 \times 10^{-30} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$ für Elektronen und Löcher angenommen [73, 74]. Eine detaillierte Auflistung aller verwendeten Materialparameter findet sich im Anhang in Tabelle A.12.

Die Helmholtzgleichung zur Bestimmung der optischen Modenverteilung wird nur senkrecht zu den Heterogrenzflächen gelöst, die Simulation erfolgt in dieser Hinsicht also eindimensional. Da die untersuchten Laserproben lateral keine Wellenleiterstrukturen besitzen, sind sie in dieser Richtung gewinngeführt. Gewinnführung zu simulieren ist jedoch mit einem deutlich erhöhten Aufwand verbunden. Da außerdem in dieser Hinsicht alle untersuchten Proben identisch sind und in den Simulationen nur Variationen der Heterostruktur untersucht werden, wurde auf die zweidimensionale Lösung der Helmholtzgleichung verzichtet. Die Reflektivität der unbeschichteten Facetten wurde aus den Brechungsindizes zu 18 % berechnet. Es wurden interne Verluste in Höhe von 30 cm^{-1} angenommen [82, 136, 137]. Bei Proben mit hohen TDDs wurde ein Beitrag der Versetzungen zu den optischen Streuverlusten nach der Formel von Liao et al. abgeschätzt [138]. Eine detailliertere Beschreibung hierzu findet sich im Anhang auf Seite 110.

Unter den beschriebenen Bedingungen durchgeführte Simulationen führen zu Transparenzladungsträgerdichten im Bereich von $(2\text{--}8) \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ und Schwellenladungsträgerdichten von $(3\text{--}12) \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ bzw. ca. $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Diese Werte sind in guter Übereinstimmung mit Berechnungen von Chow und Kneissl [139] sowie mit experimentellen Werten von Nakamura et al. [140]. Dies kann als Bestätigung für die Gültigkeit und Aussagekraft der Simulationsergebnisse angesehen werden.

Kapitel 3.

Wachstumsstudien an $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten

Dieses Kapitel befasst sich mit dem Einfluss von Temperatur, Druck und V/III-Verhältnis auf das Wachstum von 130 nm dicken $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten. Ziel der Untersuchungen ist es zum einen, den Einfluss dieser Parameter auf die Wachstumsraten, -effizienzen und den Einbau von Fremdatomen, insbesondere Silizium, zu verstehen. Zum anderen soll analysiert werden, ob sich Auswirkungen auf die optischen Eigenschaften, insbesondere die interne Quanteneffizienz der Schichten ergeben. Die Untersuchungen dienen als Vorarbeit für die Realisierung von Laserstrukturen, da Quantenfilmlaser einerseits eine sehr gute Materialqualität und damit geringe Verluste erfordern, andererseits aber auch die Wachstumsraten in einem Bereich liegen müssen, der eine exakte Schichtdickenkontrolle zulässt, ohne dass die Wachstumszeiten beliebig lang werden.

Alle in diesem Kapitel diskutierten Proben wurden auf planaren AlN/Saphir-Templates gewachsen. Zehn verschiedene Kombinationen von Temperatur, Druck und V/III-Verhältnis wurden gewählt, um einen möglichst großen Parameterbereich abzudecken (Tabelle 3.1). Für jede Wachstumsparameterkombination wurde mindestens eine Probe mit einer einzelnen (130 ± 10) nm dicken $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Schicht ($x=0.70 \pm 0.03$) gewachsen. Über Kalibrierproben wurde ermittelt, welche TMAI- und TMGa-Flüsse sowohl zur gewünschten Festkörperzusammensetzung als auch zum korrekten V/III-Verhältnis führen. Eine vollständige Auflistung aller Proben findet sich im Anhang in Abschnitt A.2.1. Das V/III-Verhältnis wurde durch Änderung des TMAI- und TMGa-Flusses variiert, während der Ammoniakfluss konstant gehalten wurde. Dieses Vorgehen wurde gewählt, da im verwendeten Reaktor die IIIer-Komponenten nur durch einen Einlass einströmen, während NH_3 durch zwei Einlässe (einen unterhalb und einen oberhalb des Einlasses für die Metallorganika) einströmt. Verschiedene Aufteilungen des NH_3 -Flusses auf die beiden Einlässe würden theoretisch zu demselben V/III-Verhältnis führen, sich vermutlich jedoch aufgrund der Strömungsdynamik im Reaktor unterschiedlich auf das Kristallwachstum auswirken.

Die 10 Wachstumsparameterkombinationen lassen sich in drei Subserien aufteilen, in denen jeweils nur die Temperatur (T1...T4), nur der Druck (P1...P4) bzw. nur das V/III-Verhältnis (V1...V4) variiert wurde, während die anderen beiden Parameter konstant gehalten wurden, sodass sich der Einfluss jedes Parameters separat studieren lässt. Die Auswertung der Ergebnisse ist in drei Abschnitte gegliedert. Abschnitt 3.1 untersucht Auswirkungen auf die Wachstumsrate, Materialzusammensetzung und Reaktionseffizienz. Durch den Vergleich mit Simulationsrechnungen werden die relevanten Reaktionsprozesse

Tabelle 3.1.: Übersicht über die gewählten Wachstumsparameterkombinationen aus Wafertemperatur T, Reaktordruck p und V/III-Verhältnis in der Gasphase. Der H_2 -Gesamtfluss betrug bei 60 mbar 36 l/min und bei allen anderen Drücken 60 l/min. V1 und T1 sowie T4 und P4 sind identisch. Die doppelte Auflistung dient der besseren Erkennbarkeit der 3 Subserien.

Label	T (°C)	p (mbar)	V/III	TMAI ($\mu\text{mol}/\text{min}$)	TMGa ($\mu\text{mol}/\text{min}$)	NH_3 (mol/min)
T1	1050	200	550	129	115	134
T2	1080	200	550	99	144	134
T3	1110	200	550	71	173	134
T4	1140	200	550	37	206	134
P1	1140	60	550	87	158	134
P2	1140	100	550	55	189	134
P3	1140	150	550	42	202	134
P4	1140	200	550	37	206	134
V1	1050	200	550	129	115	134
V2	1050	200	1100	67	55	134
V3	1050	200	2200	21	40	134
V4	1050	200	3300	9	32	134

in der Gasphase sowie an der Waferoberfläche analysiert. In Abschnitt 3.2 wird der Einfluss auf die Konzentration von Silizium, Sauerstoff und Kohlenstoff in den nominell undotierten Proben untersucht und die SiC-Beschichtung verschiedener Reaktorteile als Hauptquelle für parasitär eingebautes Si identifiziert. Abschließend wird in Abschnitt 3.3 diskutiert, inwiefern die Wachstumsparameter im betrachteten Bereich Auswirkungen auf die Photolumineszenzeigenschaften der $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten haben.

3.1. Wachstumsraten, Gasphasenreaktionen und Reaktionseffizienz

Abbildung 3.1 zeigt die Wachstumsraten der 130 nm dicken $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten aufgetragen über dem jeweils variierten Parameter. Den stärksten Einfluss auf die Wachstumsrate hat offensichtlich der Reaktordruck, wobei die maximale Rate von 440 nm/h für das Wachstum von Quantenfilmen bereits sehr hoch ist, da die Wachstumszeit für einen 2 nm dicken QW nur 16 s betrage. Ein Vergleich der einzelnen Werte in Abb. 3.1 ist jedoch aufgrund der unterschiedlichen TMAI- und TMGa-Flüsse schwierig. Um diesen Vergleich zu ermöglichen, werden die Wachstumseffizienzen η_{AlN} und η_{GaN} der binären Komponenten AlN und GaN

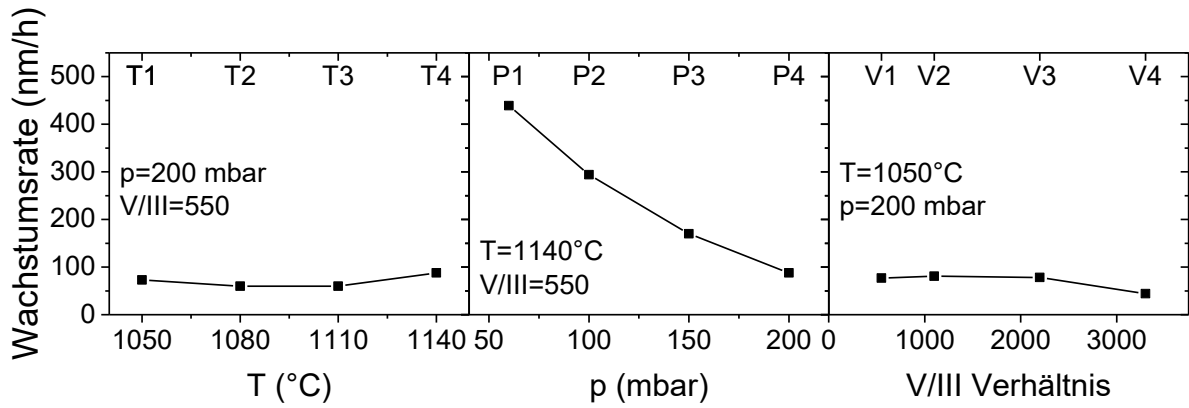


Abbildung 3.1.: Wachstumsraten der 130 nm dicken $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten aufgetragen über dem jeweils variierten Parameter. Die Raten wurden über in-situ Reflektivitätsmessungen bei einer Wellenlänge von 405 nm ermittelt.

als Quotient der jeweiligen Wachstumsrate und des zugehörigen Metallorganika-Flusses berechnet:

$$\eta_{\text{AlN}} = \frac{GR_{\text{AlN}}}{Q_{\text{TMAI}}} = \frac{x \times GR}{Q_{\text{TMAI}}} \quad (3.1)$$

$$\eta_{\text{GaN}} = \frac{GR_{\text{GaN}}}{Q_{\text{TMGa}}} = \frac{(1-x) \times GR}{Q_{\text{TMGa}}}$$

Dabei ist GR die $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Wachstumsrate, x der Al-Gehalt und Q_{TMAI} bzw. Q_{TMGa} der Fluss der jeweiligen Komponente in den Reaktor (vgl. Tabelle 3.1). Die im Zähler der Gleichungen berechneten binären AlN- und GaN-Wachstumsraten bedingen sich durch die Wachstumschemie gegenseitig und sind daher nicht als unabhängige Größen zu verstehen, d.h. würde man beispielsweise die TMGa-Linie schließen und mit ansonsten identischen Flüssen reines AlN wachsen, ergäbe sich eine andere als die hier berechnete AlN-Wachstumsrate. Die berechneten Wachstumseffizienzen sind in Abbildung 3.2 dargestellt. Sie zeigen eine noch stärkere Abhängigkeit von Temperatur, Druck und V/III-Verhältnis

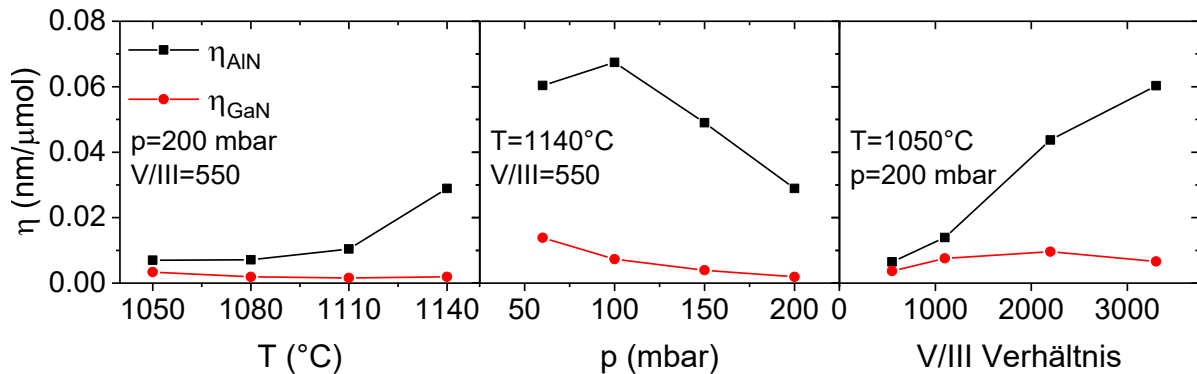


Abbildung 3.2.: Mittels Formel 3.1 berechnete AlN- und GaN-Wachstumseffizienzen der 130 nm dicken $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten aufgetragen über dem jeweils variierten Parameter.

als die Wachstumsraten. Die η_{GaN} sind dabei für alle Proben geringer als die η_{AlN} , da die Galliumnitridwachstumsrate bei den hohen Temperaturen durch die Desorption der Ga-Atome reduziert wird. Die spezifischen Abhängigkeiten der Wachstumseffizienzen von den einzelnen Parametern sollen im Folgenden untersucht werden.

Um zu verstehen, welche Prozesse innerhalb des Reaktors am stärksten Einfluss auf die Wachstumseffizienzen und -raten haben, wurden in Kooperation mit der Firma STR Simulationen des Wachstumsprozesses durchgeführt (vgl. Abschnitt 2.1.1.1). Bekanntermaßen haben bei der MOVPE von AlGaN aufgrund der hohen Temperaturen parasitäre Vorreaktionen in der Gasphase einen starken Einfluss auf den Wachstumsprozess [93, 94, 141, 142]. Dies soll zunächst anhand der Temperaturserie verdeutlicht werden. In Abbildung 3.3 werden die experimentellen Daten mit Simulationsergebnissen ohne parasitäre Gasphasenreaktionen (Transportlimit) sowie mit Berechnungen unter Berücksichtigung von AlN- bzw. AlGaN-Partikelbildung in der Gasphase verglichen. Die Simulationen zeigen, dass die Wachstumsrate und damit auch die Effizienz des Wachstumsprozesses durch den Verlust von Präkursoren in der Gasphase um 75 % bis 90 % sinkt (Vergleich Experiment – Transportlimit). Der Einfluss der Gasphasenreaktionen hängt allerdings stark von den konkreten Wachstumsbedingungen ab und kann, wie später gezeigt werden wird, durch die Wahl geeigneter Parameter drastisch reduziert werden. In Abbildung 3.3 ist auch ersichtlich, dass eine Simulation der Gasphasenreaktionen ohne Beteiligung von Ga die experimentellen Ergebnisse nicht adäquat beschreibt, obwohl die Verluste durch parasitäre Prozesse beim Wachstum von reinem GaN typischerweise geringer sind als bei AlN-Wachstum [143, 144]. Die bei der AlGaN-MOVPE in der Gasphase entstehenden AlN-Partikel wechselwirken jedoch mit den Ga-haltigen Molekülen, sodass es zu einem signifikanten Verlust von Ga kommt [145]. Abbildung 3.4 zeigt die Verteilungen verschiedener Reaktionsprodukte im Reaktor und verdeutlicht, welchen Einfluss die Berücksichtigung der AlGaN-Partikelbildung in der Simulation hat. Die Partikeldichte nimmt insgesamt zu, während die Monomethylgallium-Konzentration (MMGa) abnimmt. Werden diese Prozesse berücksichtigt, so gibt die Simulation die experimentellen Trends auch quantitativ sehr gut

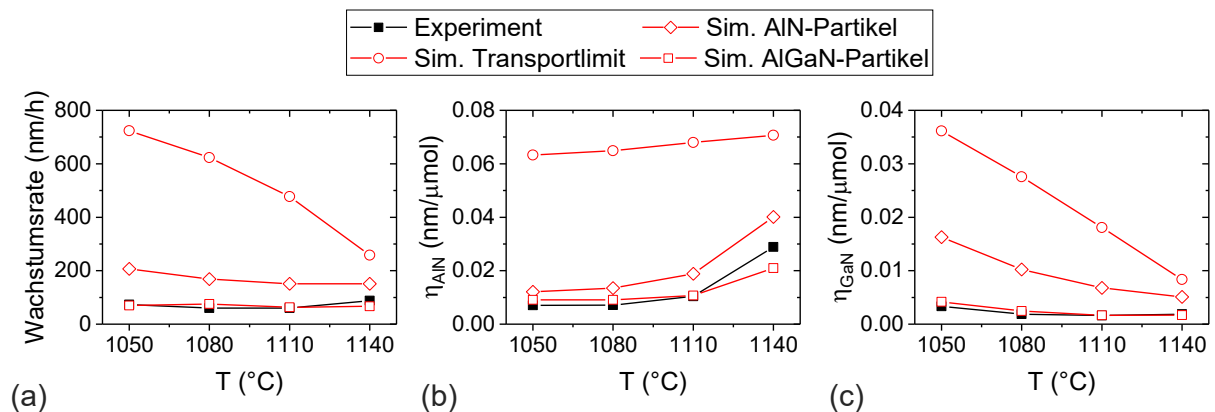


Abbildung 3.3.: Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit Simulationsrechnungen ohne parasitäre Gasphasenreaktionen (Transportlimit) sowie unter Berücksichtigung von Gasphasenreaktionen mit AlN-Partikelbildung bzw. AlGaN-Partikelbildung. Dargestellt sind (a) die AlGaN-Wachstumsrate, (b) die AlN-Wachstumseffizienz η_{AlN} und (c) die GaN-Wachstumseffizienz η_{GaN} . (Simulationen von Dr. Anna Lobanova, STR.)

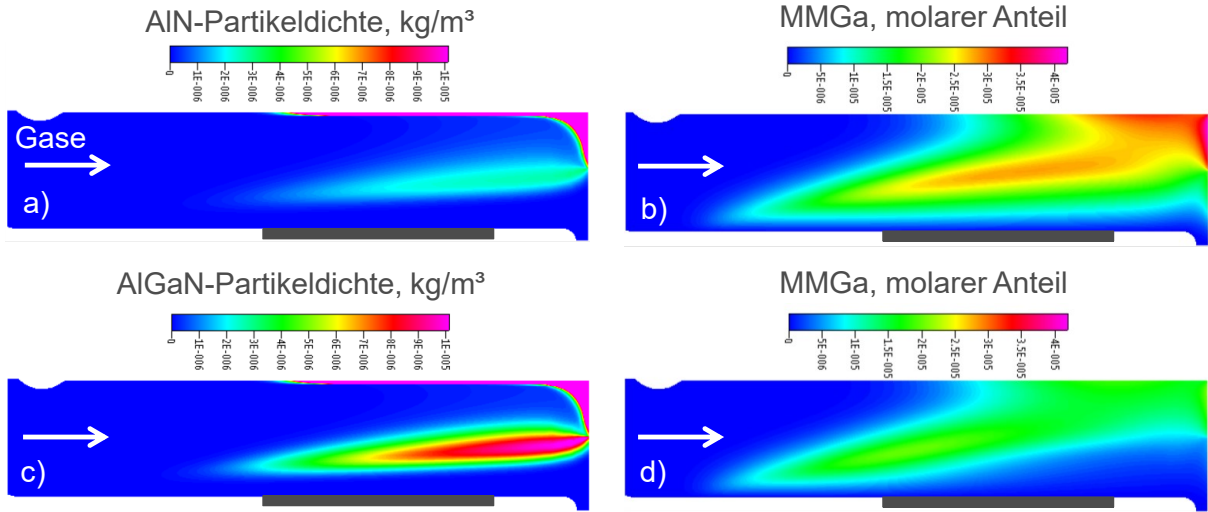


Abbildung 3.4.: Vergleich der Simulation unter Berücksichtigung von AlN-Partikelbildung in der Gasphase (a,b) sowie unter Berücksichtigung von AlGaIn-Partikelbildung (c,d). Links ist der Einfluss auf die Partikeldichte in der Gasphase gezeigt, rechts die MMGa-Konzentration. Dargestellt ist jeweils ein halber Reaktorquerschnitt mit Gaseinlass links und Waferposition in Grau. (Simulationen von Dr. Anna Lobanova, STR.)

wieder (vgl. Abb. 3.3) und der Anstieg von η_{AlN} mit der Temperatur lässt sich erklären. Während bereits im transportlimitierten Fall ein geringer Anstieg zu beobachten ist, der vermutlich durch die verbesserte thermische Zerlegung des TMAI erzeugt wird, zeigt sich real ein noch stärkerer Anstieg der AlN-Wachstumseffizienz mit der Temperatur. Ursächlich hierfür ist die Abnahme der Gasphasenreaktionen durch den verringerten TMAI-Fluss [141] (vgl. Tab. 3.1), die gegenüber der erwarteten Zunahme der parasitären Reaktionen mit erhöhter Temperatur [94, 141] überwiegt.

Das deutliche Absinken von η_{GaIn} mit steigender Wachstumstemperatur lässt sich allerdings nicht allein über Partikelbildung in der Gasphase erklären, da es im transportlimitierten Fall sogar stärker ist als bei Berücksichtigung von Gasphasenreaktionen. Maßgeblich ist in diesem Fall die Ätzung von bereits in den Kristall eingebautem Ga durch Wasserstoff und Ammoniak [96, 146, 147] gefolgt von der Desorption des Galliums von der Waferoberfläche. Die aus den Simulationen berechnete Ätzrate ist in Abbildung 3.5 dargestellt und steigt mit der Wafertemperatur drastisch an. Dieser Anstieg ergibt sich einerseits durch die temperaturabhängige Desorption des geätzten Galliums von der Kristalloberfläche und andererseits indirekt durch den geringeren TMAI-Fluss bei hohen Temperaturen. Hohe TMAI-Flüsse stabilisieren das Gallium, da sie für eine stärkere Al-Bedeckung der Kristalloberfläche sorgen und verringern dadurch die Ätzrate [148]. AlN selbst wird durch Wasserstoff nicht geätzt. Der Ätzprozess trägt maßgeblich zum Absinken der GaN-Wachstumseffizienz η_{GaN} mit steigender Temperatur bei, während der Einfluss von Gasphasenreaktionen mit steigender Temperatur aufgrund des reduzierten TMAI-Flusses sinkt. Dies zeigt sich darin, dass der Unterschied in η_{GaN} zwischen transportlimitierter Simulation und Simulation mit Gasphasenreaktionen mit zunehmender Temperatur abnimmt. Wäre der TMAI-Fluss konstant gehalten worden, so wäre ein Anstieg der Gasphasenreaktionen und der Galliumverluste durch diese zu erwarten.

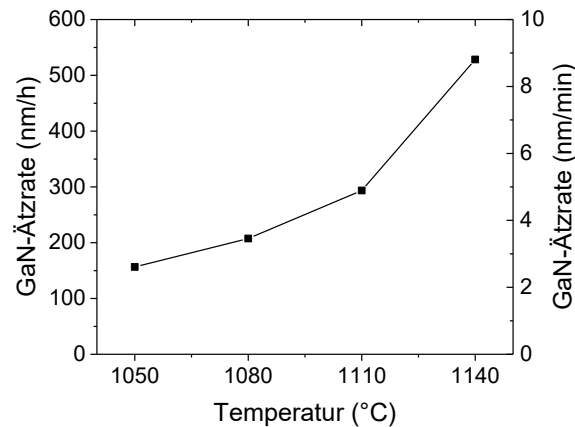


Abbildung 3.5.: Aus den Simulationsergebnissen berechnete Ätzrate, mit der Ga durch Wasserstoff und Ammoniak aus dem Kristall wieder herausgelöst wird. (Simulationen von Dr. Anna Lobanova, STR.)

Das Verhalten von AlN- und GaN-Wachstumseffizienz führt zu einer über der Temperatur annähernd konstanten AlGaN-Wachstumsrate, die bis 1110 °C leicht ab- und für 1140 °C aufgrund der drastisch verringerten Gasphasenreaktionen wieder zunimmt. Bemerkenswert ist hierbei, dass die Abnahme der Gasphasenreaktionen durch den verringerten TMAI-Fluss (121 → 37 $\mu\text{mol}/\text{min}$) die AlN-Wachstumseffizienz derart stark erhöht, dass die AlN-Wachstumsrate bei 1140 °C mit 60 nm/h größer ist als bei 1050 °C (50 nm/h).

Abbildung 3.6 zeigt die Wachstumsraten und -effizienzen in Abhängigkeit von dem Reaktordruck. Während von 60 mbar auf 100 mbar auch der Gesamtfluss durch den Reaktor von 361/min auf 601/min erhöht wurde, blieb dieser zwischen 100 mbar und 200 mbar konstant. Dementsprechend sind sowohl die Partialdrücke der Gruppe-III- und Gruppe-V-Präkursoren als auch die Residenzzeiten im Reaktor zwischen 60 mbar und 100 mbar konstant, während sie zwischen 100 mbar und 200 mbar ansteigen. Steigende Residenzzeiten und Partialdrücke verstärken Gasphasenreaktionen [144] und erklären den Abfall der AlN- und GaN-Wachstumseffizienz bei höheren Drücken. Im Gegensatz dazu sorgt das Fehlen dieser Einflüsse im Zusammenspiel mit dem verringerten TMAI-Fluss für den

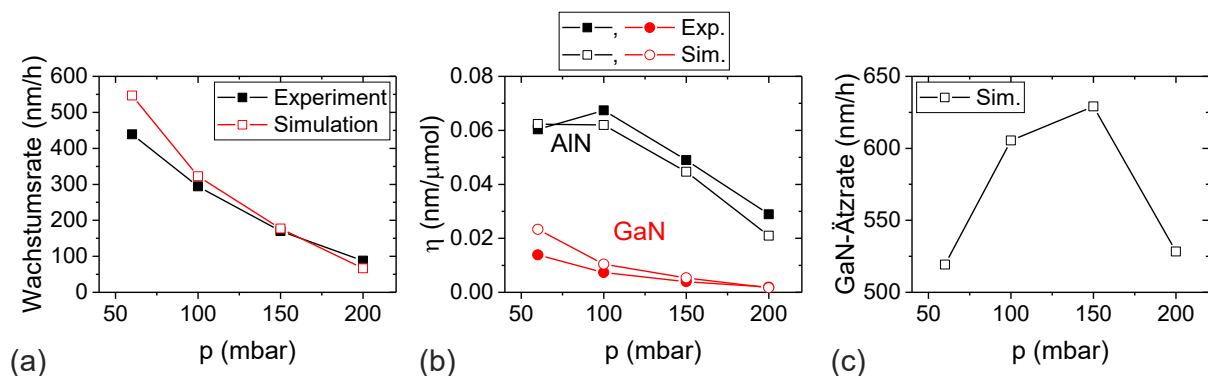


Abbildung 3.6.: Experimentell ermittelte und aus Simulationen berechnete **(a)** Wachstumsraten, **(b)** Wachstumseffizienzen und **(c)** die berechnete GaN-Ätzrate in Abhängigkeit vom Reaktordruck. (Simulationen von Dr. Anna Lobanova, STR.)

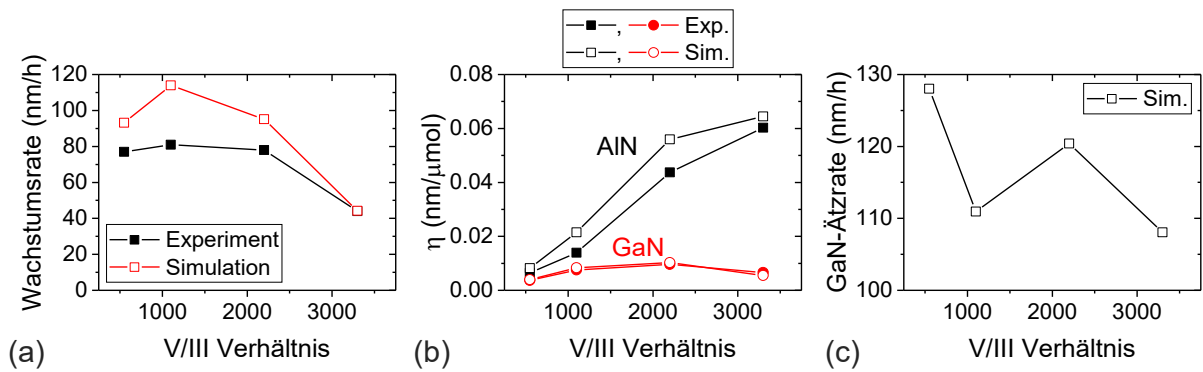


Abbildung 3.7.: Experimentell ermittelte und aus Simulationen berechnete **(a)** Wachstumsraten, **(b)** Wachstumseffizienzen und **(c)** die berechnete GaN-Ätzzrate in Abhängigkeit vom V/III-Verhältnis (über die Flüsse der Metallorganika variiert). (Simulationen von Dr. Anna Lobanova, STR.)

leichten Anstieg von η_{AlN} zwischen 60 mbar und 100 mbar. Das Absinken von η_{GaIn} in diesem Bereich wird durch die steigende GaN-Ätzzrate verursacht, die sich wiederum aus dem erhöhten H_2 -Fluss ergibt. Die weitere Erhöhung des Drucks bei konstantem H_2 -Fluss verringert die Desorption des gelösten Ga von der Kristalloberfläche und senkt so die Ätzzrate bei 200 mbar wieder auf den Anfangswert. Es ergibt sich schlussendlich eine mit steigendem Druck stark abfallende AlGaIn-Wachstumsrate, die 90 % (100 mbar) bis 25 % (200 mbar) der im Transportlimit möglichen Werte erreicht.

In Abbildung 3.7 sind analog zum vorigen Abschnitt die Wachstumsraten und -effizienzen in Abhängigkeit vom V/III-Verhältnis dargestellt. Es sei daran erinnert, dass das V/III-Verhältnis über die TMAI- und TMGa-Flüsse gesteuert wurde, während der NH_3 -Fluss konstant gehalten wurde. Obwohl die Metallorganika-Flüsse von 244 $\mu\text{mol}/\text{min}$ auf 41 $\mu\text{mol}/\text{min}$ gesenkt wurden, variiert die AlGaIn-Wachstumsrate nur geringfügig. Die Wachstumseffizienz nimmt also mit steigendem V/III zu und beträgt bei einem V/III-Verhältnis von 3300 97 % des Transportlimits. Die Ursache hierfür liegt hauptsächlich in der stark ansteigenden AlN-Wachstumseffizienz, da durch den sinkenden TMAI-Fluss Partikelbildung in der Gasphase massiv unterdrückt wird und bei den höchsten V/III-Verhältnissen quasi keine Rolle mehr spielt. η_{GaIn} variiert hingegen kaum und zeigt bei einem V/III-Verhältnis von 2200 ein schwach ausgeprägtes Maximum um anschließend leicht abzufallen. Ursächlich für den anfänglichen Anstieg ist wie bei η_{AlN} die Verringerung der parasitären Gasphasenreaktionen während der leichte Abfall durch den verstärkten Einfluss der H_2 -Ätzzung erklärt werden kann. Das nichtmonotone Verhalten der GaN-Ätzzrate ist auf deren Abhängigkeit von der Al- und Ga-Versorgung der Kristalloberfläche zurückzuführen, welche wiederum durch die TMAI- und TMGa-Flüsse, aber auch durch die Gasphasenreaktionen beeinflusst wird. Der Einfluss der Ätzzrate auf η_{GaIn} ist daher nicht leicht erkennbar.

Abschließend lassen sich aus den analysierten experimentellen und simulierten Daten folgende Schlussfolgerungen für das AlGaIn-Wachstum im verwendeten Planetenreaktor ziehen:

- Die durchgeführten Simulationen des Wachstumsprozesses führen zu qualitativ und quantitativ mit dem Experiment gut übereinstimmenden Daten und sind ein wichtiges Hilfsmittel zum Verständnis des vorliegenden Datensatzes.

- AlGa_N-Partikelbildung in der Gasphase und das Ätzen von bereits in den Kristall eingebautem Ga durch NH_3 und H_2 bilden die Hauptursachen für eine Verringerung der Wachstumsraten und -effizienzen.
- Erhöhte Metallorganika-Flüsse, Reaktordrücke und Temperaturen verstärken die Partikelbildung, sodass die Wachstumsraten im untersuchten Parameterbereich zwischen 10 % (1050 °C, 200 mbar, V/III 550) und 97 % (1050 °C, 200 mbar, V/III 3300) der theoretisch möglichen Wachstumsrate im Transportlimit variieren.
- Aufgrund des massiven Einflusses der Gasphasenpartikelbildung führen geringere Präkursorflüsse teilweise zu höheren Wachstumsraten, sodass eine Optimierung der Wachstumsparameter insbesondere für industrielle Anwendungen empfehlenswert ist. Dabei ist selbstverständlich der Einfluss der Wachstumsbedingungen auf andere Bauelementeigenschaften zu berücksichtigen.

3.2. Der Siliziumhintergrund in undotiertem $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$

Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit der Hintergrundkonzentration von Silizium, Sauerstoff und Kohlenstoff in nominell undotiertem $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$, welches bei den in Tabelle 3.1 aufgelisteten Bedingungen gewachsen wurde. Die Konzentration der Fremdatome wurde über Sekundärionenmassenspektrometrie (SIMS) ermittelt. Aus Effizienzgründen wurden jedoch nicht die in Abschnitt 3.1 diskutierten Proben verwendet. Stattdessen wurden auf planaren Templates drei neue Proben gewachsen, die jeweils vier 120 nm dicke $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten getrennt durch ca. 30 nm dicke AlN-Markerschichten enthalten und mit einer 100 nm dicken AlN-Deckschicht abgeschlossen sind. Vor der ersten AlGa_N-Schicht wurden 100 nm AlN als Pufferschicht auf dem Template gewachsen. Zwischen den vier AlGa_N-Schichten wurde jeweils entweder die Temperatur, der Druck oder das V/III-Verhältnis variiert.

Kohlenstoff und Sauerstoff bilden Zentren für nichtstrahlende Rekombination [149–151] oder für strahlende Rekombination bei unerwünschten Wellenlängen, häufig Defektlumineszenz genannt [152, 153]. Silizium wird typischerweise als Donator zur n-Dotierung verwendet. In p-dotiertem Material wirkt es kompensierend und ist daher unerwünscht. Es wurde außerdem gezeigt, dass geringe Si-Konzentrationen die Konzentration von Gruppe-III-Vakanzen (V_{III}) verringern können [154] und zu einem Abknicken von Versetzungen führen [155] während hohe Si-Konzentrationen die Materialqualität durch Aufrauung verschlechtern [156]. Aus diesen Tatsachen ergibt sich, dass die Hintergrunddotierung mit Silizium, Kohlenstoff und Sauerstoff in nominell undotiertem AlGa_N ein wichtiger Parameter zur Einstellung der gewünschten Material- und Bauelementeigenschaften ist. Die Wachstumsbedingungen der $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten sowie die gemessenen Fremdatomkonzentrationen sind in Tabelle 3.2 dargestellt. Die Kohlenstoffkonzentration liegt für alle Wachstumsbedingungen unterhalb der Auflösungsgrenze von $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Für (Al)Ga_N wurde in der Literatur gezeigt, dass ein hoher Reaktordruck und eine hohe Wachstumstemperatur zu einer Verringerung des C-Einbaus führen [157–160]. Vergleicht man die Wachstumsbedingungen mit den hier gewählten, so entspricht die geringe Koh-

Tabelle 3.2.: Wachstumsbedingungen und mittels SIMS gemessene Konzentrationen von Silizium Si, Kohlenstoff C und Sauerstoff O in den 120 nm dicken $Al_{0.7}Ga_{0.3}N$ -Schichten der drei Proben T, P und V. Sofern Konzentrationen durch starke Gradienten in den SIMS-Profilen nicht eindeutig bestimmbar waren, sind diese als undef. (undefiniert) angegeben. (SIMS-Profile gemessen von RTG Mikroanalyse GmbH.)

Schicht	T (°C)	p (mbar)	V/III	Si (cm^{-3})	C (cm^{-3})	O (cm^{-3})
<u>Probe T</u>						
1	1050	200	550	9.6×10^{15}	$<1 \times 10^{17}$	3.2×10^{17}
2	1080	200	550	1.4×10^{16}	$<1 \times 10^{17}$	3.2×10^{17}
3	1110	200	550	4.7×10^{16}	$<1 \times 10^{17}$	3.7×10^{17}
4	1140	200	550	3.1×10^{17}	$<1 \times 10^{17}$	undef.
<u>Probe P</u>						
1	1140	200	550	4.3×10^{17}	$<1 \times 10^{17}$	undef.
2	1140	150	550	3.0×10^{17}	$<1 \times 10^{17}$	3.5×10^{17}
3	1140	100	550	2.4×10^{17}	$<1 \times 10^{17}$	3.5×10^{17}
4	1140	60	550	1.4×10^{17}	$<1 \times 10^{17}$	3.1×10^{17}
<u>Probe V</u>						
1	1050	200	550	undef.	$<1 \times 10^{17}$	4.0×10^{17}
2	1050	200	1100	9.6×10^{15}	$<1 \times 10^{17}$	4.0×10^{17}
3	1050	200	2200	1.4×10^{16}	$<1 \times 10^{17}$	3.8×10^{17}
4	1050	200	3300	4.0×10^{16}	$<1 \times 10^{17}$	4.0×10^{17}

lenstoffkonzentration durchaus den Erwartungen. Allerdings ist keine Veröffentlichung bekannt, die hoch Al-haltiges AlGaN untersucht, sodass ein direkter Vergleich der Ergebnisse nur begrenzt möglich ist. Die Sauerstoffkonzentration liegt bei allen untersuchten Wachstumsbedingungen zwischen $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, zeigt also keine starke Abhängigkeit von den Wachstumsbedingungen. Dies deckt sich mit Ergebnissen anderer Gruppen [157, 159, 160], wobei diese aufgrund des geringeren Al-Gehalts der untersuchten Proben größtenteils geringere Sauerstoffkonzentrationen berichten. Aufgrund der hohen Sauerstoffaffinität von AlGaN und Aluminium-haltigen Verbindungen im Allgemeinen steigt die Sauerstoffkonzentration mit steigendem Aluminiumgehalt stark an und liegt für AlN typischerweise oberhalb von 10^{18} cm^{-3} [157, 161–166].

Im Gegensatz zu C und O variiert die Siliziumkonzentration im untersuchten Wachstumsparameterbereich zwischen $9.6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ und $4.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Abbildung 3.8(a) zeigt, dass die Si-Konzentration mit steigender Wachstumstemperatur zunimmt. Davon ausgehend, dass dieser Abhängigkeit eine thermisch aktivierte Freisetzung des Siliziums zugrunde liegt, kann sie mit einer abgewandelten Arrhenius-Funktion

$$\text{Si} = A \times \exp\left(-\frac{E_A}{k_B T}\right) + \text{Si}_0 \quad (3.2)$$

gefittet werden, wobei E_A die Aktivierungsenergie ist, k_B die Boltzmannkonstante und T die Temperatur (der präexponentielle Vorfaktor A ist hier irrelevant). Si_0 beschreibt einen temperaturunabhängigen Anteil der Si-Konzentration, der in einer klassischen Arrhenius-

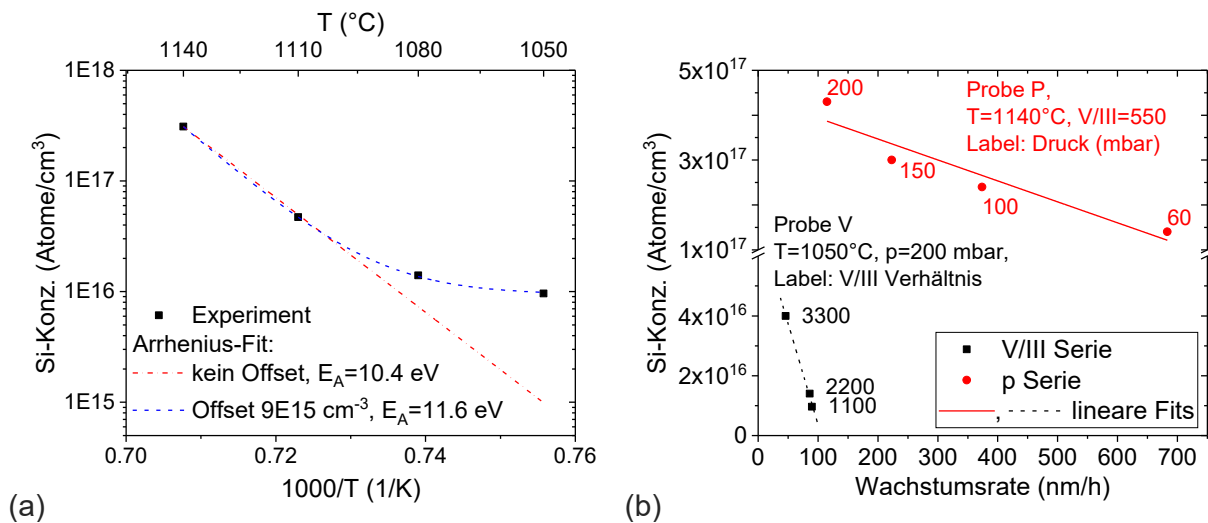


Abbildung 3.8.: (a) Abhängigkeit der Silizium-Konzentration in $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ von der Wachstumstemperatur geplotet über $1000/T$. Arrhenius-Fits ergeben eine Aktivierungsenergie von 10.4 eV bis 11.6 eV. (b) Silizium-Konzentration als Funktion der Wachstumsrate mit linearen Fits. Abbildung aus [167] mit Genehmigung von Elsevier.

Abhängigkeit nicht enthalten ist. Ohne diesen Offset ergibt sich nur für die beiden höchsten Wachstumstemperaturen eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten, während unter Berücksichtigung eines Offsets von $\text{Si}_0 = 9 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ die Abhängigkeit im gesamten untersuchten Temperaturbereich gut beschrieben wird. Physikalisch lässt sich dies durch das Vorhandensein von zwei unabhängigen Si-Quellen erklären, von denen nur bei einer der freigesetzte Siliziumfluss temperaturabhängig ist. In jedem Fall ist die ermittelte Aktivierungsenergie von dem Offset relativ unabhängig und liegt zwischen 10.4 eV und 11.6 eV.

In Abbildung 3.8(b) ist für die Proben P und V/III, die beide bei jeweils einer konstanten Temperatur gewachsen wurden, die Siliziumkonzentration in Abhängigkeit von der Wachstumsrate dargestellt. Es zeigt sich, dass trotz des variierenden Druckes bzw. V/III-Verhältnisses bei beiden Proben die Si-Konzentration mit zunehmender Wachstumsrate annähernd linear absinkt. Die geringen Unterschiede in Wachstumsrate und Si-Konzentration in Probe V bei V/III-Verhältnissen von 2200 und 1100 sollten bei dieser Interpretation berücksichtigt werden. Die Übereinstimmung mit dem Ergebnissen für Probe P spricht jedoch dafür, dass der Effekt real ist.

Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass die Quelle für den unbeabsichtigten Si-Einbau einen temperaturabhängigen, zeitlich konstanten Siliziumfluss erzeugt, sodass sich eine sinkende Si-Konzentration bei erhöhter Wachstumsrate ergibt. Dieselben Effekte wurde von Koleske et al. für GaN beobachtet und es wurde vermutet, dass die SiC-Beschichtung der Waferhalter die Quelle für das Silizium sein könnte [158]. Alternative Quellen sind

- die Quarzplatte am Reaktordeckel,
- der Quarzstern zwischen Gaseinlass und Waferhaltern/Satelliten,

- Adsorbiertes Silizium an Reaktoroberflächen aus vorhergehenden Wachstumsversuchen mit n-Dotierung,
- Adsorbiertes Silizium oder Si-haltige Verbindungen an der Quarzplatte am Reaktordeckel oder an einigen Reaktorteilen, die regelmäßig außerhalb des Reaktor der Umgebungsluft ausgesetzt ist,
- Adsorbiertes Silizium an der Oberfläche der $\text{AlN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ -Substrate.

Eine Verunreinigung der Epitaxieausgangsstoffe sowie ein undichtes Ventil an der Disilantdotierleitung werden als potentielle Si-Quellen von vornherein ausgeschlossen, da diese nicht von der Wachstumstemperatur abhängig sein sollten. Die Quarzplatte am Reaktordeckel erscheint als Quelle ebenfalls eher unwahrscheinlich. Es ist zwar bekannt, dass Quarz durch flüssiges Gallium angegriffen werden und Si freisetzen kann [168], allerdings zeigen die Reaktorsimulationen, dass nur TMGa und MMGa, aber kein atomares Gallium an den Reaktordeckel gelangt. Außerdem wird die Quarzplatte während des Wachstums durch eine aktive Kühlung auf einer Temperatur von 400°C gehalten. Dies ist nicht mit dem beobachteten Einfluss der Wachstumstemperatur vereinbar und verringert die Wahrscheinlichkeit einer Zerlegung des TMGa und MMGa zu atomarem Gallium. Somit kann die Quarzplatte ebenfalls als Hauptsiliziumquelle ausgeschlossen werden. Der Quarzstern auf dem Suszeptor hingegen ist deutlich heißer und auch wesentlich stärker den Variationen der Wachstumstemperatur ausgesetzt. Gleichzeitig deuten die Simulationen darauf hin, dass atomares Gallium in der Gasphase potentiell den Quarzstern erreichen kann (vgl. Abb. 2.4, S. 20). Falls dieser Prozess eine wesentliche Rolle bei der Freisetzung von Silizium spielt, so sollte die Siliziumkonzentration von der verfügbaren Galliummenge abhängen, d.h. vom TMGa-Fluss oder im Fall von desorbiertem Gallium von der GaN-Ätzrate. Der TMGa-Fluss nahm im Fall der hier untersuchten Proben mit steigender Temperatur und steigendem Druck ebenso wie die Siliziumkonzentration zu, mit steigendem V/III-Verhältnis zeigt sich aber ein entgegengesetzter Zusammenhang. Die GaN-Ätzrate nimmt passend zum Siliziumeinbau mit steigender Temperatur stark zu, zeigt aber eine nichtmonotone Abhängigkeit von Druck und V/III-Verhältnis, was nicht mit dem beobachteten Trend der Siliziumkonzentration übereinstimmt. Der Quarzstern kann also nicht eindeutig als Si-Quelle ausgeschlossen werden, es ergibt sich aber kein konsistentes Bild, welches alle Ergebnisse erklären könnte.

Um die SiC-Beschichtung der Satelliten als potentielle Quelle näher zu untersuchen, wurde in einem ersten Versuch einer der SiC-beschichteten Satelliten gegen einen TaC-beschichteten ausgetauscht. Anschließend wurden gleichzeitig zwei Wafer (einer auf dem TaC-, einer auf einem SiC-beschichteten Satelliten) mit jeweils zwei AlGa_N-Schichten bei unterschiedlichen Wachstumstemperaturen (Bedingungen T1 und T4) überwachsen und der Si-Gehalt in den Schichten mittels SIMS bestimmt.

Obwohl die AlGa_N-Schichten nominell bei denselben Bedingungen wie T1 und T4 gewachsen wurden (vgl. Tabellen 3.1, 3.2), lag der Al-Gehalt in der auf dem SiC-Satelliten gewachsenen Probe nicht bei den angestrebten 70%, sondern bei 62 bzw. 66%. Potentielle Ursachen hierfür könnten ein anderer Belegungszustand des Reaktors oder die durch parasitäre Abscheidung verursachte Veränderung der Transmissivität der Sichtfenster,

durch die die Prozess- und Wafertemperatur während des Wachstums bestimmt werden, sein. Die Si-Konzentration in den Schichten dieser Probe war doppelt so hoch, wie nach den Ergebnisse in Tabelle 3.2 zu erwarten gewesen wäre. Die genaue Ursache hierfür ist nicht geklärt. Möglicherweise muss eine Variation in dieser Größenordnung beim Vergleich von zu verschiedenen Zeitpunkten gewachsenen Proben berücksichtigt werden.

Für die auf dem TaC-beschichteten Satelliten gewachsenen Proben ergibt sich eine Schwierigkeit in der Interpretation der Ergebnisse daraus, dass TaC eine geringere Emissivität aufweist als SiC. Dies führt dazu, dass bei der gleichen Reaktortemperatur ein TaC-Satellit (und ein Wafer auf diesem) eine höhere Temperatur aufweist als ein SiC-Satellit. Hinzu kommt, dass die Satellitentemperatur bei TaC-Beschichtung mit dem verwendeten EpiTT-Messgerät nicht direkt gemessen werden kann, da die notwendige Emissivitätskorrektur nicht in der Software implementiert ist. Um dennoch die für den Vergleich der Si-Gehalte relevante Wafertemperatur bestimmen zu können, wurde der Al-Gehalt beider Proben mittels HRXRD ω -2 θ -Scans bestimmt. Zusätzlich wurde über Simulationen des Wachstumsprozesses, deren Validität in Abschnitt 3.1 gezeigt wurde, die Abhängigkeit der Materialzusammensetzung von der Wafertemperatur ermittelt. Durch Vergleich mit der über HRXRD gemessenen Zusammensetzung lässt sich so die reale Wachstumstemperatur nachträglich bestimmen.

Tabelle 3.3.: Temperatur T, Druck p und V/III Verhältnis sowie Wachstumsrate GR, Al-Gehalt x und Si-Konzentration für die zwei AlGa_N-Schichten der bei identischen Bedingungen auf einem SiC- und einem TaC-beschichteten Satelliten überwachsenen Wafer. Mit (*) gekennzeichnete Wachstumstemperaturen sind mittels LayTec EpiTT in-situ gemessen, mit (**) gekennzeichnete Temperaturen wurden aus Simulationen und dem Al-Gehalt errechnet. (SIMS-Profil gemessen von RTG Mikroanalyse GmbH.)

Probe	Schicht	T (°C)	p (mbar)	V/III	GR (nm/h)	x	Si (cm ⁻³)
SiC	1	1050*	200	550	87	0.62	2.3×10^{16}
SiC	2	1140*	200	550	109	0.66	7.2×10^{17}
TaC	1	1103**	200	550	60	0.77	4.5×10^{16}
TaC	2	1215**	200	550	78	0.82	1.6×10^{18}

Die Daten für beide Schichten beider Proben sind in Tabelle 3.3 aufgeführt. Abbildung 3.9 zeigt die Si-Konzentrationen aufgetragen über der Wafertemperatur beim Wachstum. Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass bei identischer Satellitentemperatur auf einem SiC-beschichteten Satelliten mehr Silizium in das AlGa_N eingebaut werden würde als auf einem TaC-beschichteten Satelliten. Dies ist ein Indiz dafür, dass die SiC-Beschichtung tatsächlich die Quelle für den unbeabsichtigten Si-Einbau während des Wachstums ist. Wäre adsorbiertes Silizium im Reaktor die Quelle, so wäre keine starke Abhängigkeit des Si-Einbaus von der Beschichtung des Satelliten zu erwarten. Auch der Quarzstern als Si-Quelle sollte relativ unabhängig von der Beschichtung eines einzelnen Satelliten sein. Allerdings führt die unterschiedliche Emissivität und damit Temperatur der beiden Beschichtungen auch zu Unterschieden in der Wachstumsrate und Zusammensetzung der AlGa_N-Schichten. Wachstumsrate und -temperatur wiederum beeinflussen beide den Si-Einbau (vgl. Abb. 3.8) und auch ein Einfluss des Al-Gehalts kann nicht ausgeschlossen werden. Aus diesen

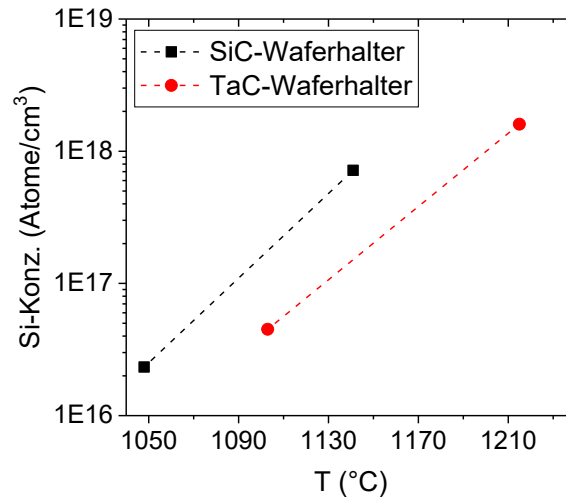


Abbildung 3.9.: Mittels SIMS gemessene Si-Konzentrationen in nominell undotierten AlGaIn -Schichten, die gleichzeitig auf zwei Wafern abgeschieden wurden, wobei ein Wafer auf einem SiC-beschichteten Satelliten lag und der andere auf einem TaC-beschichteten.

Gründen sind eindeutige Schlussfolgerungen zum Einfluss der Beschichtungen auf die Si-Konzentration hier nicht möglich.

Um die Anzahl der freien Parameter zu verringern, bietet sich der Vergleich von binären AlN -Schichten an. Dies hat den Vorteil, dass im binären Material keine Zusammensetzungsschwankungen auftreten können und dass die Wachstumsrate von AlN im hier betrachteten Temperaturbereich kaum von der Temperatur abhängt. Es wurden daher mittels SIMS zwei AlN -Schichten verglichen, die in separaten Wachstumsversuchen bei nominell identischen Wachstumsbedingungen (Reaktortemperatur 1195 °C, Druck 50 mbar, V/III 30) auf Saphir gewachsen wurden, wobei bei einer Probe nur SiC-beschichtete Waferhalter verwendet wurden, während bei der anderen Probe nur TaC-beschichtete Satelliten genutzt wurden. Da die Proben nicht speziell für diese Untersuchung gewachsen wurden, unterscheidet sich die Dicke der AlN -Schichten. Sie beträgt einmal 0.5 μm (auf TaC) und einmal 1 μm (auf SiC). Außerdem wird der Quarzstern im TaC-Setup nicht verwendet, da dieses für hohe Wachstumstemperaturen ausgelegt ist. Die SIMS-Profile beider Proben sind in Abbildung 3.10 zu sehen. Zunächst fällt auf, dass die Si-Profile deutliche Peaks an der $\text{AlN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ -Grenzfläche sowie an den Probenoberflächen zeigen. Beide Peaks werden durch Silizium und Silizium-haltige Verbindungen in der Umgebungsluft verursacht, die sich während der Lagerung auf den Proben anlagern. Die unterschiedlichen Peakhöhen bei beiden Proben können daher mit unterschiedlichen Lagerungszeiten erklärt werden. Der Oberflächenpeak ist ebenfalls für den Abfall der Si-Konzentration in den ersten 100 nm (auf SiC) bzw. 500 nm (auf TaC) verantwortlich, da wie in Abschnitt 2.2.3 beschrieben bei der SIMS ein Teil des Signals immer durch Einschlag der Primärionen in die Seitenwände des Sputterlochs und die Probenoberfläche erzeugt wird. Mit zunehmender Sputtertiefe nimmt der Einfluss des störenden Oberflächensignals ab, sodass sich hier ein Absinken der gemessenen Si-Konzentration ergibt. Der Knick im Siliziumprofil der im SiC-Setup gewachsenen Probe bei ca. 0.6 μm ist mit hoher Wahrscheinlichkeit ein Messartefakt,

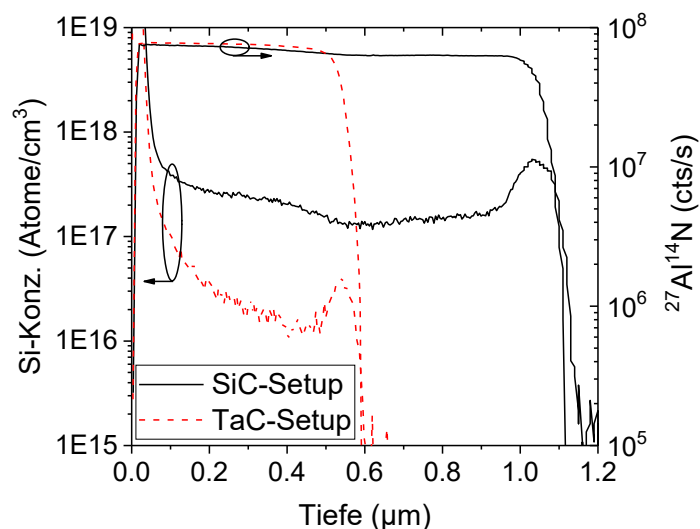


Abbildung 3.10.: SIMS-Profile der Si-Konzentration in zwei nominell undotierten AlN-Schichten, die unter identischen Wachstumsbedingungen hergestellt wurden mit dem Unterschied, dass für eine Probe nur TaC-beschichtete Satelliten verwendet wurden, während bei der anderen Probe nur SiC-beschichtete Waferhalter genutzt wurden. Die rechte y-Achse zeigt das Signal des $^{27}\text{Al}^{14}\text{N}$ -Moleküls, anhand dessen die AlN/ Al_2O_3 -Grenzfläche eindeutig identifiziert werden kann. Abbildung aus [167] mit Genehmigung von Elsevier.

welches auf Aufladung der Probe während der SIMS zurückzuführen ist. Ein weiteres Indiz dafür ist, dass der Knick ebenfalls im zugehörigen AlN-Signal zu sehen ist.

Der Vergleich der beiden Proben zeigt, dass die Si-Konzentration in der Probe, die unter Verwendung TaC-beschichteter Reaktorteile gewachsen wurde, ungefähr eine Größenordnung niedriger ist als in der im SiC-Setup gewachsenen Probe. Eine unterschiedlich starke Belegung des Reaktors mit Silizium in beiden Fällen erscheint unwahrscheinlich, da weder die TaC- noch die SiC-beschichteten Teile zuvor für das Wachstum von n-dotiertem Material verwendet wurden. Eine Gallium-induzierte Ätzung des Quarzsterns im SiC-Setup kann hier ausgeschlossen werden, da reines AlN gewachsen wurde. Die Daten bestätigen daher die Vermutung, dass die SiC-Beschichtung die Hauptquelle für die unbeabsichtigte Si-Dotierung während des AlGa_{0.3}N-Wachstums im untersuchten Wachstumsparameterbereich, d.h. vor allem bei Temperaturen oberhalb von 1050 °C ist.

Zwei Mechanismen für die Freisetzung des Silizium scheinen möglich. Zum einen ist bekannt, dass SiC unter Wasserstoff geätzt wird und flüssiges Silizium freisetzt [169]. Koleske et al. schlagen eine Erhöhung der Ätzrate durch die Beteiligung von Ammoniak vor [158], sodass sich entsprechend hohe Freisetzungsraten ergeben könnten. Alternativ wäre auch eine rein thermische Zerlegung des SiC möglich, wie sie zum Beispiel für die Synthese von Graphen aus kristallinem Siliziumkarbid im Ultrahochvakuum bei Temperaturen von 800 °C bis 1300 °C genutzt wird [170–173]. Dafür spricht, dass die in Abbildung 3.8(a) bestimmten Aktivierungsenergien von 10.4 eV bzw. 11.6 eV im typischen Bereich der publizierten Sublimationsenergien von Silizium aus Siliziumkarbid liegen (6 bis 12 eV nach [174–176]). Die Frage, welcher der beiden Effekte ursächlich ist, lässt sich aus den vorhandenen Daten nicht abschließend beantworten. Ein möglicher Ansatz wäre eine Probenserie unter Variation des Wasserstoffflusses. Es ist ebenfalls denkbar, dass die Ätzung des SiC durch Wasserstoff

für den temperaturunabhängigen Anteil der Si-Dotierung bei geringeren Temperaturen verantwortlich ist, während die thermische Zerlegung bei höheren Temperaturen relevant wird.

3.3. Einfluss auf Photolumineszenzeigenschaften

Im letzten Abschnitt dieses Kapitels wird der Einfluss der Wachstumsbedingungen auf die Photolumineszenzeigenschaften der $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten untersucht. Für die Messungen wurden die in Abschnitt 3.1 diskutierten und in Tabelle 3.1 aufgeführten Proben mit 130 nm dicken Einzelschichten verwendet. Sollen Rückschlüsse für optisch gepumpte Laserstrukturen gezogen werden, so wäre theoretisch die Untersuchung von Quantenfilmen sinnvoller. Um den Einfluss der Wachstumsbedingungen vergleichen zu können, ist jedoch insbesondere bei Quantenfilmen eine konstante Zusammensetzung und Dicke entscheidend, da bereits geringe Schwankungen dieser Größen aufgrund des Quantum Confined Stark Effect zu Unterschieden in der Emissionswellenlänge und Intensität führen. Die notwendige Genauigkeit bei Schichtdicke und Materialzusammensetzung war jedoch bei der verwendeten Vielzahl an Wachstumsparametern mit vertretbarem Aufwand nicht erreichbar, insbesondere aufgrund des parasitären Gasphasenreaktionen. Daher wurde hier auf dicke Einzelschichten zurückgegriffen, deren PL-Intensität und Emissionswellenlänge wesentlich unempfindlicher auf leichte Schwankungen in der Dicke ($d=(130 \pm 10)$ nm) und Zusammensetzung ($x=0.70 \pm 0.03$) reagieren.

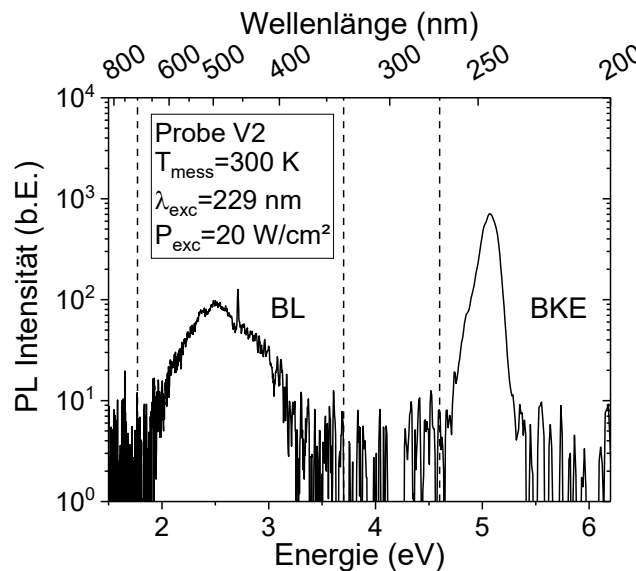


Abbildung 3.11.: Exemplarisches Raumtemperatur-PL-Spektrum einer bei 1050 °C, 200 mbar und einem V/III von 1100 gewachsenen 130 nm dicken $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schicht (vgl. Parametersatz V2 in Tab. 3.1). Die gestrichelten Linien begrenzen die spektralen Bereiche der Defektlumineszenz (DL, 2.7 eV) und der Bandkantenlumineszenz (BKL, 5.2 eV). Der Peak bei 2.71 eV wird durch die zweite Ordnung des Anregungslasers erzeugt. (PL-Messung durchgeführt von Dr. Carsten Netzel.)

Abbildung 3.11 zeigt ein für die untersuchten Proben typisches Photolumineszenzspektrum aufgenommen bei 300 K. Neben der Bandkantenemission (BKE) bei 5.2 eV (240 nm) ist eine breite Lumineszenzbande im Bereich zwischen 1.8 und 3.7 eV (335–690 nm) vorhanden, die durch strahlende Rekombination unter Beteiligung von Defekten verursacht wird. Als Ursache für diese Defektlumineszenz (DL) wird in der Literatur die Rekombination zwischen einem tiefen Akzeptorzustand, vermutlich (V_{III} -Komplex)²⁻ oder V_{III} ³⁻, und entweder einem flachen Donator (Si, O) [124, 126] oder einem Loch im Valenzband [177] diskutiert, wobei aufgrund der spektralen Breite nicht auszuschließen ist, dass mehrere der genannten Prozesse beteiligt sind.

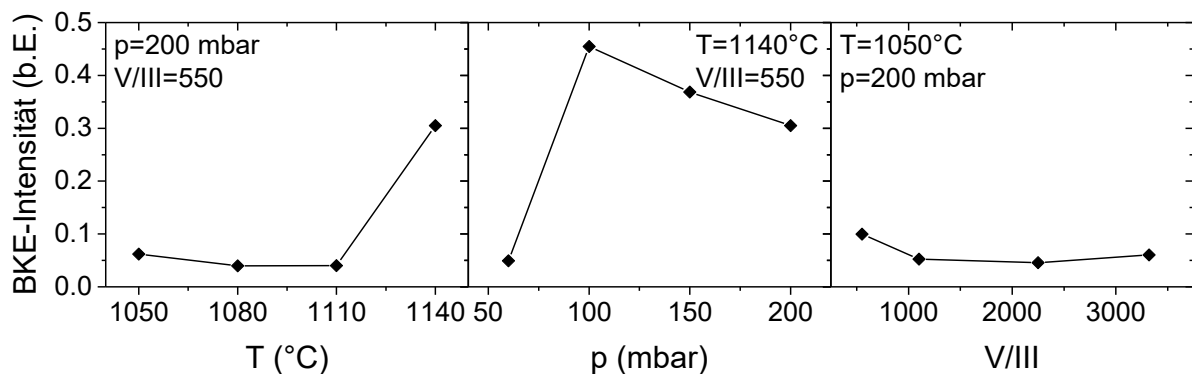


Abbildung 3.12.: Integrierte PL-Intensität der Bandkantenemission der 130 nm dicken $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten bei Raumtemperatur aufgetragen über Wachstumstemperatur T, -druck p und V/III-Verhältnis. (PL-Messungen durchgeführt von Dr. Carsten Netzel.)

In Abbildung 3.12 ist die integrierte Intensität der BKE bei 300 K über den variierten Wachstumsparametern dargestellt. Für eine Wachstumstemperatur von 1140 °C sowie für Reaktordrücke zwischen 100 und 200 mbar zeigt sich eine deutlich erhöhte PL-Intensität. Im Gegensatz dazu ergab sich für alle bei 1050 °C und 200 mbar untersuchten V/III-Verhältnisse eine relative geringe BKE-Intensität. Klare Trends sind zunächst nicht erkennbar. In Abschnitt 3.2 wurde jedoch bereits gezeigt, dass die Wachstumsbedingungen den Siliziumgehalt in den nominell undotierten Schichten stark beeinflussen. Unter der Annahme, dass die unbekannten Silizium-Konzentrationen in den AlGaIn-Einzelschichten ungefähr mit den gemessenen Silizium-Konzentrationen in den unter identischen Bedingungen gewachsenen SIMS-Proben übereinstimmen (Tab. 3.2), kann die Korrelation zwischen Si-Konzentration und PL-Intensität untersucht werden.

In Abbildung 3.13 ist die integrierte Intensität von BKE und DL bei 10 K und bei Raumtemperatur über der Si-Konzentration aufgetragen. Bei 10 K dominiert die Bandkantenemission das Spektrum, die aufgrund der bei geringen Temperaturen stark unterdrückten nichtstrahlenden Prozesse deutlich heller ist als bei Raumtemperatur. Die Intensität des BKE-Peaks nimmt allerdings mit steigender Si-Konzentration leicht ab, insbesondere oberhalb von $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, d.h. Ladungsträger rekombinieren entweder verstärkt nichtstrahlend oder über andere strahlende Übergänge. Passend zur zweiten Option steigt die Intensität der DL mit der Si-Konzentration leicht an. Diese Korrelation stützt auch die Annahme, dass der entsprechende DL-Rekombinationsprozess unter Beteiligung von Silizium stattfindet

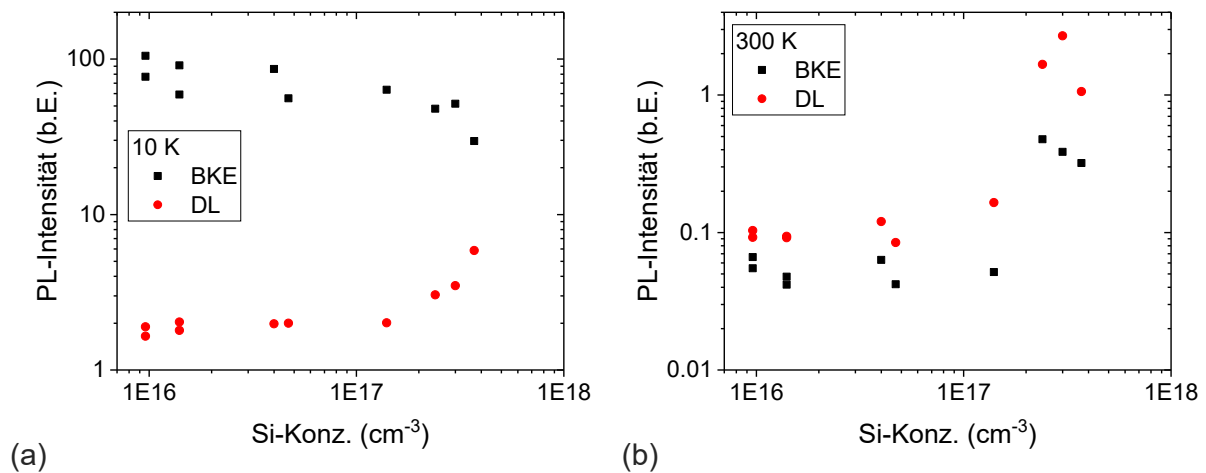


Abbildung 3.13.: Integrierte PL-Intensitäten der Bandkantenemission (BKE) und der Defektlumineszenz (DL) aller AlGaIn-Einzelschichten (Tab.3.1, Abb. 3.12) aufgetragen über der Si-Konzentration gemessen in den unter identischen Bedingungen gewachsenen SIMS-Proben (Tab. 3.2). Links die Intensitäten bei 10 K, rechts bei 300 K. (PL-Messungen durchgeführt von Dr. Carsten Netzel.)

[124, 126]. Der Anstieg der Defektlumineszenz ist allerdings nicht stark genug, um die sinkende Intensität der BKE vollständig auszugleichen. Zwei Erklärungen sind denkbar

- **Entweder** nichtstrahlende Rekombinationsprozesse nehmen trotz der geringen Probentemperatur mit zunehmender Siliziumkonzentration zu. In diesem Fall dürfte die interne Quanteneffizienz der Proben nicht berechnet werden, indem die PL-Intensität bei 300 K durch die PL-Intensität bei 10 K geteilt wird, da diese Berechnungsmethode annimmt, dass die IQE bei 10 K gleich Eins ist. Wäre dies der Fall, sollten aber im Gegensatz zum experimentellen Befund alle Proben bei 10 K unter identischen Anregungsbedingungen dieselbe PL-Intensität haben, da die Schichtstrukturen identisch sind.
- **Oder** die Detektionseffizienz von BKE und DL ist unterschiedlich. Dies ist allein schon durch die Dispersivität der Optiken gegeben. Die Justage des Aufbaus, sodass eine möglichst hohe BKE gemessen wird, führt damit unweigerlich dazu, dass eine geringere DL-Intensität detektiert wird. Unterschiede in der optischen Polarisierung von DL und BKE könnten ebenfalls vorhanden sein und würden zu unterschiedlichen Auskoppel-effizienzen führen. Die Unterschiede führen dazu, dass die detektierte Intensität der BKE stärker abfallen würde als die detektierte Intensität der DL ansteigt, selbst wenn sich im Halbleiter nur das Verhältnis zwischen diesen beiden Rekombinationsprozessen verschiebt, ohne dass nichtstrahlende Rekombination auftritt (vgl. Abschnitt 2.2.4).

Da eine Veränderung der nichtstrahlenden Rekombinationsraten bei 10 K nicht gänzlich ausgeschlossen werden kann, werden auch bei Raumtemperatur die PL-Intensitäten und nicht die IQEs verglichen. Bei 300 K zeigen BKE und Defektlumineszenz ein ähnliches Verhalten mit einer annähernd konstanten Intensität bis zu einer Si-Konzentration von $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ gefolgt von einem steilen Anstieg um ca. eine Größenordnung. Da sowohl bei

10 K als auch bei Raumtemperatur die Intensität der DL mit der Siliziumkonzentration ansteigt, ist der Übergang zwischen einem tiefen Akzeptor und Silizium [124, 126] deutlich wahrscheinlicher als der ebenfalls als Ursache diskutierte Übergang zwischen einem tiefen Akzeptor und einem Loch im Valenzband [177].

Für den Anstieg der BKE-Intensität bei Raumtemperatur bieten sich vier mögliche Ursachen an. Zum einen haben Uedono et al. und Chichibu et al. mittels Positronen-Annihilations-Spektroskopie gezeigt, dass moderate Si-Konzentrationen die Dichte von Gruppe-III-Vakanzen (V_{III}) verringern und so die PL-Intensität erhöhen können [154, 178]. Die größte Verbesserung der PL-IQE wurde für eine Si-Konzentration von $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ demonstriert, während sich für höhere Si-Konzentrationen ein Abfall der PL-IQE ergab. Abbildung 3.14(a) zeigt, dass die von Chichibu et al. veröffentlichten Daten mit den hier präsentieren qualitativ gut übereinstimmen, wobei der Abfall bei höheren Dotierkonzentrationen nicht beobachtet werden kann, da diese nicht realisiert wurden. Falls die nichtstrahlende Rekombination bei 10 K vernachlässigbar ist, sollte die Verringerung der V_{III} bei dieser Temperatur keinen Einfluss auf die Intensität der BKE haben. Hat die nichtstrahlende Rekombination allerdings einen signifikanten Einfluss, so sollte eine geringere V_{III} Dichte auch bei 10 K zu einem Anstieg der Intensität mit zunehmender Siliziumkonzentration führen. Dass die 10 K Intensität allerdings mit dem Siliziumgehalt abfällt, deutet eher darauf hin, dass der positive Effekt des Siliziums nur bei Raumtemperatur vorhanden ist und daher vermutlich von der Dichte freier Ladungsträger abhängt.

Grundlage für einen weiteren Erklärungsansatz ist, dass in einer einfachen Näherung die Lebensdauer der strahlenden Rekombination τ_{rad} direkt proportional zur Ladungsträgerkonzentration ist [179, S. 207f]:

$$\tau_{rad} = \frac{1}{B \times (n_0 + p_0 + \delta n)} \quad (3.3)$$

mit der Gleichgewichtselektronendichte n_0 , Gleichgewichtslochdichte p_0 , Überschusselektronendichte δn sowie dem Rekombinationskoeffizienten B . Eine Erhöhung von n_0 durch die Dotierung mit Silizium führt also zu einer erhöhten strahlenden Rekombinationsrate, sofern nicht gegenteilige Effekte überwiegen. Aus den strahlenden (τ_{rad}) und nichtstrahlenden (τ_{nr}) Lebensdauern kann die interne Quanteneffizienz über

$$IQE = \frac{\tau_{nr}}{\tau_{nr} + \tau_{rad}} \quad (3.4)$$

berechnet werden [180]. In Abbildung 3.14(b) ist diese berechnete IQE (für $\tau_{nr} = 140 \text{ ps}$ [133], $p_0 = 0 \text{ cm}^{-3}$, $\delta n = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, $B = 2 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [74]) zusammen mit den aus den experimentellen PL-Intensitäten bei 300 K und 10 K berechneten PL-IQEs dargestellt¹. Während die totale Änderung der IQE zwischen $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ungefähr mit den Berechnungen übereinstimmt, passt der stufenartige Anstieg bei $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ nicht zur Theorie. Es scheint daher unwahrscheinlich, dass die Erhöhung der strahlenden Rekombinationsrate durch die zusätzlichen freien Ladungsträger die dominierende Ursache für die erhöhte PL-Intensität ist.

¹Auch wenn die Berechnung der IQE über die PL-Intensitäten wie zuvor diskutiert hier möglicherweise fehlerbehaftet ist, da nichtstrahlende Rekombination bei 10 K nicht ausgeschlossen werden kann, wird zur besseren Vergleichbarkeit mit der Theorie hier dennoch die PL-IQE dargestellt

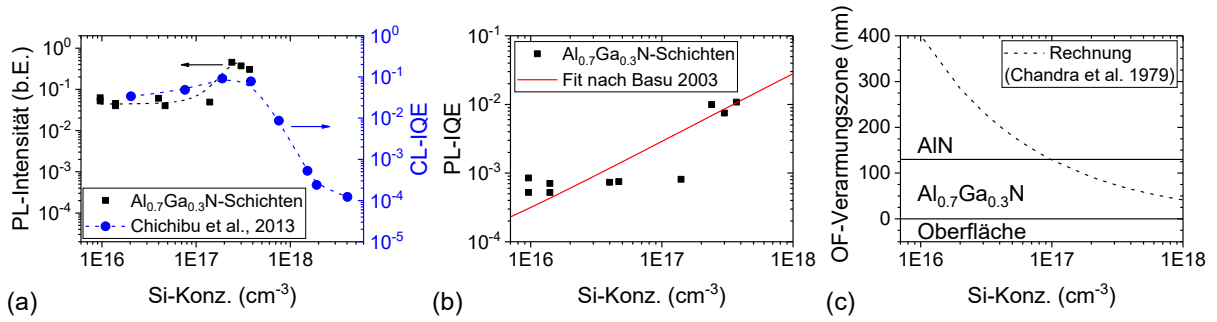


Abbildung 3.14.: (a) Vergleich der Raumtemperatur-PL-Intensität der hier untersuchten $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten mit Ergebnissen von Chichibu et al. [154], (b) Vergleich der aus den Intensitäten bei 300 K und 10 K berechneten PL-IQE mit dem durch freie-Ladungsträger-Effekte erwarteten Anstieg der PL-IQE [179, S. 207f], (c) Berechnete Ausdehnung der Verarmungszone an der Oberfläche der $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten [181] ausgehend von einem Oberflächenpotential von 1.9 eV [182].

Ein weiterer Effekt, über den die Dotierung die PL-Intensität beeinflussen kann, ist die Verringerung der Dicke der Verarmungszone an der Halbleiteroberfläche durch die Reduzierung des Oberflächenpotentials [183]. Ein sich von der Oberfläche in den Halbleiter erstreckendes Potential führt zu einer Verbiegung der Bänder und damit zu einer Trennung von Elektronen und Löchern. Werden die Ladungsträger getrennt, verringert dies jedoch die Wahrscheinlichkeit für strahlende Rekombination und damit die PL-Intensität. Unter der Annahme eines Oberflächenpotentials von 1.9 eV [182] ergibt sich nach [181] für eine Si-Konzentration von $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ eine 400 nm dicke Oberflächenverarmungszone (Abbildung 3.14(c)), die sich damit weit über die 130 nm dicke $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schicht hinaus erstreckt. Um die Dicke der Verarmungszone unter die der AlGaIn -Schicht zu reduzieren, ist eine Si-Konzentration von ca. $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ nötig. Dieser Effekt würde den sprunghaften Anstieg der PL-Intensität oberhalb von $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ erklären, da erst ab dieser Dotierung feldfreie Bereiche in den AlGaIn -Schichten vorhanden sind. Außerdem benötigt der Effekt freie Ladungsträger, sodass sich bei 10 K ein anderes Bild ergeben sollte als bei 300 K. Die Erklärung über Oberflächenpotentiale und die sich daraus ergebende Verarmungszone passt daher gut zu den experimentellen Ergebnissen.

Eine vierte mögliche Ursache für den beobachteten Anstieg der PL-Intensität mit der Si-Konzentration ist die verstärkte Bildung von Donator-gebundenen Exzitonen (Donator Bound Exciton – DBE). Damit würde sich mit zunehmender Siliziumkonzentration das Verhältnis von Exzitonen zu freien Elektronen und Löchern vergrößern und damit die nichtstrahlende Rekombinationsrate reduzieren, da gebundene Exzitonen nicht zu nichtstrahlenden Rekombinationszentren diffundieren können. Unglücklicherweise können diese im PL-Spektrum aufgrund der großen Halbwertsbreite der BKE nicht beobachtet werden. Es ist jedoch bekannt, dass in Bulk- AlGaIn die Bindungsenergie von DBEs bei ca. 28 meV liegt [184, 185], sodass bei Raumtemperatur noch ungefähr 50 % der DBEs vorhanden sein sollten. Ein Einfluss der DBEs bei Raumtemperatur scheint also durchaus möglich. Unter der Annahme, dass nichtstrahlende Rekombination bei 10 K vernachlässigt werden kann, sollte die Zunahme von DBEs bei dieser Temperatur keinen signifikanten Einfluss auf die Intensität haben. Ist die nichtstrahlende Rekombination allerdings relevant, so

sollten die DBEs entgegen der experimentellen Ergebnisse zu einem Intensitätsanstieg mit der Siliziumkonzentration führen. Die Tatsache, dass die Intensität bei 10 K sich genau entgegengesetzt zu den Raumtemperaturergebnissen verhält, deutet allerdings darauf hin, dass die DBEs hier nicht der dominierende Effekt sind. Die Abschirmung des Oberflächenpotentials scheint daher als die wahrscheinlichste Ursache für den beobachteten Intensitätsanstieg bei hohen Siliziumkonzentrationen, auch wenn eine abschließende eindeutige Identifikation hier nicht möglich ist.

3.4. Fazit

Die Untersuchungen dieses Kapitels haben gezeigt, dass die Wachstumsraten und -effizienzen beim Wachstum von $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten in dem verwendeten Planetenreaktor stark von der Temperatur, dem Druck und dem V/III-Verhältnis abhängen. Simulationen des Wachstums stimmen qualitativ und quantitativ gut mit den experimentellen Ergebnissen überein und zeigen, dass parasitäre Gasphasenreaktionen und die Ätzung von Gallium durch NH_3 und H_2 für die beobachteten Abhängigkeiten verantwortlich sind. Die Partikelbildung durch Gasphasenreaktionen wird insbesondere bei hohen Metallorganika-Flüssen, Reaktordrücken und -temperaturen verstärkt. Die Wachstumsraten variieren im untersuchten Parameterbereich zwischen 440 und 45 nm/h, was 10 bis 97 % der im Transportlimit möglichen Raten entspricht. Es sind damit prinzipiell alle untersuchten Wachstumsparameterkombination für das Wachstum von Quantenfilmen geeignet, wobei ein Druck von 60 mbar aufgrund der sehr hohen Wachstumsrate eher zu vermeiden ist, da durch die endlichen Schaltzeiten die Genauigkeit der Schichtdickenkontrolle limitiert ist. SIMS-Analysen der Proben zeigen eine deutliche Abhängigkeit der Konzentration von parasitär eingebautem Silizium von den Wachstumsparametern, während die Kohlenstoff- und Sauerstoffkonzentrationen konstant unterhalb der Nachweisgrenze von $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ bzw. bei $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ bis $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ liegen. Eine mit einer Arrhenius-Funktion beschreibbare Temperaturabhängigkeit und eine annähernd lineare Abhängigkeit von der Wachstumsrate deuten auf eine temperaturaktivierte Si-Quelle mit einem konstanten Fluss hin. Durch den Vergleich von AlGaIn - und AlIn -Schichten, die in Reaktorsetups mit SiC- und mit TaC-Beschichtungen gewachsen wurden, konnte die SiC-Beschichtung als Hauptquelle für das parasitär eingebaute Silizium identifiziert werden. Die wahrscheinlichsten Mechanismen für die Freisetzung sind die thermische Zerlegung des SiC oder die Ätzung durch Wasserstoff. Die Identifikation der SiC-Beschichtung als Siliziumquelle ist über den Fokus dieser Arbeit hinaus relevant, da derartige Beschichtungen in MOVPE-Reaktoren weit verbreitet sind. Die Ergebnisse werden außerdem in Kapitel 5 verwendet, um durch Wahl entsprechender Wachstumsbedingungen eine möglichst geringe Siliziumhintergrundkonzentration von ca. $6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ zu erzielen.

Die Photolumineszenzspektren der Proben werden von zwei Lumineszenzbanden bestimmt:

- der Bandkantenemission bei 5.2 eV,
- der breiten Defektlumineszenz (DL) zwischen 1.8 und 3.7 eV (335–690 nm), die zumindest teilweise von einer Donator-Akzeptor-Paar-Rekombination zwischen Silizium und $(\text{V}_{\text{III}}\text{-Komplex})^{2-}$ oder $\text{V}_{\text{III}}^{3-}$ erzeugt wird.

Die Abhängigkeit der Intensität beiden Banden von der Si-Konzentration wurde diskutiert, wobei das Anstieg der DL mit der Dotierung bei Raumtemperatur die vermutete Beteiligung von Silizium an den zugehörigen Übergängen stützt. Bei der Bandkantenemission wurden verschiedene Ursachen für den beobachteten Intensitätsanstieg mit der Si-Konzentration bei 300 K diskutiert. Die mit der Erhöhung der Dichte freier Ladungsträger einhergehende Verringerung der strahlenden Lebensdauer scheint als Erklärung aufgrund des beobachteten sprunghaften Intensitätsanstiegs unwahrscheinlich. Dagegen sind eine Verringerung der Gruppe-III-Vakanzen, das verstärkte Auftreten Donator-gebundener Exzitonen oder auch eine Abschirmung des Oberflächenpotentials potentiell geeignet, den Anstieg der Intensität mit der Siliziumkonzentration zu erklären. Das unterschiedliche Verhalten bei 10 K und bei 300 K sowie der sehr sprunghafte Intensitätsanstieg deuten allerdings am ehesten auf das Oberflächenpotential als Ursache hin, da sich erst bei einer Si-Konzentration von ca. $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ feldfreie Bereiche in den AlGaIn-Schichten ergeben, in denen Ladungsträger ohne trennendes Potential eine wesentlich höhere Rekombinationswahrscheinlichkeit haben. Abschließend muss konstatiert werden, dass eine eindeutige Erklärung der beobachteten Änderung der PL-Intensität mit der Si-Konzentration hier nicht geliefert werden kann. Die Fragestellung wird in Kapitel 5 erneut aufgegriffen und im Hinblick auf Photolumineszenz, Kathodolumineszenz sowie optisch gepumptes Lasing untersucht.

Kapitel 4.

Auswirkungen von Morphologie und Design auf die Lasereigenschaften

Nachdem im vorangegangenen Kapitel der Einfluss grundlegender Wachstumsparameter auf das Wachstum von $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten, den parasitären Einbau von Verunreinigungen sowie die Photolumineszenzeigenschaften dieser Schichten untersucht wurde, werden in diesem Kapitel die charakteristischen Eigenschaften von AlGa_N-Kantenemitterlasern auf AlN/Saphir-Templates analysiert. Besonderes Augenmerk liegt dabei zum einen auf dem Einfluss der Oberflächenmorphologie, die bei ELO-Templates stark vom Substratfehlschnitt abhängt, und Auswirkungen auf den Galliumeinbau sowie die Propagation von Versetzungen hat. Zum anderen wird der Einfluss des Heterostrukturdesigns auf die Lasereigenschaften untersucht. Da die Aluminiumgehalte der Schichten und die Wellenleiterdicke durch die Zielwellenlänge von ca. 240 nm und die Anforderungen an optische Wellenführung und Ladungsträgereinschluss bereits relativ stark festgelegt sind, wurden die Dicke und Anzahl der Quantenfilme sowie die Cap-Schichtdicke variiert.

In Abschnitt 4.1 wird zunächst auf die Eigenschaften der ersten im Rahmen dieser Dissertation gewachsenen Laserstrukturen eingegangen, anhand derer interessante Fragestellungen und potentielle Optimierungsmöglichkeiten für weitere Untersuchungen identifiziert werden. Abschnitt 4.2 beschäftigt sich anschließend mit dem Einfluss des Substrat-Fehlschnitts auf die morphologischen, kristallinen und optischen Eigenschaften der Laserstrukturen, während im letzten Abschnitt dieses Kapitels die Anzahl und Dicke der Quantenfilme in der aktiven Zone variiert und die Auswirkungen auf die Laserschwelle untersucht werden.

4.1. Ausgangslage

Ausgangspunkt für alle weiteren Untersuchungen an Laserstrukturen bildet eine Reihe von Laserproben mit nominell identischer Schichtstruktur, die bei drei verschiedenen Wachstumstemperaturen (Wafertemperatur 1060 °C, 1080 °C, 1100 °C) gewachsen wurden. Die Schichtstruktur ist in Tabelle 4.1 dargestellt. Um trotz der variierenden Temperatur identische Materialzusammensetzungen zu erreichen, wurde der TMGa-Fluss in den AlGa_N-Schichten angepasst, während der TMAI-Fluss konstant gehalten wurde. Bei allen Temperaturen wurde jeweils ein planares Template (500 nm AlN auf c-planarem Al_2O_3) und ein ELO-Template (5 μm AlN auf c-planarem Al_2O_3) überwachsen (bzgl. Templates vgl. Abschnitt 2.1.2). Die verwendeten Saphirsubstrate hatten einen nominellen Fehlschnitt von

Tabelle 4.1.: Schichtdicken und -zusammensetzungen der Laserstrukturen

Schicht	Dicke (nm)	Al-Gehalt
Cap	75.0	1.00
Wellenleiter	28.0	0.82
$3 \times \left\{ \begin{array}{l} \text{QW} \\ \text{QB} \end{array} \right.$	3.2	0.75
	8.0	0.82
Wellenleiter	20.0	0.82
Puffer	50.0	1.00
Template	>500.0	1.00

0.2° in m-Richtung, d.h. parallel zum Waferflat. Um die Vergleichbarkeit der Templates zu gewährleisten, wurden die Laserproben auf Vierteln desselben Templatewafers gewachsen. Bei 1080 °C wurde zusätzlich auf einem ELO-Template gewachsen, bei dem das Saphirsubstrat einen Fehlschnitt von 0.2° in a-Richtung aufwies, d.h. 60° zum Waferflat verdreht. Da die ELO-Streifen senkrecht zum Waferflat angeordnet sind, die Fehlschnittrichtungen aber die Ausrichtung der atomaren Stufen auf der Waferoberfläche beeinflussen, ergeben sich unterschiedliche Winkel zwischen den Oberflächenstufen beim Wachstum und der ELO-Strukturierung. Im Folgenden wird daher zunächst der Einfluss dieser Variation auf die Probenmorphologie untersucht, bevor die optischen Eigenschaften mittels Kathodolumineszenz und Photolumineszenz charakterisiert werden und die Lasereigenschaften der Proben unter optischer Anregung verglichen wird.

Abbildung 4.1 zeigt AFM-Aufnahmen der AlN/Saphir-Templates sowie der bei 1080 °C gewachsenen Laser-Heterostrukturen. Die Oberflächenmorphologie der Laserproben ist für alle drei Templatetypen identisch zur Templatemorphologie, d.h. die 200 nm dicke Heterostruktur mit Ga-Gehalten zwischen 18 und 25 % beeinflusst die Morphologie nur unwesentlich, was aufgrund der relativ geringen eingebauten Verspannung erwartbar war. Dieses Ergebnis ist für alle Laserstrukturen identisch, weshalb hier exemplarisch nur die bei 1080 °C gewachsenen Proben gezeigt werden. Auf dem planaren Template zeigen sich V-Pits mit einer Dichte von ca. $8 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$, welche sich an Schraubenversetzungen (Dichte laut HRXRD $1.5 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$) und Inversionsdomänen bilden können [187–189]. Davon abgesehen ist die Oberfläche glatt mit typischen doppelatomaren Stufen (Abb. 4.1(a, b)). Im Gegensatz dazu sind die Oberflächen auf den m-ELO-Templates frei von V-Pits, zeigen allerdings wellenförmige Undulationen mit einer Amplitude von ca. 6 nm, deren Abstand von 3.5 µm dem der Streifen der ELO-Strukturierung entspricht (Abb. 4.1(c, d)). Außerdem ist spiralförmiges Wachstum erkennbar, welches häufig um Schraubenversetzungen herum auftritt [126, 190]. Aus dem Verhältnis von der Amplitude zum Abstand der Undulationen lässt sich über einfache Trigonometrie ($\tan \theta = 6 \text{ nm}/3.5 \text{ µm}$) näherungsweise der Fehlschnittwinkel zu 0.1° berechnen. Dies ist deutlich weniger als die nominellen 0.2°, bei denen üblicherweise ein Aufeinanderlaufen von Stufen (Step Bunching) mit sich daraus ergebenden Stufenhöhen von bis zu 15 nm beobachtet wird [101, 191]. Es ist daher zu vermuten, dass bei den hier untersuchten Proben der reale Fehlschnitt deutlich geringer war als der nominell angegebene. Auf den a-verkippten ELO-Templates zeigen

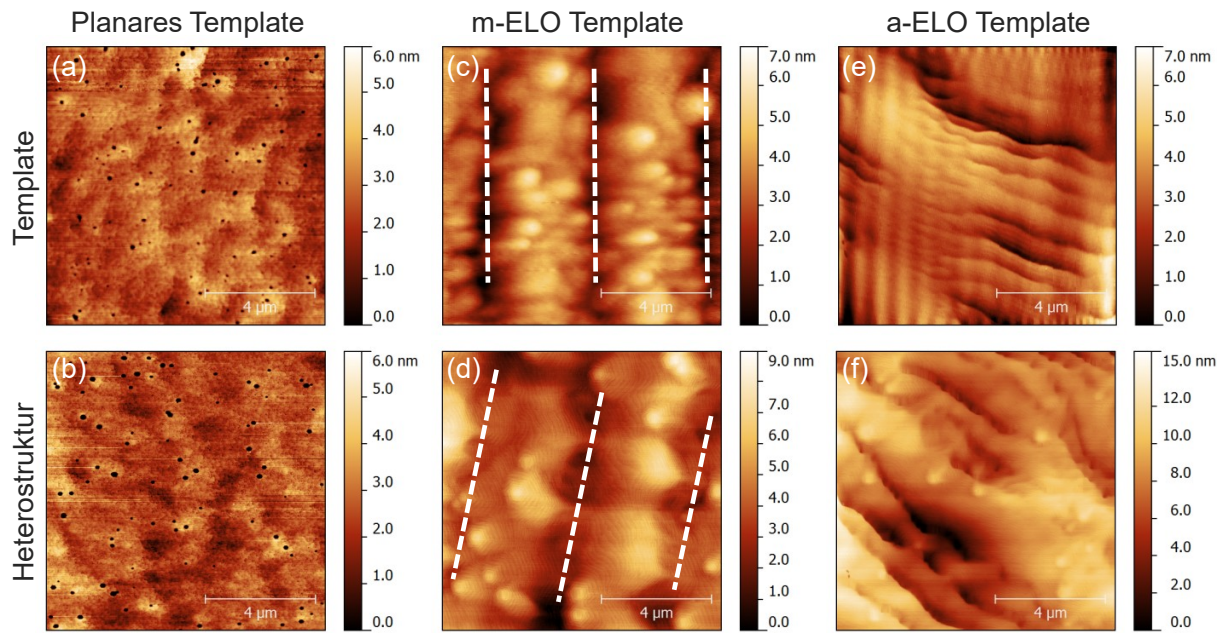


Abbildung 4.1.: Rasterkraftmikroskop-Aufnahmen der Oberflächen der verwendeten AlN/Saphir-Templates (oben) sowie der zugehörigen, bei 1080 °C gewachsenen Laserstrukturen (unten). Die weißen Linien deuten jeweils die Ausrichtung der ELO-Streifen an. (Abbildung aus [186].)

sich größere relativ glatte Bereiche unterbrochen von einzelnen abrupten Stufen mit Höhen von 6-10 nm. Durch den um 30° verdrehten Fehlschnitt sind die ELO-Streifen nicht mehr erkennbar. Vereinzelt tritt wie auf dem m-ELO Spiralwachstum auf (Abb. 4.1(e, f)).

Um den Einfluss der Probenmorphologie auf die Lumineszenzeigenschaften der Quantenfilme zu untersuchen, wurden spektral und räumlich aufgelöste Kathodolumineszenzmessungen durchgeführt. In Abbildung 4.2 sind Übersichtsspektren der bei 1080 °C gewachsenen Laserproben dargestellt. Obwohl die Proben gleichzeitig gewachsen wurden, variieren

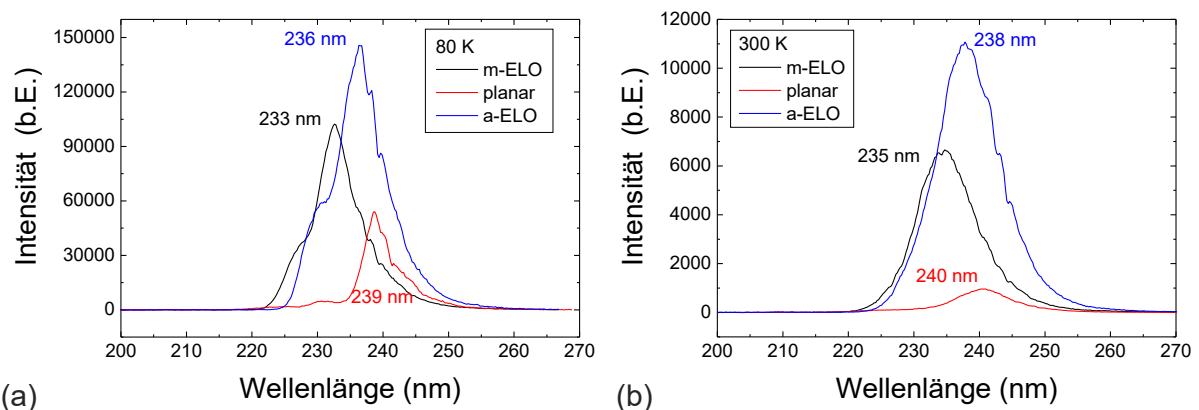


Abbildung 4.2.: Kathodolumineszenzspektren der bei 1080 °C auf den verschiedenen Templates gewachsenen Laserproben, integriert über einen $15 \times 15 \mu\text{m}$ großen Bereich, gemessen bei (a) 80 K und (b) 300 K. (Abbildung aus [186].)

die Emissionswellenlängen bei Raumtemperatur zwischen 235 und 240 nm. Ursache ist die unterschiedlich große Verspannung der ELO- und planaren Templates, die zu einer unterschiedlich großen Verkrümmung der Wafer führt. Je stärker die Wafer verkrümmt sind, desto mehr heben sie sich partiell vom Probenhalter im Reaktor ab. Dadurch ergeben sich Unterschiede in der Wachstumstemperatur an der Probenoberfläche, die wiederum zu Abweichungen im Galliumeinbau führen. Die planaren Templates sind beim Wachstum am stärksten verspannt und haben daher die geringste Oberflächentemperatur und den höchsten Ga-Einbau gefolgt von den a-ELO-Templates und den m-ELO-Templates.

Alle Spektren zeigen deutliche Abweichungen von der erwarteten Gaußverteilung. Bei 80 K treten bei kürzeren Wellenlängen die Peaks der Rekombination im Wellenleiter zutage während auf der langwelligen Seite der Quantenfilmmmission zusätzliche Peaks auftreten, die vermutlich auf Fabry-Perot-Interferenzen innerhalb der Schichtstruktur zurückzuführen sind. Sowohl bei 80 K als auch bei Raumtemperatur zeigen die Quantenfilme auf a-ELO die höchste Intensität gefolgt von denen auf m-ELO und auf den planaren Templates, bei denen aufgrund ihrer wesentlich höheren Versetzungsdichte von ca. 10^{10} cm^{-2} nichtstrahlende Rekombinationsprozesse verstärkt auftreten. Der Quotient aus Raumtemperatur- und Tieftemperatur-Intensität kann analog zur Photolumineszenz-IQE als Maß für die Materialqualität genutzt werden. Für die hier gezeigten Proben ergeben sich Effizienzen von 7.6 % (a-ELO), 6.5 % (m-ELO) und 1.8 % (planar). Die Probe auf a-ELO zeigt dabei gleichzeitig die größte spektrale Halbwertsbreite (ca. 1 nm höher als m-ELO). Potentielle Ursachen dafür sind z.B. Grenzflächenrauigkeiten [192] oder lokale Wellenlängenschwankungen aufgrund von Verspannung oder Inhomogenitäten in der Quantenfilmdicke/-zusammensetzung. Aufgrund der beobachteten Oberflächenmorphologie scheinen allerdings lokale Inhomogenitäten besonders wahrscheinlich. Um diese Vermutung zu überprüfen, wurde die räumliche Variation der Kathodolumineszenzspektren untersucht.

Abbildung 4.3(a) und (b) zeigen eine Sekundärelektronenaufnahme und die zugehörige Intensitätsverteilung der Kathodolumineszenz bei Raumtemperatur der bei 1080 °C auf dem m-ELO-Template gewachsenen Laserprobe. Der Bereich innerhalb des weißen Rechtecks wurde in 50×35 Pixel mit einem Abstand von 100 nm eingeteilt und es wurde für jeden Pixel ein Spektrum mit einer Integrationszeit von 0.5 s aufgenommen. Die Spektren zeigen eine gaußförmige Intensitätsverteilung, d.h. die asymmetrischen Spektren in Abbildung 4.2 ergeben sich aus der Überlagerung der symmetrischen Spektren. In Abbildung 4.3(c) und (d) sind die aus den Spektren extrahierten Verteilungen von Peakintensität und Peakwellenlänge dargestellt. Es zeigt sich, dass die Wellenlänge zwischen 227 und 232 nm variiert, wobei Bereiche mit langwelligerer Emission gleichzeitig eine höhere Intensität zeigen. Eine mögliche Erklärung für diesen Effekt ist die Diffusion von Ladungsträgern in die Bereiche mit geringerer Bandlücke. Dies setzt allerdings Diffusionslängen im Mikrometerbereich voraus. In der Literatur veröffentlichte Diffusionslängen sowohl für Nitrid-Volumenkristalle als auch für Quantenfilme liegen im Bereich von einigen Hundert Nanometern [193–195] bis zu mehreren Mikrometern [196, 197], widersprechen der Vermutung also nicht grundsätzlich. Auch eine für höhere Al-Gehalte stärkere TM-Polarisation könnte zu einer verringerten Abstrahlung in c-Richtung führen, der hier beobachtete Wellenlängenunterschied von 4 nm ist dafür aber zu gering [198, 199]. Die längere Emissionswellenlänge wird entweder durch eine lokal höhere Ga-Konzentration oder durch eine größere Quantenfilmdicke verursacht,

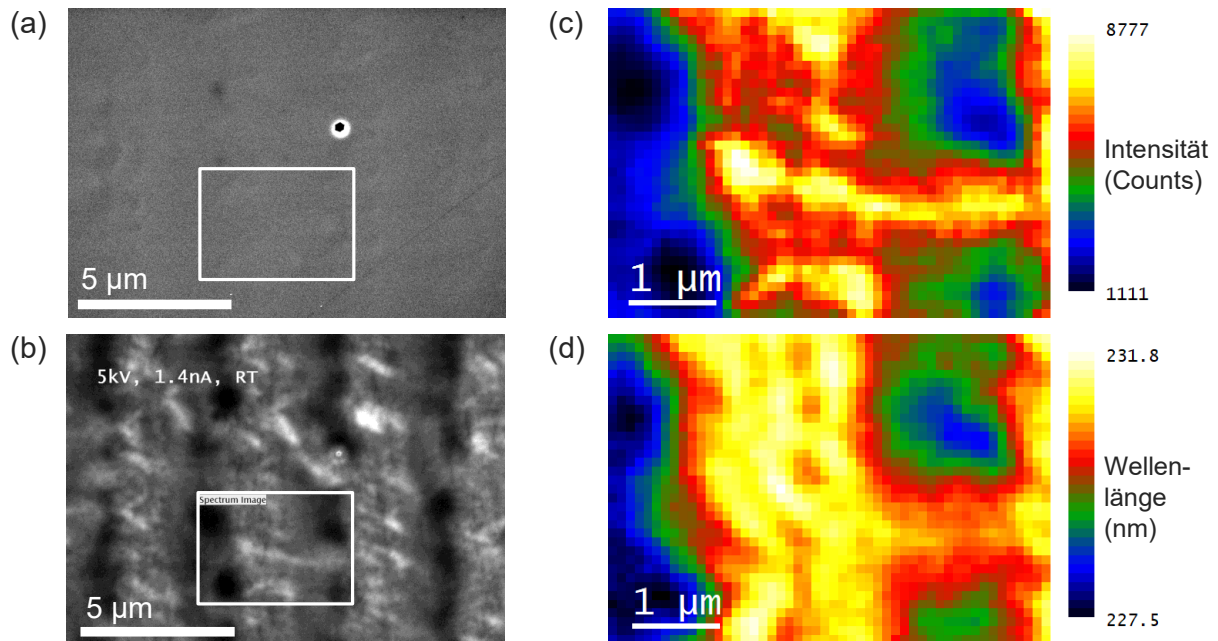


Abbildung 4.3.: (a) Sekundärelektronenbild der bei 1080 °C auf m-verkipptem ELO gewachsenen Laserstruktur aufgenommen bei 5 kV und 1.4 nA. (b) Kathodolumineszenzaufnahme desselben Bereichs bei 300 K. Das weiße Rechteck markiert den Bereich, innerhalb dessen die in (c) und (d) dargestellte Verteilung von Peakintensität und Peakwellenlänge bestimmt wurde. (Abbildung teilweise aus [186].)

möglicherweise auch durch eine Überlagerung von beidem, da ein verstärkter Ga-Einbau eine höhere Wachstumsrate zur Folge hat. Es ist bekannt, dass in dicken AlGaIn-Schichten auf 0.2° m-verkipptem ELO Gallium sich aufgrund seiner im Vergleich zu Aluminium größeren Diffusionslänge verstärkt an den Kanten von mehreren Nanometer hohen Makrostufen einbaut und so lokal zu einer längeren Emissionswellenlänge führt [101, 200]. An der hier untersuchten Probe sind derartige Makrostufen allerdings kaum vorhanden. Es ist daher anzunehmen, dass der erhöhte Galliumeinbau hauptsächlich an den Wachstumsspiralen stattfindet, die besonders viele Oberflächenstufen anbieten [201, 202].

Auf dem a-verkippten ELO sind größere Stufenkanten vorhanden und wie erwartet zeigt sich an diesen eine intensivere, rotverschobene Emission (Abb. 4.4(c, d)). Die Stufen führen zu einer deutlich inhomogeneren Galliumverteilung, welche sich hier in der wesentlich größeren Wellenlängenvariation von 7 nm äußert. Um die Frage zu beantworten, ob Variationen in der Quantenfilmdicke oder im Ga-Gehalt für die Wellenlängenverschiebung verantwortlich sind, wurden an ähnlichen Proben mit deutlich ausgeprägten Makrostufen die in Abbildung 4.5 gezeigten HAADF-STEM-Aufnahmen sowie EDXS-Messungen gemacht. Die Aufnahmen zeigen, dass die Quantenfilme an der Makrostufe sowohl dicker sind als auch einen leicht erhöhten Galliumgehalt haben. Der Effekt scheint für den untersten Quantenfilm am stärksten zu sein, dieser wurde jedoch aufgrund von im TEM möglicherweise auftretenden Projektionseffekten in der quantitativen Analyse nicht berücksichtigt. Abseits der Makrostufe haben die Quantenfilme eine Dicke von (3.0 ± 0.2) nm während diese auf der Makrostufe 5 nm (2. QW) bis 3.5 nm (3. QW) beträgt. Der Unterschied im Ga-Gehalt lässt sich auf 1 at% abschätzen. Eine Wiederholung der Messung an 10 weiteren

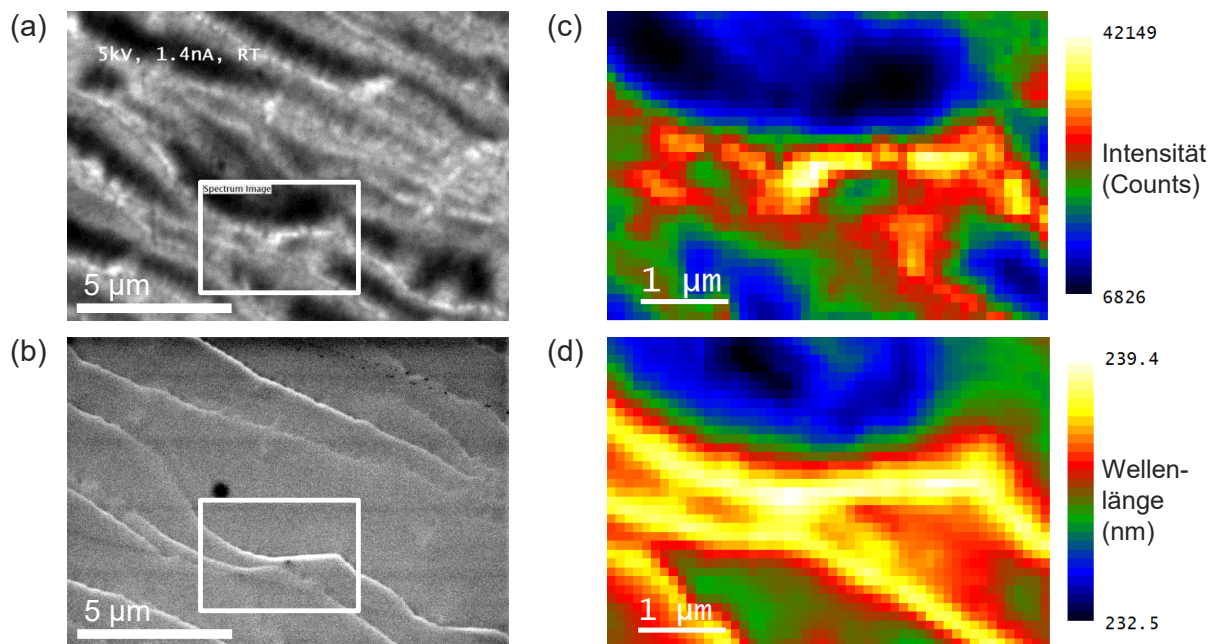


Abbildung 4.4.: (a) Sekundärelektronenbild der bei 1080 °C auf a-verkipptem ELO gewachsenen Laserstruktur aufgenommen bei 5 kV und 1.4 nA. (b) Kathodolumineszenzaufnahme desselben Bereichs bei 300 K. Das weiße Rechteck markiert den Bereich, innerhalb dessen die in (c) und (d) dargestellte Verteilung von Peakintensität und Peakwellenlänge bestimmt wurde. (Abbildung teilweise aus [186].)

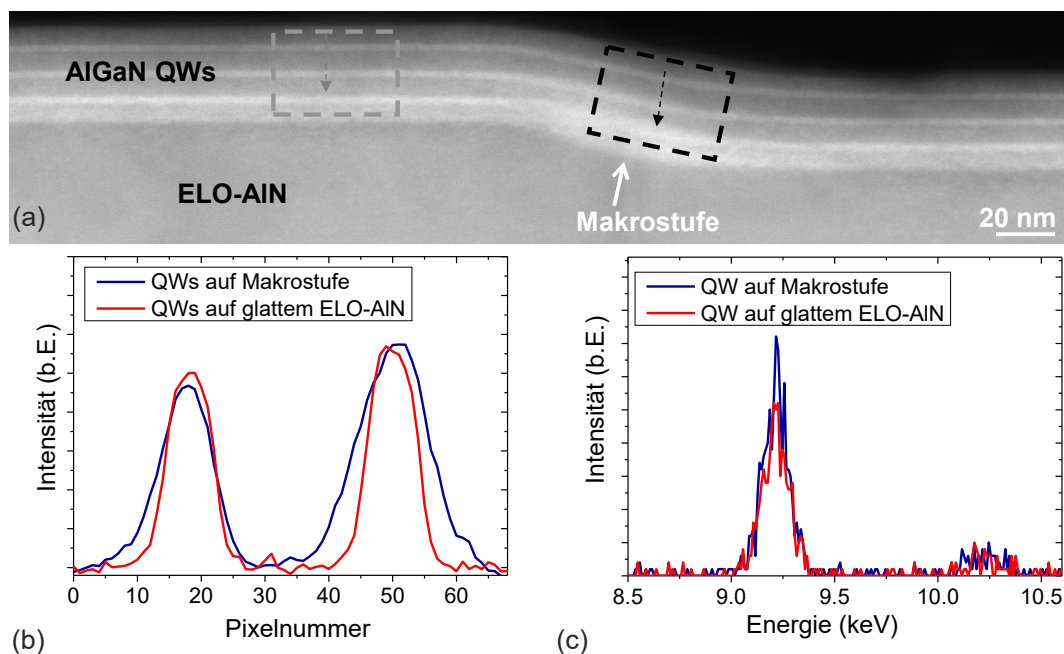


Abbildung 4.5.: (a) HAADF-STEM-Aufnahme von $\text{Al}_{0.75}\text{Ga}_{0.25}\text{N}/\text{Al}_{0.82}\text{Ga}_{0.18}\text{N}$ -Quantenfilmen auf ELO-AIN im Bereich einer Makrostufe. (b) Linienscan im Bereich des grauen bzw. schwarzen Pfeils zum Vergleich der Quantenfilmdicke neben bzw. an der Makrostufe. (c) EDXS-Spektren der Ga-K-Kante im grauen/schwarzen Rechteck zum Vergleich der Galliumkonzentration neben/an der Makrostufe. (Abbildung aus [186].)

Makrostufen führte stets zu demselben Ergebnis. Die Ergebnisse bestätigen die Vermutung der gleichzeitigen Erhöhung von Ga-Gehalt und Dicke aufgrund der zunehmenden Wachstumsrate.

Die Ergebnisse der auf den ELO-Templates gewachsenen Heterostrukturen zeigen die Wechselwirkung zwischen Oberflächenstruktur und Homogenität der Quantenfilmemission. In dieses Bild ordnet sich die auf dem planaren Template gewachsene Probe ein, die eine atomar glatte Oberfläche und eine sehr geringe Wellenlängenvariation von weniger als 2 nm aufweist (Abb. 4.6). Gleichzeitig ist die auf den ELO-Templates beobachtete Korrelation zwischen Wellenlänge und Intensität hier nicht erkennbar, was darauf hindeutet, dass die Inhomogenitäten zu gering sind, um einen signifikanten Einfluss auf die räumliche Verteilung der Emission zu haben.

Tendenziell führen Inhomogenitäten in den Quantenfilmen zu schlechteren Lasereigenschaften, insbesondere zu einer erhöhten Schwelle [203, 204]. Unter diesem Gesichtspunkt scheint daher die planare Probe für eine Laserstruktur am geeignetsten. Die Defektdichte in planaren Templates ist für Lasing jedoch zu hoch, sodass die Verwendung von ELO-Templates unumgänglich ist. In Abschnitt 4.2 wird daher untersucht werden, ob sich durch geringere Fehlschnittwinkel eine homogenere Oberflächenmorphologie auf ELO-Templates erreichen lässt und wie sich dies auf die Eigenschaften der auf diesen Templates gewachsenen Laserproben auswirkt.

Neben den auf verschiedenen Templates gewachsenen Proben wurden auch die bei unterschiedlichen Temperaturen gewachsenen Proben verglichen. Die Oberflächenmorphologie und damit auch die Homogenität der Quantenfilmemission unterscheidet sich nicht von den

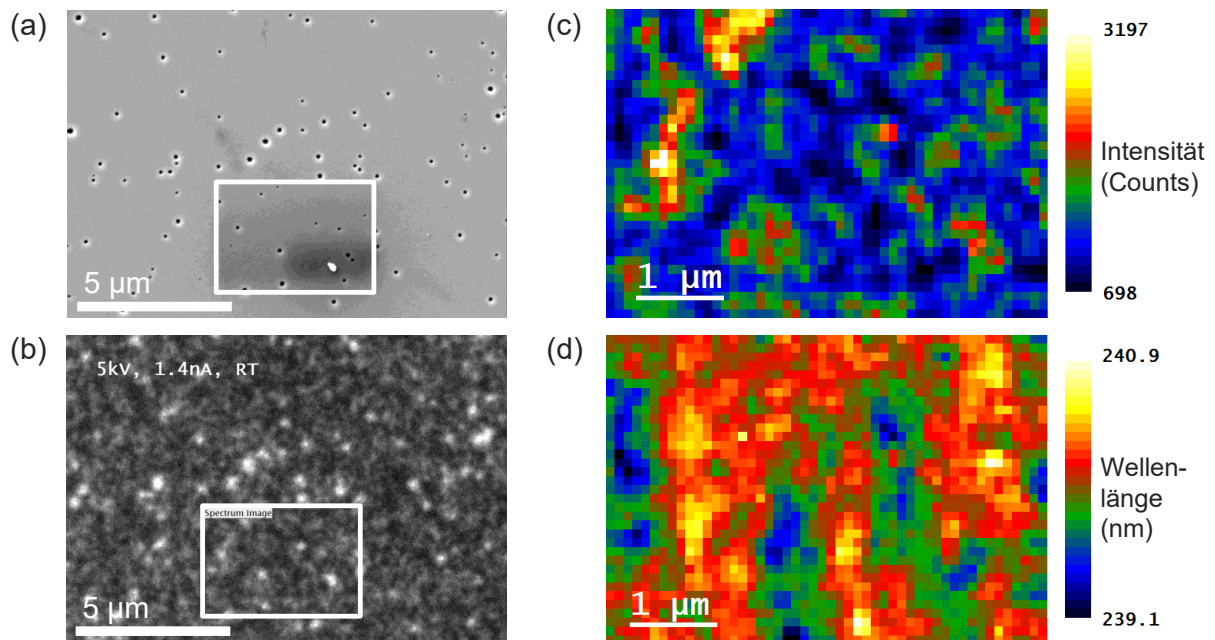


Abbildung 4.6.: (a) Sekundärelektronenbild der bei 1080 °C auf planarem Template gewachsenen Laserstruktur aufgenommen bei 5 kV und 1.4 nA. (b) Kathodolumineszenzaufnahme desselben Bereichs bei 300 K. Das weiße Rechteck markiert den Bereich, innerhalb dessen die in (c) und (d) dargestellte Verteilung von Peakintensität und Peakwellenlänge bestimmt wurde. (Messungen durchgeführt von Dr. Ute Zeimer.)

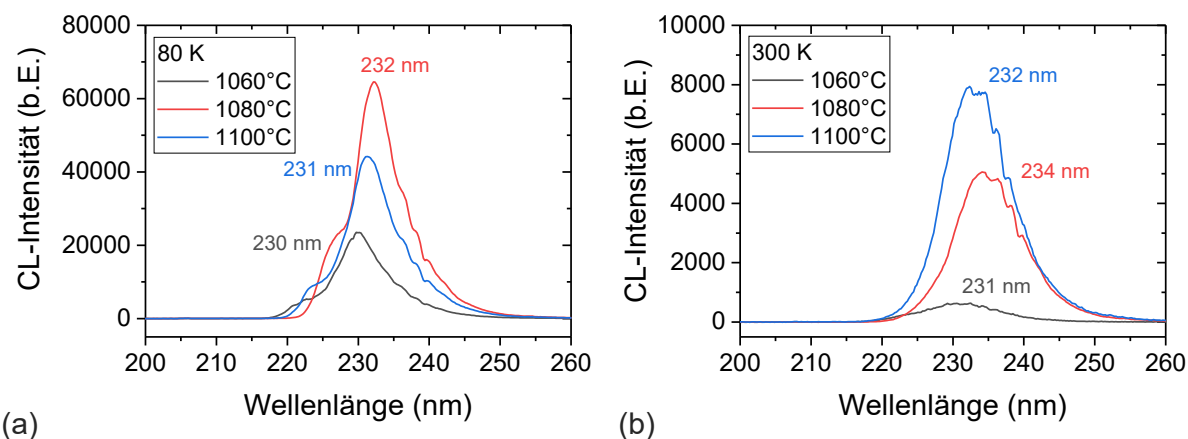


Abbildung 4.7.: Kathodolumineszenzspektren der auf m-verkipptem ELO bei 1060 °C, 1080 °C und 1100 °C gewachsenen Laserproben bei **(a)** 80 K und **(b)** 300 K. (Messungen durchgeführt von Dr. Ute Zeimer.)

bereits präsentierten Daten und wird daher hier nicht erneut im Detail dargestellt. Abbildung 4.7 zeigt die Kathodolumineszenzspektren der bei den unterschiedlichen Temperaturen auf m-verkipptem ELO gewachsenen Laserproben. Die unterschiedlichen Emissionswellenlängen deuten darauf hin, dass trotz Anpassung der TMGa-Flüsse für die verschiedenen Wachstumstemperaturen nicht ganz identische Schichtzusammensetzungen und -dicken erreicht wurden. Dividiert man die Intensitäten bei Raumtemperatur durch die bei 80 K, zeigt sich, dass die bei 1100 °C gewachsene Probe mit 17,9 % die höchste Effizienz hat, gefolgt von der bei 1080 °C (7,8 %) und der bei 1060 °C gewachsenen Probe (2,5 %).

In Photolumineszenzmessungen an denselben Proben (Abb. 4.8(a)) zeigt für alle untersuchten Anregungsleistungen die 1080 °C-Probe die höchste IQE mit einem maximalen Wert von 22,6 %, gefolgt von der 1100 °C-Probe (15 %) und der 1060 °C-Probe (11 %). Die Halbwertsbreiten unterscheiden sich kaum. Vergleicht man die PL-Eigenschaften der bei 1080 °C auf verschiedenen Templates gewachsenen Proben (Abb. 4.8(b)), fällt auf, dass die Quantenfilme auf m-verkipptem ELO die höchste IQE aufweisen (22,6 %), gefolgt von denen auf a-ELO (19 % bei 150 kW/cm³). Die Probe auf dem planaren Template weist aufgrund ihrer hohen Versetzungsdichte eine wesentlich geringere IQE von nur 5 % bei der höchsten Anregungsleistung auf. Gleichzeitig hat diese Probe wie auch in der CL eine deutlich geringere spektrale Halbwertsbreite, da sich aufgrund der glatten Oberfläche wesentlich weniger Inhomogenitäten bilden. Die PL-IQEs der Proben unterscheiden sich sowohl beim Vergleich der unterschiedlichen Wachstumstemperaturen als auch beim Vergleich der unterschiedlichen Templates von den CL-Ergebnissen, wobei die in der CL generierte Ladungsträgerdichte ungefähr einer PL-Anregungsleistungsdichte von 20 kW/cm² entspricht. Dies deutet darauf hin, dass die bei der CL als Referenz verwendete Temperatur von 80 K nicht niedrig genug ist, um die nichtstrahlende Rekombination ausreichend zu unterdrücken und aussagekräftige IQE-Werte bestimmen zu können. Nichtsdestotrotz lassen sich starke Unterschiede, wie zum Beispiel zwischen den Quantenfilmen auf planaren und denen auf ELO-Templates auch über CL korrekt erkennen.

Unter optischer Anregung mit einem 193 nm ArF-Excimerlaser zeigten die bei 1080 °C auf a- und m-verkipptem ELO gewachsenen Proben TM-polarisierte Laseremission mit Schwel-

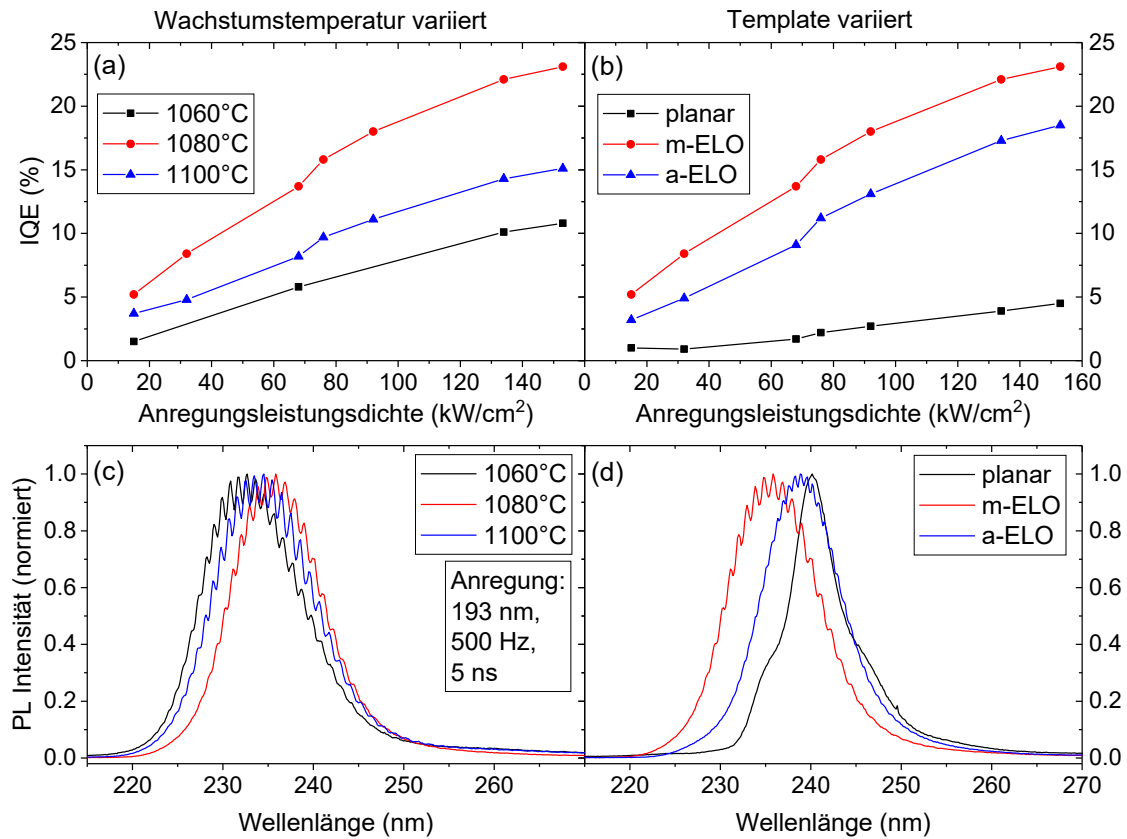


Abbildung 4.8.: Über temperaturabhängige Photolumineszenzmessungen ermittelte interne Quanteneffizienzen der (a) auf m-verkipptem ELO bei unterschiedlichen Wachstumstemperaturen bzw. (b) bei 1080 °C auf unterschiedlichen Templates gewachsenen Laserproben für verschiedene Anregungsleistungsdichten; (c)-(d) Spektren der Proben bei 300 K. Die Oszillationen entstehen durch Fabry-Perot-Interferenzen im ELO-Template. Die Anregungsbedingungen in (c) gelten für alle Plots. (Messungen durchgeführt von Christoph Reich.)

lenanregungsleistungsdichten von 15 bzw. 10 MW/cm² (Abbildung 4.9). Die bei 1060 °C und 1100 °C gewachsenen Laserstrukturen sowie die Strukturen auf planaren Templates zeigten kein Lasing. Letzteres ist aufgrund der wesentlich höheren Versetzungsdichten, die sich auch bereits in den deutlich geringeren IQEs in PL und CL gezeigt haben, nicht überraschend. In den Photolumineszenzmessungen hatte die bei 1080 °C gewachsene Probe die höchste IQE. Zusätzlich haben die bei dieser Temperatur gewachsenen Proben eine etwas längere Emissionswellenlänge; was auf einen höheren Galliumgehalt in den Quantenfilmen hindeutet. Dieser wiederum könnte zu einem besseren Einschluss der Ladungsträger in der aktiven Zone führen und sich so positiv auf die Lasereigenschaften auswirken. Die erhöhte IQE insbesondere bei hohen Anregungsleistungen würde ebenfalls zu einem verbesserten Ladungsträgereinschluss passen. Aufgrund der variierenden Wellenlängen kann nicht abschließend beurteilt werden, inwiefern die Wachstumstemperatur in dem gewählten Bereich von 1060–1100 °C tatsächlich ursächlich für die Unterschiede in der IQE und dem Laserverhalten ist. Da aber von den untersuchten Proben nur die bei 1080 °C gewachsenen überhaupt Lasing zeigten, wurde für alle weiteren in diesem Kapitel untersuchten Laserstrukturen diese Wachstumstemperatur beibehalten.

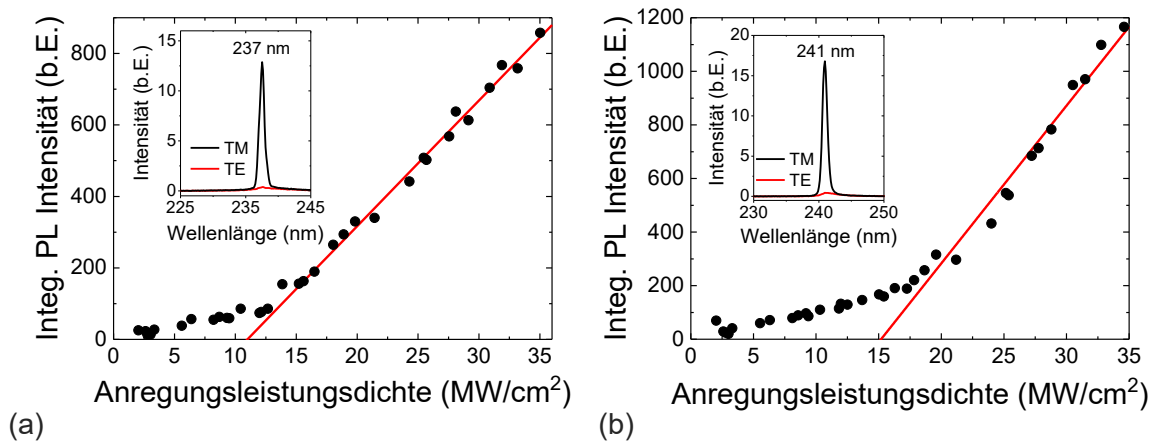


Abbildung 4.9.: Integriert emittierte Intensität aufgetragen über der Anregungsleistungsdichte für die Laserstrukturen auf (a) m-verkipptem und (b) a-verkipptem ELO. Die Insets zeigen polarisationsabhängige Spektren der Proben oberhalb der Laserschwelle. Aus [205] © 2015 IEEE.

Der Vergleich der Kennlinien in Abbildung 4.9 zeigt, dass die Struktur auf m-verkipptem ELO eine etwas geringere Schwelle zeigt als die auf a-verkipptem ELO. Für die Beurteilung, ob dieser Unterschied rein zufällig oder auf die unterschiedlichen Templates zurückzuführen ist, wäre eine Messung von Laserkennlinien an verschiedenen Positionen auf jeder Probe mit anschließender statistischer Auswertung notwendig. Dies war jedoch aufgrund der geringen Stabilität der Proben nicht möglich. Allerdings deuten die Unterschiede in der IQE (Abb. 4.8) sowie die größere laterale Homogenität auf den m-ELO-Templates (Abb. 4.3, 4.4) darauf hin, dass der Unterschied charakteristisch für die Proben ist.

Hinsichtlich der mit $> 10 \text{ MW/cm}^2$ insgesamt sehr hohen Schwellen sei auf die in Abschnitt 2.2 getätigten Aussagen zur Bestimmung optisch gepumpter Laserschwelen, die z.B. von der Breite des angeregten Streifens und der Verteilung der Anregungsleistungsdichte abhängen, verwiesen. Trotz dieser Relativierung sind die Schwellenleistungsdichten außergewöhnlich hoch. Vergleiche mit veröffentlichten Ergebnissen anderer Gruppen zeigen, dass deren Laserstrukturen in der Regel wesentlich dünnere oder auch gar keine AlN-Cap-Schichten haben [88, 206]. Verglichen damit ist die Cap-Schicht der hier untersuchten Laser mit 75 nm sehr dick, sodass bei einem Absorptionskoeffizienten von ca. $2 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ [207] im Cap bereits 80 % des Pumplichts absorbiert werden. Die Ladungsträgergeneration nimmt dabei exponentiell mit der Eindringtiefe ab. Mit zunehmender Cap-Dicke erhöht sich die Wahrscheinlichkeit, dass Ladungsträger rekombinieren, bevor sie die Quantenfilme erreichen, insbesondere, da die nichtstrahlende Rekombination an der Halbleiteroberfläche typischerweise stark erhöht ist. Simulationen des optischen Pumpens mit der Software Silvaco Atlas (siehe Abschnitt 2.2.5.1) bestätigen, dass für eine geringere Cap-Dicke sich die Ladungsträgerdichte in allen Quantenfilmen erhöht und daher eine stark verringerte Laserschwelle zu erwarten wäre (Abb. 4.10), auch wenn die berechneten absoluten Schwellenleistungsdichten deutlich von den experimentellen abweichen. Die Simulation zeigt auch, dass für alle Cap-Dicken die mit der Eindringtiefe der Pumpstrahlung abnehmende Ladungsträger-Generationsrate zu einer inhomogenen Ladungsträgerverteilung zwischen

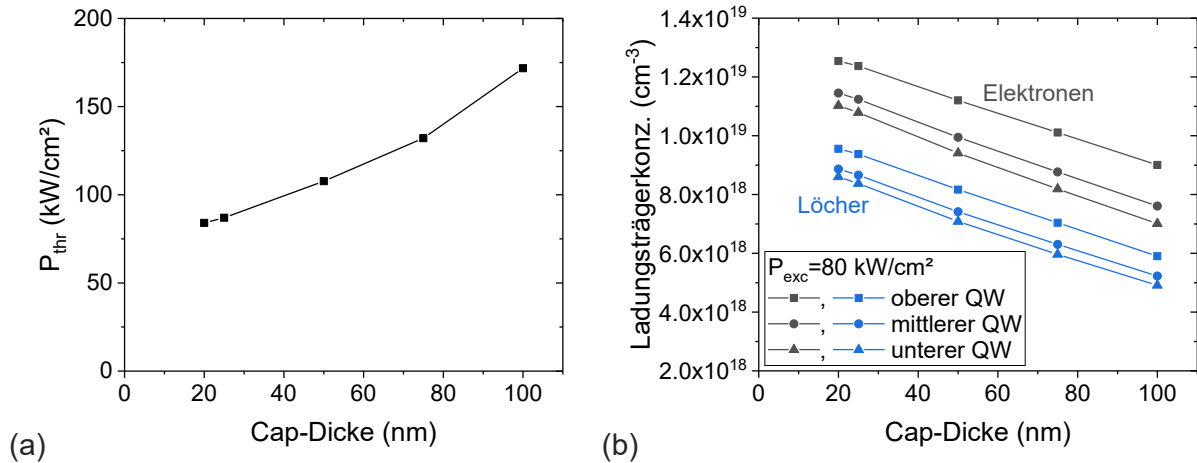


Abbildung 4.10.: (a) Simulierte Abhängigkeit der Schwellenleistungsdichte der untersuchten optisch gepumpten Laser von der Dicke der AlN-Cap-Schicht. (b) Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte in den QWs von der Cap-Dicke bei einer Anregungsdichte von 80 kW/cm^2 . Details zur Simulation finden sich auf S. 35.

den QWs führt, sodass die Ladungsträgerdichte im oberen QW größer ist als den darunter liegenden.

Aus den Ergebnissen dieses Abschnitts ergeben sich zwei Ansätze für die weitere Untersuchung und Verbesserung der optisch gepumpten Laserstrukturen. Zum einen sollte eine dünnere Cap-Schicht verwendet werden, um zu überprüfen, ob sich dadurch die Schwelle senken lässt. Zum anderen wurde deutlich, welchen großen Einfluss die Versetzungsdichte und die Oberflächenmorphologie auf das Lasing haben. Der Fehlschnitt der ELO-Templates wiederum beeinflusst beide Parameter und wird daher im folgenden Abschnitt 4.2 genauer untersucht werden.

4.2. Einfluss des Substrat-Fehlschnitts

Im vorigen Abschnitt wurde gezeigt, dass die Versetzungsdichte der verfügbaren planaren AlN/Al₂O₃-Templates zu hoch ist, um optisch gepumptes Lasing zu erreichen. Es ist daher notwendig, ELO-Templates zu verwenden, in denen durch geätzte und anschließend lateral überwachsene Gräben eine wesentlich stärkere Reduktion der Versetzungsdichte möglich ist. Diese Gräben beeinflussen jedoch die Oberflächenmorphologie der Heterostrukturen, wobei das genaue Verhalten von der Größe des Substratfehlschnitts, dem Winkel zwischen Fehlschnitttrichtung und Gräben sowie den Wachstumsbedingungen des ELO-Templates abhängt. Während im vorherigen Abschnitt verschiedene Fehlschnitttrichtungen untersucht wurden, wird im Folgenden die Größe des Fehlschnitts in Saphir-m-Richtung zwischen 0.1° und 0.2° variiert. Bei der gewählten Orientierung verlaufen die Fehlschnitt-induzierten Stufen auf der Waferoberfläche genau parallel zu den ELO-Streifen. Wird der Fehlschnittwinkel erhöht, so müssen die Oberflächenstufen entweder höher werden oder dichter zusammen liegen (oder beides). Beim ELO-Wachstum treffen die freistehenden Streifen erst bei einer Schichtdicke von $>2 \mu\text{m}$ aufeinander, sodass sich mit zunehmenden Fehlschnitt ein deutlicher Höhenunterschied ergibt. Enslin und Knauer haben gezeigt,

dass für die hier untersuchten Templates für einen Fehlschnitt kleiner 0.12° die Stufen an den Koaleszenzlinien überwunden werden können, sodass die Oberfläche nur leichte wellenförmige Undulationen zeigt [99, 208]. Ist der Fehlschnitt aber größer als 0.16° , laufen die atomaren Stufen auf den ELO-Streifen auf die Makrostufen an den Koaleszenzlinien auf und es ergeben sich Stufenhöhen von mehr als 15 nm.

Die im Folgenden untersuchten Templates sollten mit nominellen Fehlschnitten von 0.1 und 0.2° beide beschriebenen Wachstumsmodi abbilden. Es wurden zwei Templatewafer verwendet, von denen jeweils drei Viertel mit drei verschiedenen Laserstrukturen überwachsen wurden. Die Laserstrukturen unterscheiden sich in Dicke und Anzahl der Quantenfilme und werden in Abschnitt 4.3 genauer analysiert. Die exakten Schichtstrukturen finden sich in Abbildung 4.15. Die Laserproben werden im Folgenden anhand der Quantenfilmanzahl benannt als

- SQW (Single Quantum Well – ein Quantenfilm),
- DQW (Double Quantum Well – zwei Quantenfilme),
- QQW (Quadruple Quantum Well – vier Quantenfilme).

Abbildung 4.11 zeigt, dass alle drei Laserstrukturen auf dem 0.2° -verkipptem ELO-Template eine geringere Laserschwelle zeigen als auf dem 0.1° -verkippten. Auch wenn die Unterschiede im Rahmen der Messungenauigkeit bei SQW und QQW insignifikant sind, sprechen der identische Trend bei allen drei Strukturen sowie der signifikante Unterschied beim DQW für einen realen Effekt. Gleichzeitig fällt auf, dass die Schwellen von allen Heterostrukturen zwischen 1.5 und 2.6 MW/cm^2 liegen und damit auf 10 bis 20 % der im vorherigen Abschnitt berichteten Werte verringert werden konnten. Ein Hauptgrund hierfür ist mit hoher Wahrscheinlichkeit die reduzierte Dicke der AlN-Cap-Schicht von nur noch 20 nm, sodass ein größerer Teil der generierten Ladungsträger die Quantenfilme erreicht. Der Einfluss

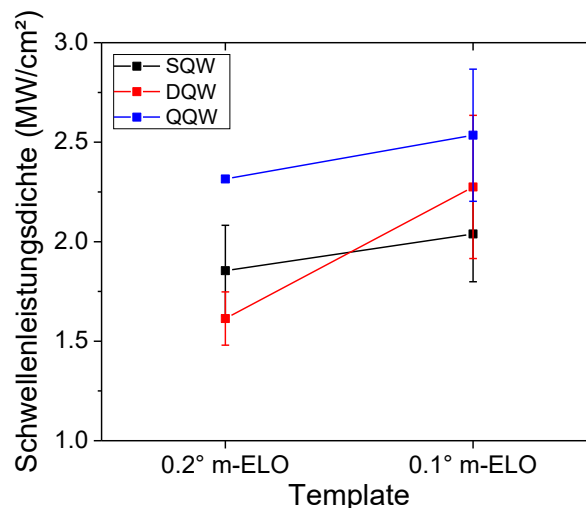


Abbildung 4.11.: Gemittelte Laserschwellen der drei untersuchten Heterostrukturen auf 0.1° bzw. 0.2° nach m-verkippten Templates. Die Fehlerbalken sind für ein Vertrauensniveau von 95 % berechnet. (Messungen durchgeführt von Martin Martens.)

der Cap-Dicke ist damit noch stärker als anhand der Simulationsrechnungen (Abb. 4.10) vermutet.

Um die geringeren Schwellen auf dem 0.2° -verkippten Template zu verstehen, ist eine genauere Charakterisierung der Proben notwendig. AFM-Aufnahmen (exemplarisch in Abb. 4.12(a, e) für die QQW-Struktur) zeigen das erwartete Verhalten, d.h. Step Bunching auf dem 0.2° verkippten Template mit einem Stufenabstand, der ungefähr identisch zu den Abständen der ELO-Streifen ist, sowie leichte Undulationen der Oberfläche und Spiralwachstum an Schraubenversetzungen auf dem 0.1° verkippten Template. In Kathodolumineszenzaufnahmen der QQW-Proben zeigt sich auf dem 0.2° verkippten ELO eine erhöhte Intensität an den Kanten der Makrostufen (Abb. 4.12(b)), die mit einer Rotverschiebung der Emissionswellenlänge (Abb. 4.12(c), $\Delta\lambda=7\text{ nm}$) durch Ga-Akkumulation und eine erhöhte QW-Dicke einhergeht (vgl. Abschnitt 4.1). Im Gegensatz dazu zeigen die Quantenfilme auf 0.1° verkipptem Template nur leichte Schwankungen der Intensität aufgrund der durch die ELO-Strukturierung verursachten Bereiche höherer und geringerer Versetzungsdichte (Abb. 4.12(f)). Zusätzlich ist die im vorherigen Abschnitt beschriebene Anreicherung von Gallium an Spiralen um Schraubenversetzungen zu beobachten (Abb. 4.12(g)). Die dadurch verursachte Inhomogenität der Emissionswellenlänge aus den Quantenfilmen ist jedoch mit 3.4 nm wesentlich geringer als auf dem 0.2° verkippten Template. Anhand der bisherigen Informationen wäre zu vermuten, dass die 0.1° verkippten Proben aufgrund ihrer besseren Homogenität geringere Laserswellen besitzen. Das entgegengesetzte experimentelle Ergebnis lässt sich erst durch Querschnitts-TEM-Aufnahmen verstehen (Abb. 4.12(d, h)). Diese zeigen für das 0.2° verkippte Template zum einen eine stärkere Reduktion der Defektdichte im ersten Mikrometer AlN, vermutlich aufgrund einer durch den höheren Fehlschnitt erzeugten zusätzlichen Inklinierung der Versetzungen [191]. Zum anderen verlaufen die an den Koaleszenzlinien entstehenden Koaleszenzdefekte häufig nicht senkrecht wie bei dem 0.1° verkippten Template, sondern diagonal. Der Grund für diese Inklinierung sind die Makrostufen, die wegen des größeren Fehlschnitts an den Koaleszenzstellen entstehen. Während des Wachstums propagieren die Makrostufen entlang der Oberfläche und ziehen die Koaleszenzdefekte mit sich. Dadurch kreuzen sie senkrecht verlaufende Versetzungen und reduzieren deren Dichte, sodass sich im Bereich der Heterostruktur auf dem 0.2° verkippten Template eine verringerte Versetzungsdichte (Tabelle 4.2) ergibt. Es fällt allerdings auf, dass in der abgebildeten TEM-Aufnahme nicht alle Koaleszenzgrenzen diagonal verlaufen, während gleichzeitig im AFM-Bild die Makrostufen

Tabelle 4.2.: Über HRXRD ω -Scans ermittelte Halbwertsbreiten der AlN-(0002)- und (30 $\bar{3}$ 2)-Reflexe sowie die über STEM bestimmten TDDs im Bereich der Quantenfilme für die auf 0.1° bzw. 0.2° verkippten Templates gewachsenen Heterostrukturen. Aufgrund der großen Eindringtiefe bilden die Röntgenmessungen die unterschiedlichen Versetzungsdichten im Bereich der Quantenfilme nicht so klar ab wie die STEM-Ergebnisse.

Fehlschnitt ($^\circ$)	XRD FWHM ($''$) (0002)	XRD FWHM ($''$) (30 $\bar{3}$ 2)	TDD (STEM) (cm^{-2})
0.1	150	500	$3\text{--}5 \times 10^9$
0.2	160	400	$1\text{--}2 \times 10^9$

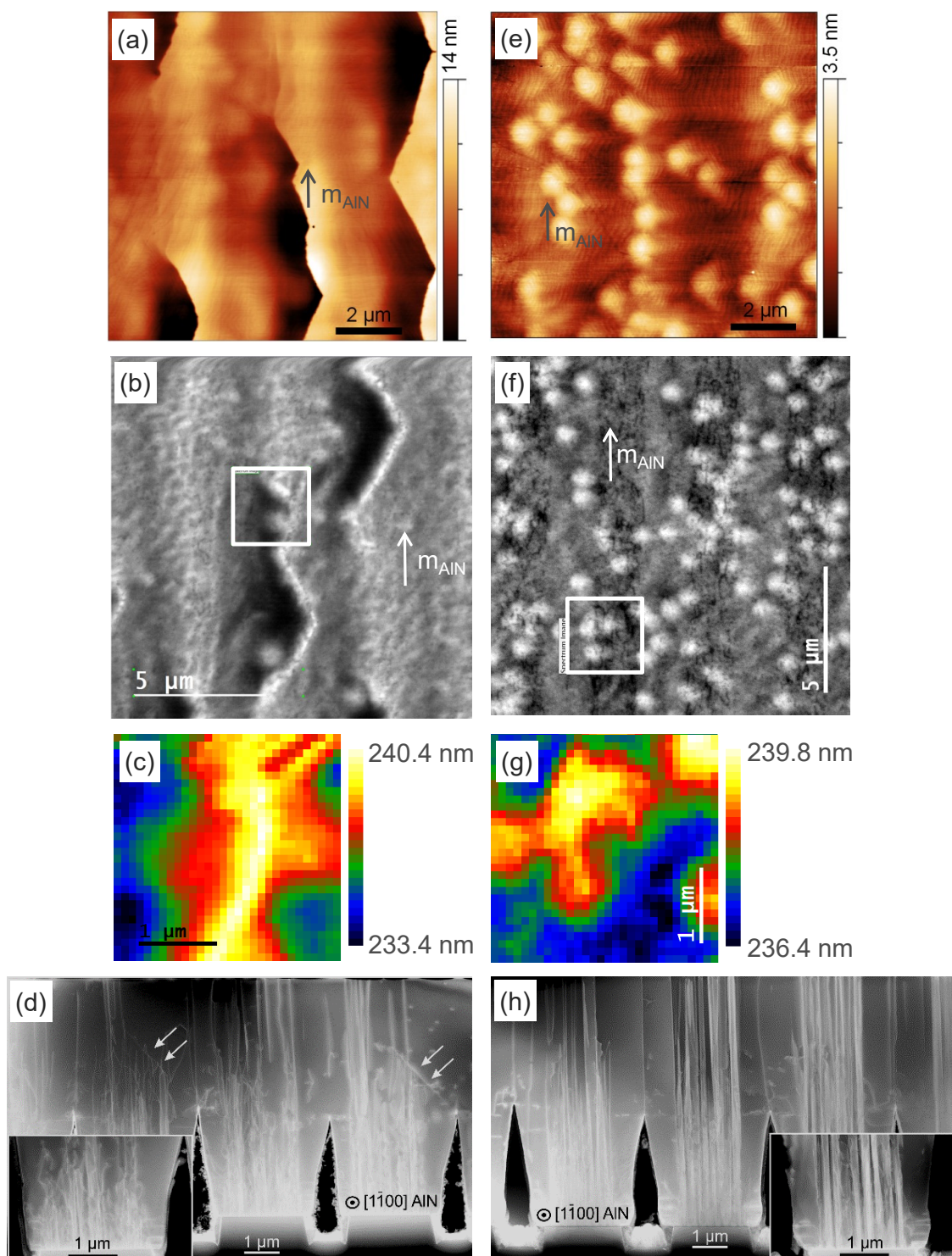


Abbildung 4.12.: (a) AFM, (b) pan-CL und (c) CL-Map innerhalb des weißen Quadrats der Oberfläche der auf dem 0.2°-verkippten ELO-Templates gewachsenen QW-Laserstruktur sowie (d) Querschnitts-ADF-STEM-Aufnahme. Die Vergrößerung zeigt die Versetzungsdichtereduktion in den ersten Mikrometern, die weißen Pfeile markieren von den Koaleszenzlinien ausgehende Korngrenzen; (e), (f), (g), (h) identische Aufnahmen für die auf 0.1°-verkippten Templates gewachsene QW-Laserstruktur. (CL-Aufnahmen gemessen von Dr. Ute Zeimer, STEM-Aufnahmen gemessen von Dr. Anna Mogilatenko.)

von glatten Bereichen unterbrochen sind. Die wahrscheinlichste Ursache für dieses Verhalten sind leichte Inhomogenitäten im Substratfehlschnitt oder im Heterostrukturwachstum, die lokal zur Ausbildung oder Verhinderung von Makrostufen führen.

Insgesamt zeigen die Ergebnisse, dass für die untersuchten Proben offensichtlich der positive Einfluss der verringerten Versetzungsdichte auf den 0.2° verkippten Templates gegenüber der erhöhten Inhomogenität der Quantenfilmmzusammensetzung überwiegt, sodass sich eine niedrigere Laserschwelle auf diesen Templates ergibt. Es wurde allerdings auch deutlich, dass geringfügige Änderungen des Fehlschnitts bereits zu starken Unterschieden in der Morphologie und Homogenität der Heterostruktur führen können. Aus den diskutierten Daten kann daher nicht allgemeingültig abgeleitet werden, dass ein Fehlschnitt von 0.2° generell zu geringeren Laserschwellen führt. Im Gegenteil zeigt die Wiederholung des Experiments mit Templates von einer anderen Charge, auf denen drei Laserstrukturen gewachsen wurden, die sich in ihrem Dotierprofil unterscheiden (vgl. Kapitel 5), exakt entgegengesetzte Resultate. In diesem Fall hatten zwar beide Templates einen nominellen Fehlschnitt von 0.2° , die REM- und CL-Aufnahmen in Abbildung 4.13 zeigen jedoch deutlich, dass eine Probe Makrostufen mit der typischen Galliumakkumulation ausbildet, während die andere die für einen geringeren Fehlschnitt typische homogene Emission mit Spiralwachstum an Schraubenversetzungen aufweist. Dies deutet stark darauf hin, dass der Fehlschnitt bei der Probe ohne Makrostufen $<0.12^\circ$ beträgt (nach [208]).

Alle drei Laserstrukturen, die jeweils auf beiden Templates gewachsen wurden, zeigen konsistent, aber im Gegensatz zu den vorherigen Ergebnissen, auf dem Template ohne Makrostufen geringere Schwellen (Abb. 4.14). Der einzige auffallende Unterschied zwischen diesen Proben und den zuvor untersuchten ist, dass hier die Makrostufen keine größeren

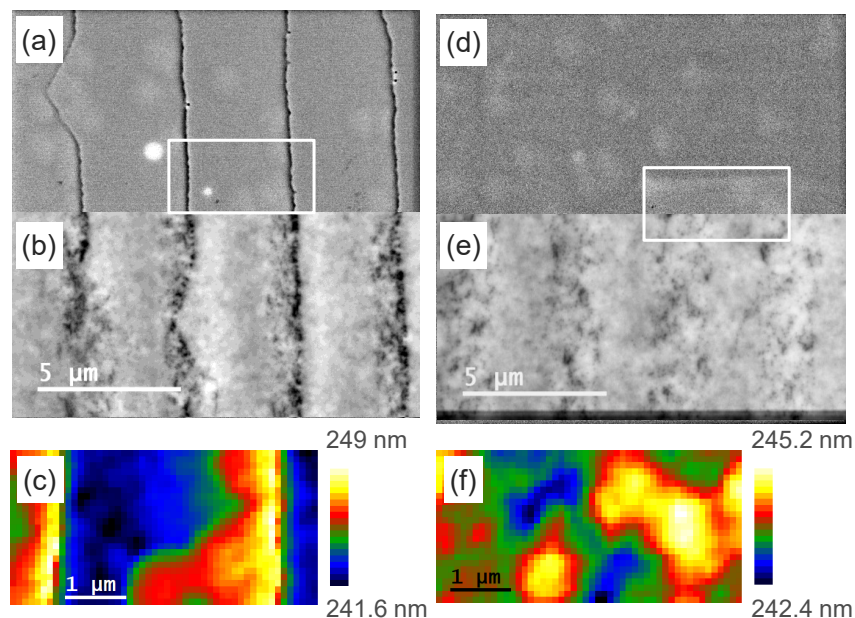


Abbildung 4.13.: (a) Sekundärelektronenbild, (b) Kathodolumineszenzsignal und (c) Wellenlängenverteilung innerhalb des weißen Rechtecks für die Probe mit Makrostufen; (d), (e), (f) vergleichbare Aufnahmen für die Probe ohne Makrostufen. (Messungen durchgeführt von Dr. Ute Zeimer.)

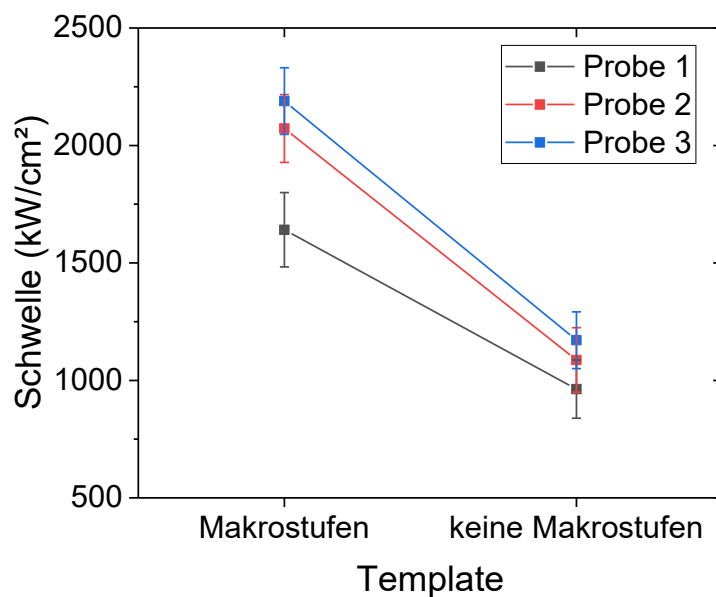


Abbildung 4.14.: Gemittelte Laserschwellen der drei untersuchten Heterostrukturen auf einem Template mit und einem ohne Makrostufen. Die Fehlerbalken sind für ein Vertrauensniveau von 95 % berechnet.

Unterbrechungen zeigen. Dies könnte zum einen zu einer größeren mittleren Inhomogenität der Quantenfilme führen und zum anderen die optischen Streuverluste im Resonator erhöhen und somit zu einer höheren Schwelle führen.

Aus den gegensätzlichen Ergebnissen der beiden untersuchten Probensätze muss geschlossen werden, dass die Auswirkungen des Substratfehlschnitts auf die Laserschwelle bei Wachstum auf ELO-AlN/Saphir-Templates nicht vorhersagbar sind, sondern von der exakten Ausprägung der Templateeigenschaften und der Heterostruktur abhängen. Eine Möglichkeit zur Vermeidung dieses Unsicherheitsfaktors wäre der Wechsel hin zu unstrukturierten Templates mit entsprechend geringen Versetzungsdichten oder zu einkristallinen AlN-Substraten.

4.3. Variation der Quantenfilmanzahl und -dicke

In Abschnitt 4.2 wurde der Einfluss des Substratfehlschnitts anhand mehrerer Laserheterostrukturen mit unterschiedlicher Quantenfilmanzahl und -dicke untersucht. Die Unterschiede zwischen diesen Heterostrukturen und damit der Einfluss der aktiven Zone auf die Lasereigenschaften sollen im Folgenden genauer analysiert werden.

Der exakte Aufbau der drei Heterostrukturen ist in Abbildung 4.15 dargestellt. Indem Dicke d_{QW} (1.5, 3, 6 nm) und Anzahl N_{QW} (4, 2, 1) der Quantenfilme gleichzeitig, aber in entgegengesetzter Richtung variiert wurden, wurde das Gewinnvolumen $V_{\text{gain}} = d_{\text{QW}} \times N_{\text{QW}}$ konstant gehalten. Ebenso wurde die Gesamtdicke der wellenführenden Schichten (Wellenleiter + Quantenfilme) konstant gehalten, um annähernd die gleiche vertikale Feldverteilung der optischen Mode zu erreichen. Leichte Unterschiede in der Verteilung ergeben sich dennoch, da die variierende Quantenfilmanzahl das Brechungsindexprofil geringfügig ver-

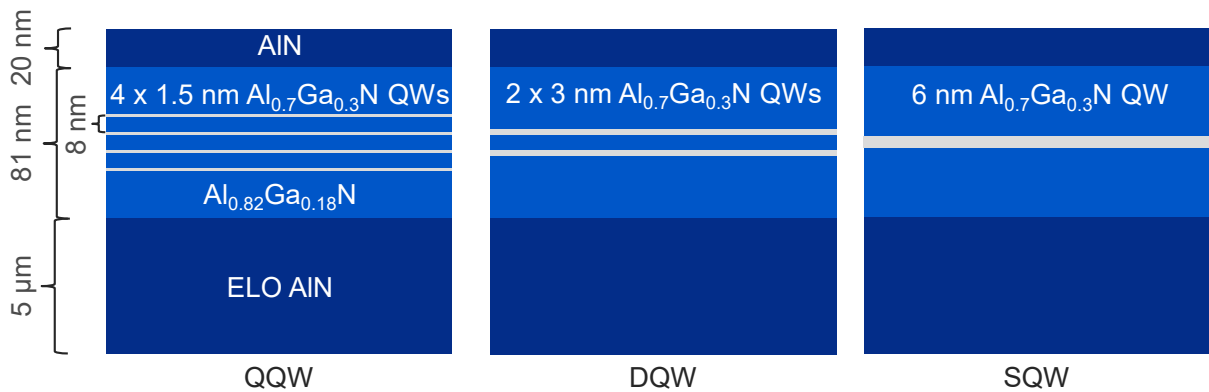


Abbildung 4.15.: Schichtaufbau der drei Laserheterostrukturen mit 4 (Quadruple Quantum Well, QQW), 2 (Double Quantum Well, DQW) und 1 (Single Quantum Well, SQW) Quantenfilm.

ändert. Wellenleitersimulationen zeigen allerdings, dass diese Unterschiede im Fernfeld zu einer Schwankung der Halbwertsbreite von $< 0.7^\circ$ führen und der Überlapp zwischen optischer Mode und Quantenfilmen für alle Proben zwischen 5.9 und 6.3 % liegt. Die Heterostrukturen wurden zum einen auf den im vorherigen Abschnitt vorgestellten 0.1° und 0.2° verkippten ELO-Templates mit niedriger Versetzungsdichte gewachsen (vgl. Tab. 4.2, im Folgenden abgekürzt als N01 und N02) sowie zusätzlich auf einem ebenfalls 0.1° verkippten ELO-Template mit einer wesentlich höheren Versetzungsdichte im Bereich von 10^{10} cm^{-3} (im Folgenden H01). Die Ursache für diese erhöhte Defektdichte sind wahrscheinlich Abweichungen im Oberflächenzustand des Saphirsubstrats sowie im Sauerstoffangebot während der AlN-Nukleation, die hier jedoch nicht weiter untersucht werden sollen. Viel mehr soll der Einfluss der Quantenfilmanzahl/-dicke bei unterschiedlicher Kristallqualität analysiert werden.

Unter optischer Anregung mit einem 193 nm Excimerlaser zeigten alle Heterostrukturen auf den Templates mit niedriger Versetzungsdichte Lasing, während auf dem Template mit hoher Versetzungsdichte nur für die QQW-Struktur Lasing beobachtet wurde. Abbildung 4.16 zeigt die mittleren Schwellenleistungsdichten sowie eine beispielhafte Kennlinie mit Laserspektrum. Es fällt auf, dass die Schwelle auf H01 ungefähr doppelt so hoch ist wie auf N01 und N02. Außerdem zeigte nur die QQW-Struktur Lasing, während diese auf den anderen Templates jeweils die höchsten Laserschwelen aufwies. Die niedrigste Schwelle hat auf N01 der SQW und auf N02 der DQW. Aufgrund der innerhalb der statistischen Schwankungen relativ geringen Unterschiede ist die Signifikanz dieser Differenzierung jedoch unsicher. Mit größerer Sicherheit lässt sich sagen, dass die Schwellen für beide Strukturen mit zunehmender Quantenfilmanzahl/abnehmender Quantenfilmdicke tendenziell zunehmen. Die Ursache für die konsistent geringeren Schwellen auf N02 im Vergleich zu N01 wurde bereits in Abschnitt 4.2 diskutiert.

Um die Ursache der beobachteten Schwellenunterschiede zwischen SQW, DQW und QQW auf den verschiedenen Templates besser zu verstehen, wurden Kathodolumineszenzmessungen gemacht, sowie der optische Pumpprozess mit der Software Silvaco Atlas simuliert. Abbildung 4.17 zeigt die Kathodolumineszenzaufnahmen der Heterostrukturen auf N01 und N02. Es sind die für das jeweilige Template typischen Merkmale zu beobachten,

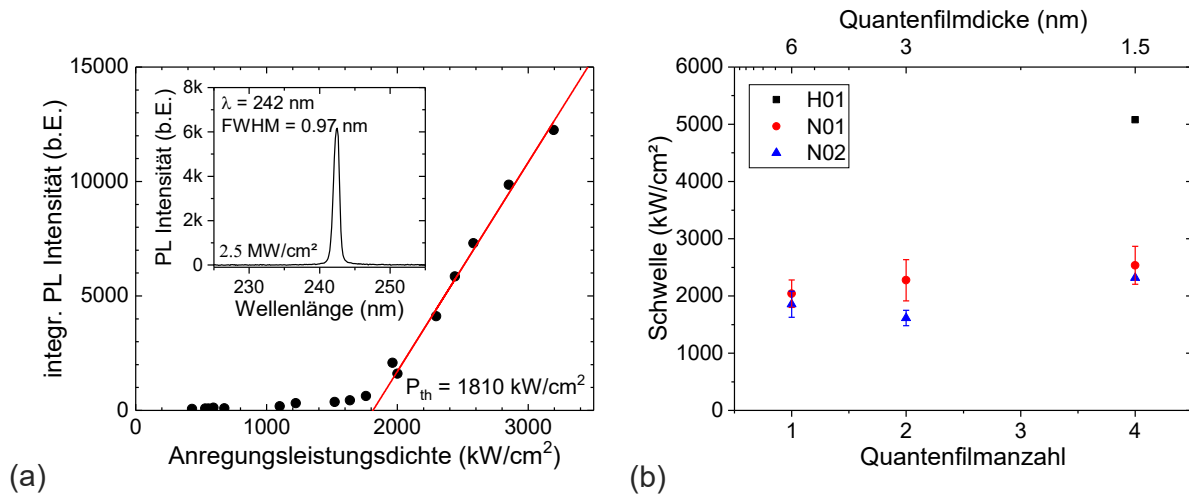


Abbildung 4.16.: (a) Exemplarische Kennlinie und Laserspektrum der SQW-Struktur auf N01 (Abb. aus [209]); (b) mittlere Schwellenleistungsdichten aller Proben, die Lasing gezeigt haben. Dabei bezeichnen N01 und N02 die Proben auf ELO-Templates mit niedriger Versetzungsdichte (Tab. 4.2) und H01 die 0.1° verkippte Probe mit hoher Versetzungsdichte (10^{10} cm $^{-2}$). Die Fehlerbalken sind für ein Vertrauensniveau von 95 % berechnet (Eine Berechnung für H01 war nicht möglich, da nur eine Kennlinie aufgenommen werden konnte.). (Messungen durchgeführt von Martin Martens.)

d.h. auf N01 hellere und dunklere Streifen aufgrund der durch das ELO verursachten variierenden Versetzungsdichte sowie Spiralwachstum an Schraubenversetzungen, an denen sich Gallium bevorzugt anlagert. Dieselben Spiralen sind auch auf N02 vereinzelt erkennbar, deutlicher fallen jedoch die Stufenkanten aufgrund ihrer durch Galliumakkumulation rotverschobenen, intensiveren Lumineszenz auf, wie sie bereits aus Abschnitt 4.2 bekannt ist. Die Inhomogenität ist auf N02 für alle Heterostrukturen größer als auf N01 und nimmt, in Übereinstimmung mit Ergebnissen von Hangleiter et al. [210], auf beiden Templates mit zunehmender Quantenfilmdicke zu.

Bei Betrachtung der Kathodolumineszenzspektren der Proben (Abb. 4.18) fällt auf, dass bei 80 K mit zunehmender Quantenfilmdicke die Intensität der Quantenfilmmission immer weiter abnimmt, während der kurzwelligere Peak der Wellenleiteremission an Intensität gewinnt. Gleichzeitig verschiebt sich die Emission zu größeren Wellenlängen. Bei Raumtemperatur ist für die SQW-Strukturen nur noch die Wellenleiteremission erkennbar, aber kein Quantenfilmpeak. Die wahrscheinlichste Ursache hierfür ist die Trennung der Ladungsträgerwellenfunktionen durch den Quantum Confined Stark Effect (QCSE) mit zunehmender Quantenfilmdicke¹. Berechnungen mit Silvaco Atlas zeigen, dass der Überlapp von Elektronen- und Lochwellenfunktion von 77 % (1.5 nm QW) auf 18 % (6 nm QW) abnimmt (Abb. 4.19). Der geringe Überlapp verringert die Wahrscheinlichkeit für strahlende Rekombination offensichtlich so stark, dass diese bei Raumtemperatur kaum noch auftritt. Für die Laserschwelle ist dies potentiell vorteilhaft, da die verringerte strahlende Rekombinationsrate den Aufbau von Besetzungsinversion bei geringeren Anregungsleistungen ermöglicht [211].

¹QCSE wird hier sowohl für die Beeinflussung der Bandkanten durch die Polarisationsfelder als auch für die resultierende Rotverschiebung der Emissionswellenlänge verwendet.

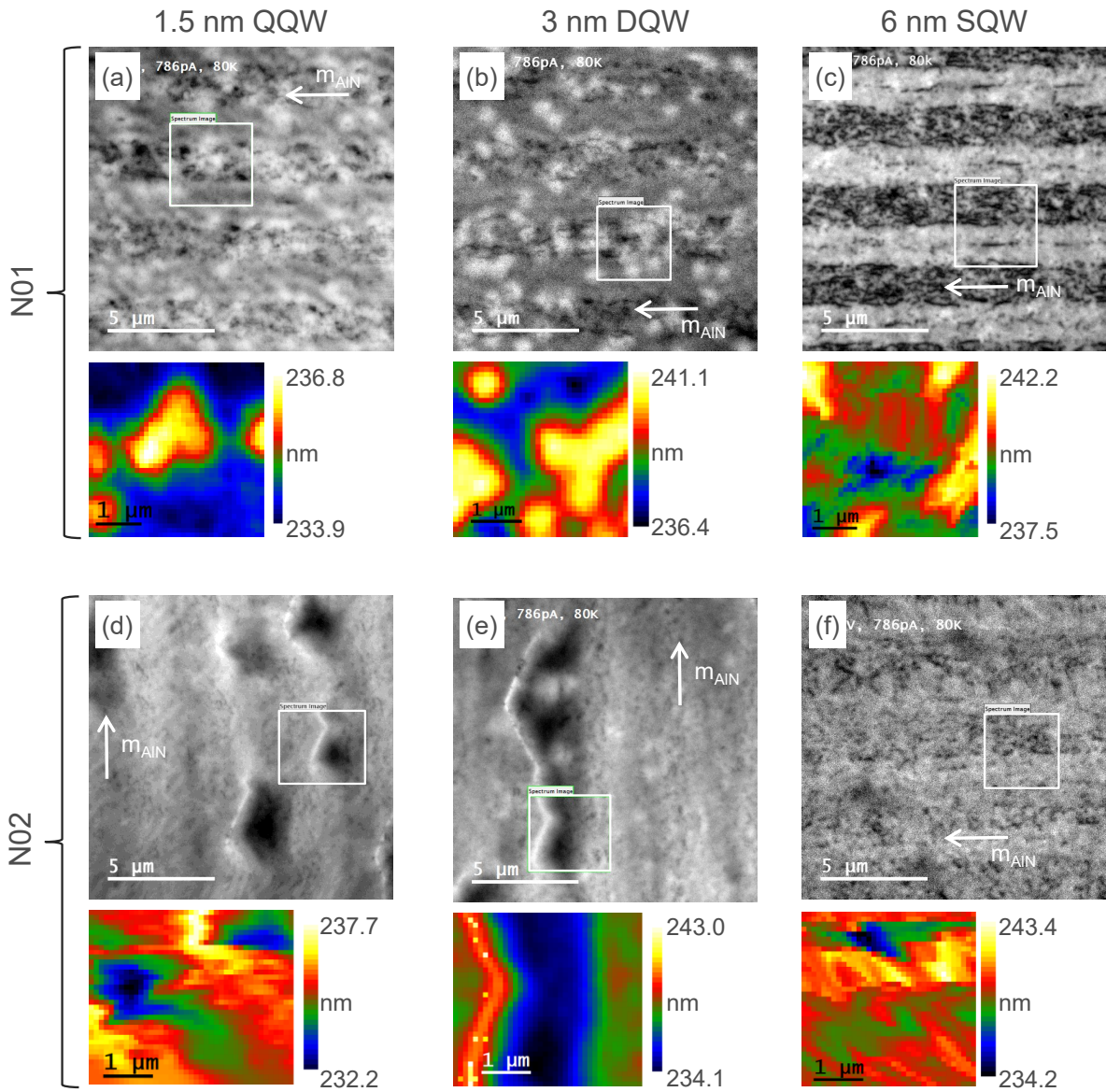


Abbildung 4.17.: Kathodolumineszenzaufnahmen (ohne Wellenlängenselektion) und Verteilung der Peakwellenlänge in den durch weiße Quadrate markierten Bereichen für (a, d) die QW-, (b, e) die DQW- und (c, f) die SQW-Struktur auf (a–c) dem N01-Template und (d–f) dem N02-Template. Alle Aufnahmen wurden bei 80 K gemacht. Die Wellenlängenverteilungen in (d) und (f) sind durch aufladungsbedingte Drift verzerrt. (Messungen durchgeführt von Dr. Ute Zeimer.)

Abbildung 4.20 zeigt für alle 9 Proben die aus der Simulation bestimmten und die experimentellen Schwellen. Für die Simulation wurden die Shockley-Read-Hall-Lebensdauern aus den unterschiedlichen Versetzungsdichten der jeweiligen Templates nach dem Modell von Karpov und Makarov [133] berechnet, welches um einen versetzungsdichteunabhängigen Term für die nichtstrahlende Rekombination an Punktdefekten erweitert wurde (Details siehe Abschnitt 2.2.5.1). Für H01 wurden außerdem basierend auf den Berechnungen von Liao et al. [138] aufgrund der hohen Versetzungsdichte höhere optische Verluste in

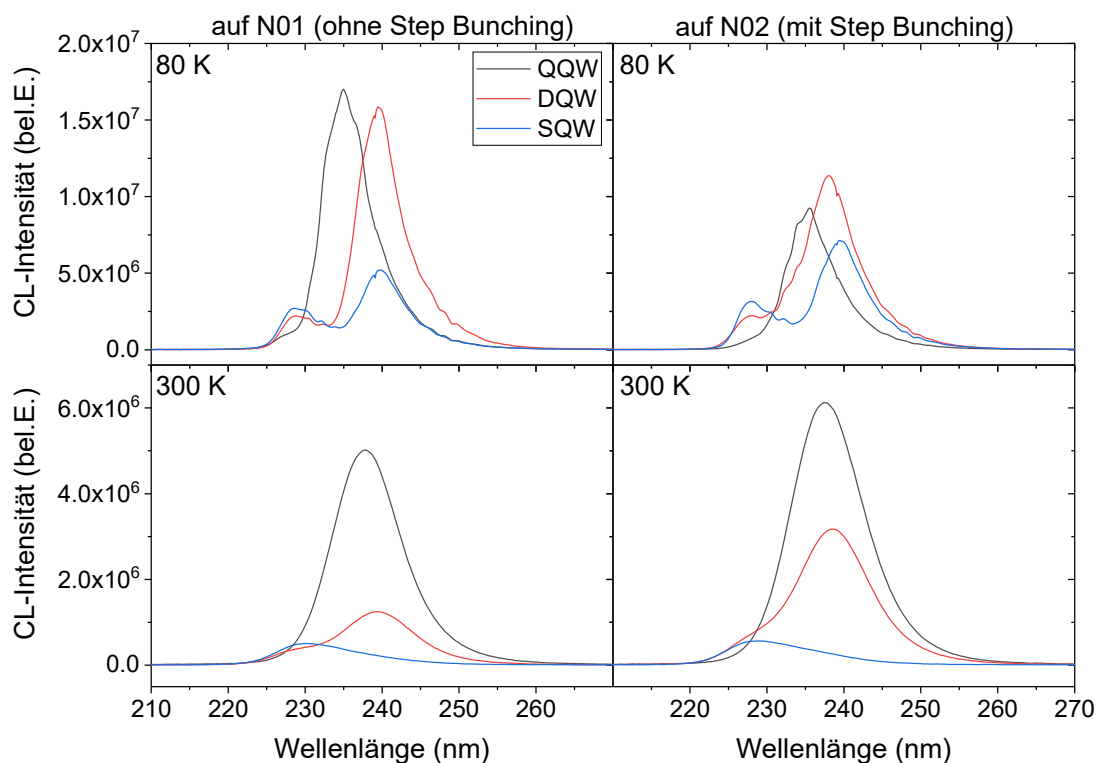


Abbildung 4.18.: Kathodolumineszenzspektren der drei Heterostrukturen auf N01 (links) und N02 (rechts), einmal bei 80 K (oben) und bei Raumtemperatur (unten). (Messungen durchgeführt von Dr. Ute Zeimer.)

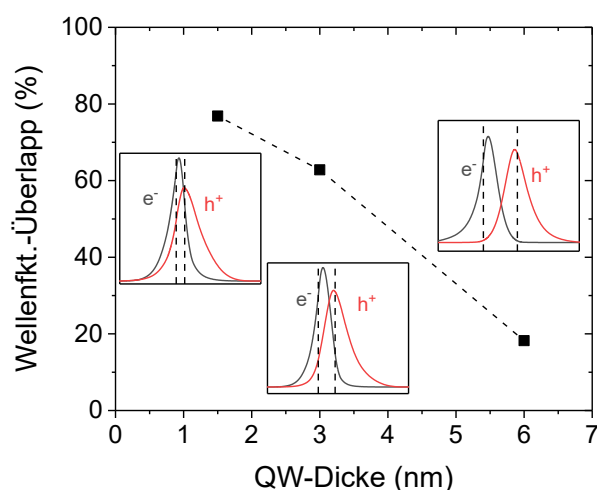


Abbildung 4.19.: Berechneter Überlapp der Elektronen- und Lochwellenfunktion in Abhängigkeit von der Quantenfilmdicke für die hier untersuchten Heterostrukturen im ungepumpten Zustand. Die Insets zeigen Elektron- und Lochwellenfunktion innerhalb eines Quantenfilms (gestrichelte Linien). Die Berechnungen wurden mit Silvaco Atlas durchgeführt.

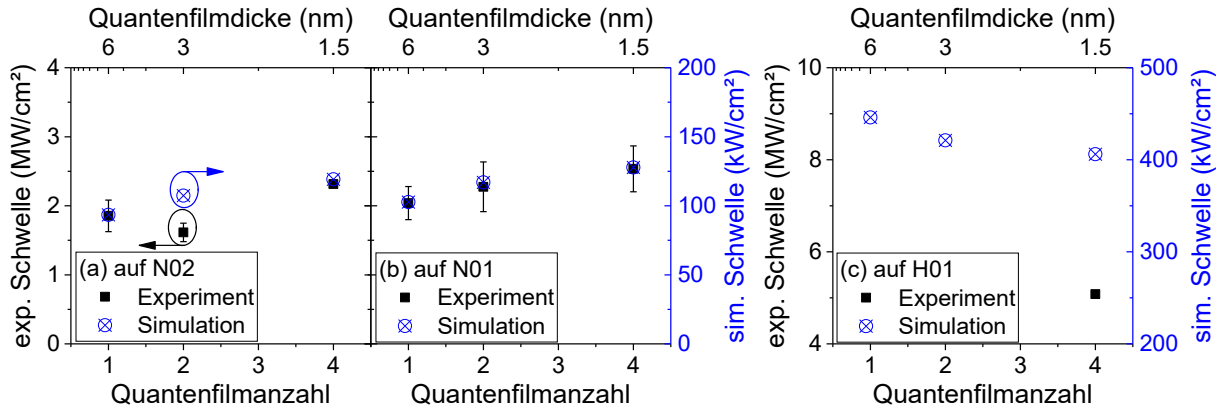


Abbildung 4.20.: Experimentell bestimmte und über Simulationen berechnete Laserschwelen für die SQW, DQW und QQW-Heterostruktur auf (a) N02, (b) N01 und (c) H01.

Höhe von 155 cm^{-1} im Resonator angenommen. Die aus den CL-Messungen ersichtlichen Unterschiede in der Homogenität der Quantenfilme wurden in den Simulationen nicht berücksichtigt, da eine adäquate Implementierung nur schwer möglich gewesen wäre. Experimentelle und simulierte Schwellen unterscheiden sich ungefähr um einen Faktor 20, zeigen unter Berücksichtigung dieses konstanten Faktors aber ein sehr ähnliches Verhalten. Auf N02 und N01 erhöht sich auch in der Simulation die Schwelle mit zunehmender Quantenfilmanzahl, wobei die im Experiment geringere Schwelle des DQW auf N02 nicht korrekt wiedergegeben wird. Auf H01 zeigt die Simulation die geringste Schwelle für den QQW, d.h. der auf den Templates mit niedriger Versetzungsdichte beobachtete Trend kehrt sich um. Dies passt zu dem experimentellen Befund, dass nur der QQW überhaupt Lasing zeigt, auch wenn die Simulation die Schwellenunterschiede sicherlich unterschätzt, da sonst der abrupte Wechsel von ‚Lasing‘ zu ‚kein Lasing‘ nicht zu erklären wäre. Der hohe absolute Unterschied zwischen den simulierten und den experimentellen Schwellen wird zum einen durch die in Abschnitt 2.2.5 gemachten Aussagen zur Schwierigkeit bei der Bestimmung optisch gepumpter Laserschwelen relativiert (gemessene Schwellen potentiell Faktor 2-10 zu hoch). Zum anderen erfolgte die Simulation nur eindimensional, d.h. die laterale Modenverteilung und die Gewinnführung in dieser Richtung wurden nicht berücksichtigt. Es ist jedoch zu erwarten, dass diese zu einer Erhöhung der Schwellen in der Simulation führen [212, 213].

Für die Abnahme der Schwelle auf N01 und N02 mit abnehmender Quantenfilmanzahl/zunehmender Quantenfilmdicke erscheinen drei Ursachen wahrscheinlich. Zum einen erhöht sich wie bereits bei der Auswertung der CL-Messungen diskutiert mit der Quantenfilmdicke auch der Einfluss des QCSE. Als zweiter relevanter Effekt kommt die nichtstrahlende Rekombination an Heterogrenzflächen infrage, die bei der QQW-Struktur allein aufgrund der größeren Anzahl von Grenzflächen zu einem größeren Ladungsträgerverlust führen sollte. Drittens führt die inhomogene Ladungsträgergeneration bei optischer Anregung in DQW und QQW wie bereits in Abschnitt 4.1 beschrieben zu einer inhomogenen Verteilung der Ladungsträger auf die Quantenfilme. Abbildung 4.21(a) zeigt die in der Simulation berechneten Elektronen- und Löcherdichten in den QWs der drei Heterostrukturen auf

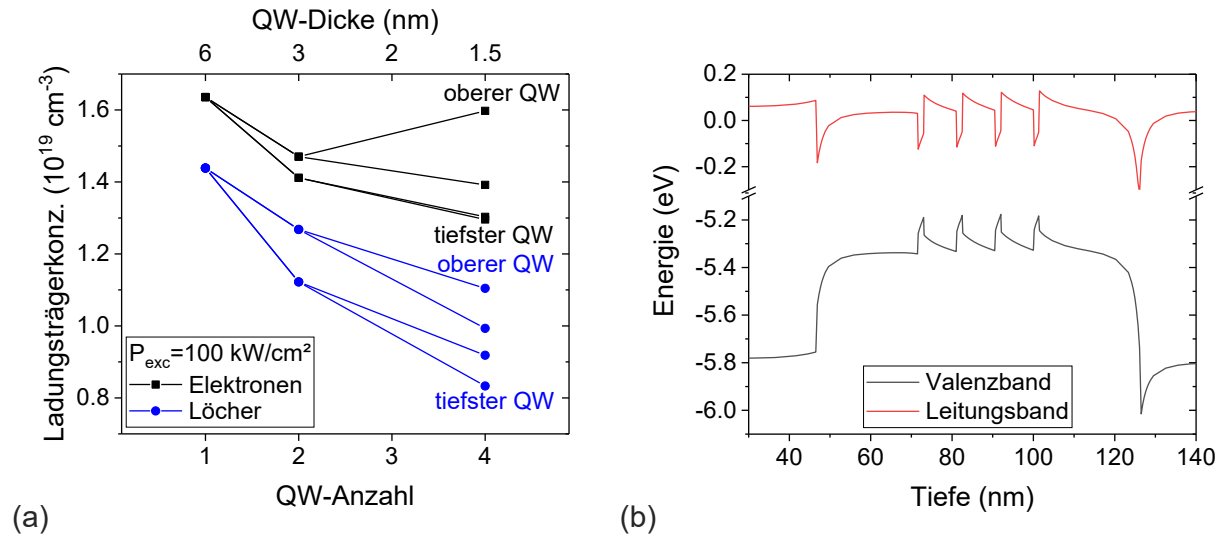


Abbildung 4.21.: (a) Simulierte Verteilung der Elektronen- und Löcherdichten in den QWs der drei Heterostrukturen SQW, DQW und QQW auf N01 bei einer Anregungsleistungsdichte von 100 kW/cm^2 . (b) Bandverlauf in der QQW-Struktur bei derselben Anregungsleistung zur Verdeutlichung der durch den QCSE verursachten Potentialbarrieren zwischen den QWs.

dem N01-Template bei einer Anregungsleistungsdichte von 100 kW/cm^2 , d.h. unterhalb der Laserschwelle. Wie erwartet ist die Ladungsträgerkonzentration in den tieferen QWs deutlich geringer als in den oberen. Der Effekt wird durch den QCSE begünstigt, da die Verkipfung der Bänder zu Potentialbarrieren zwischen den Quantenfilmen führt (Abb. 4.21(b)). Die Verteilung ist für Löcher aufgrund ihrer kürzeren Diffusionslängen $L_{n,p}$ inhomogener als für Elektronen ($L_{n,p} = \sqrt{D_{n,p}\tau_{nr}}$, vgl. Tab. A.1). Durch die erhöhte nichtstrahlende Rekombination an Heterogrenzflächen sinkt auch die mittlere Ladungsträgerdichte in den Quantenfilmen mit zunehmender QW-Anzahl ab. Beim QQW liegt der oberste Quantenfilm deutlich näher an der Oberfläche als bei SQW und DQW und damit in einem Bereich mit wesentlich höherer Ladungsträgergenerationsrate, was die erhöhte Elektronendichte in diesem QW erklärt.

Um zu prüfen, ob die inhomogene Ladungsträgerverteilung, der QCSE oder die Grenzflächenrekombination für den Anstieg der Laserschwellen mit der QW-Anzahl verantwortlich sind, wurde die Simulationen für die Heterostrukturen auf N01 einmal ohne Berücksichtigung der Polarisationsfelder, d.h. ohne QCSE und einmal ohne Berücksichtigung der Grenzflächenrekombination wiederholt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.22(a) dargestellt und zeigen, dass ohne QCSE die Schwelle für alle Laserstrukturen absinkt, der ursprüngliche Trend aber erhalten bleibt, während ohne nichtstrahlende Grenzflächenrekombination der QQW die geringste Schwelle zeigt. Aufgrund dieser Trendumkehr kann die inhomogene Anregung der Quantenfilme als Ursache für den Schwellenverlauf ausgeschlossen werden. Dass auch der QCSE nicht ausschlaggebend ist, scheint zunächst im Widerspruch zu den CL-Ergebnissen zu stehen, die einen deutlich Einfluss des QCSE zeigen. Vergleicht man jedoch die in der Simulation berechneten emittierten Leistungen unterhalb der Schwelle, so zeigt sich in Übereinstimmung mit den CL-Messungen, dass diese für niedrige Anregungsleistungen beim QQW und DQW höher sind als beim SQW

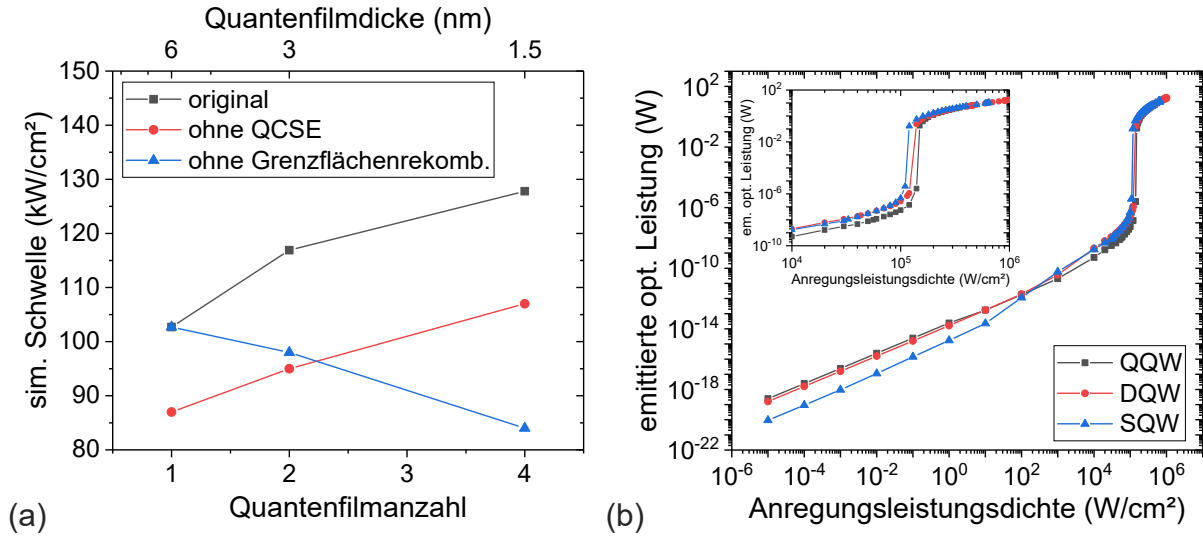


Abbildung 4.22.: (a) Aus der Simulation ermittelte Schwellen für die Heterostrukturen auf N01 unter Berücksichtigung von Polarisationsfeldern und Grenzflächenrekombination (schwarz), ohne Polarisationsfelder (rot) und ohne Grenzflächenrekombination (blau). (b) Kennlinien der Heterostrukturen auf N01 ober- und unterhalb der Schwelle. Der Inset zeigt einen Ausschnitt im Bereich der Schwelle vergrößert.

(Abb. 4.22(b)). Die Simulationsergebnisse deuten daher darauf hin, dass der QCSE bei den hier untersuchten Proben insbesondere für geringe Anregungsleistungen zu einem Absinken der optischen Leistung mit zunehmender Quantenfilmdicke führt. Bei höheren Anregungsleistungen werden die internen Felder jedoch durch die eingebrachten Ladungsträger zunehmend abgeschirmt, sodass letztendlich die mit der Quantenfilmanzahl zunehmende nichtstrahlende Rekombination an Heterogrenzflächen dafür verantwortlich ist, dass der 6 nm dicke SQW die geringste Laserschwelle aufweist.

Das Verhalten der Laserschwelen auf N02 und H01 lässt sich anhand der simulierten Gewinnkurven (Abb. 4.23) besser verstehen. Die Gewinnkurven stellen den modalen Gewinn der Grundmode über der Anregungsleistungsdichte dar. Die optischen Verluste legen fest, bei welchem modalen Gewinn Lasing einsetzt. In der Abbildung ist jeweils markiert, welche Heterostruktur bei einem bestimmten modalen Gewinn die geringste Laserschwelle hätte. Auf N02 hat der SQW die geringste Schwelle, sofern ein modaler Gewinn von $<145 \text{ cm}^{-1}$ ausreichend ist, um die Verluste auszugleichen und Lasing zu erreichen. Für einen Gewinn zwischen 145 und 155 cm^{-1} last der DQW zuerst und darüber der QW. Für geringe optische Verluste bestimmt die Transparenzanregungsleistungsdichte die Schwelle maßgeblich. Aufgrund des konstanten Gewinnvolumens $V_{\text{gain}} = d_{\text{QW}} \times N_{\text{QW}}$ sollte diese für alle Proben annähernd konstant sein. Erst der Einfluss der Grenzflächenrekombination führt zu dem in der Simulation erkennbaren Anstieg der Transparenzdichte mit zunehmender Quantenfilmanzahl. Für hohe optische Verluste hingegen hat der maximal erreichbare Gewinn größeren Einfluss auf die Schwelle als die Transparenzdichte. Da die Zustandsdichte invers proportional zur Quantenfilmdicke ist, kann mit dünneren Quantenfilmen ein größerer Materialgewinn erzielt werden [214, S. 23], [215, S. 54]. Außerdem wird der mit der Dicke abnehmende Überlapp zwischen optischer Mode und dem einzelnen Quantenfilm in den

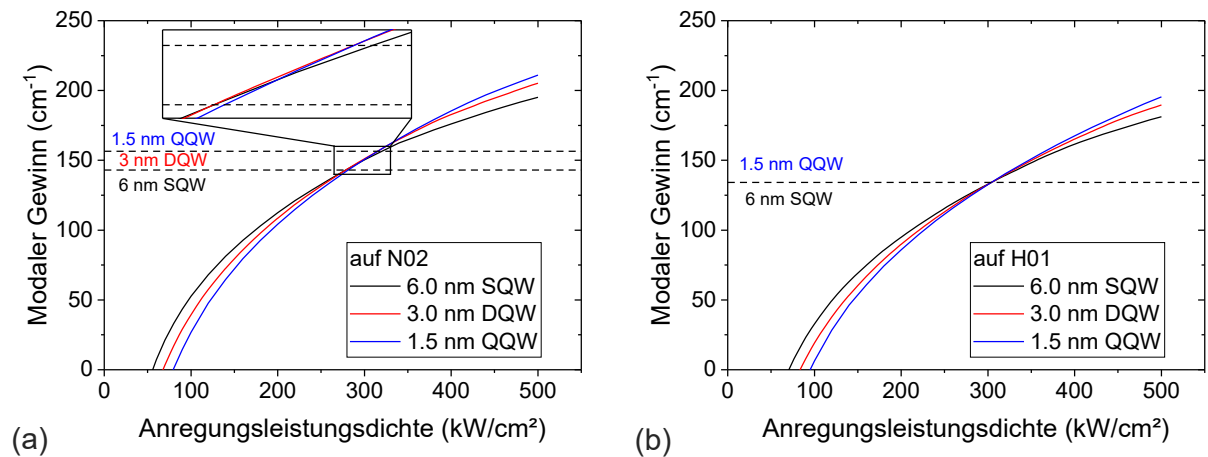


Abbildung 4.23.: Simulierte Gewinnkurven der verschiedenen Heterostrukturen auf **(a)** N02 und **(b)** H01. Es ist jeweils eingezeichnet, bei welchem modalen Gewinn welche Heterostruktur die geringste Schwelle hätte.

hier untersuchten Proben durch die größere Anzahl an Quantenfilmen ausgeglichen, sodass sich für die dünnen Quantenfilme auch ein größerer maximaler modaler Gewinn ergibt. Für N01 und N02 wurden in der Simulation interne optische Verluste von 30 cm^{-1} angenommen, sodass unter Berücksichtigung der Auskoppelverluste ein modaler Gewinn von 50 cm^{-1} notwendig ist, um Lasing zu erreichen. Daher zeigt der SQW vor DQW und QQW die geringste Schwelle. Dies stimmt auf N01 auch mit den experimentellen Daten überein. Auf N02 hat jedoch im Experiment der DQW eine geringere Schwelle. In der Simulation wurde für N02 die gegenüber N01 geringere Versetzungsdichte berücksichtigt, nicht jedoch die vermutlich aufgrund der Makrostufen erhöhten optischen Streuverluste. Würde man in der Simulation die optischen Verluste soweit erhöhen, dass der Schwellengewinn bei ca. 147 cm^{-1} liegt, so hätte der DQW vor SQW und QQW die geringste Schwelle wie im Experiment beobachtet. Allerdings wäre diese dann deutlich höher als auf N01. Daraus ergeben sich zwei Schlussfolgerungen:

1. Die Simulation mit den verwendeten Parametern ermöglicht zwar ein tieferes Verständnis der experimentell beobachteten Ergebnisse, gibt die reale Situation aber nicht exakt wieder. Eine bessere Anpassung wäre eventuell durch die Wahl anderer Parameter oder durch die Berücksichtigung weiterer Effekte möglich.
2. Eine mögliche Erklärung für die Schwellenunterschiede auf N02 ist, dass die optischen Verluste durch die Makrostufen soweit erhöht werden, dass der DQW vor SQW vor QQW die geringste Schwelle zeigt, während gleichzeitig durch die verringerte Versetzungsdichte die Schwellen aller drei Strukturen soweit abgesenkt werden, dass sie unter den auf N01 beobachteten Schwellen liegen.

Für die Heterostrukturen auf H01 sind die Gewinnkurven aufgrund der geringeren SRH-Lebensdauern etwas verschoben, die generellen Trends ändern sich jedoch nicht (Abb. 4.23(b)). Veröffentlichungen verschiedener Gruppe [138, 216, 217] deuten darauf hin, dass hohe Versetzungsdichten auch zu einer Erhöhung der optischen Verluste durch Streuung an den Versetzungen führen können. Nach der von Liao et al. [138] verwendeten Formel

sind für eine Versetzungsdichte von 10^{10} cm^{-2} Streuverluste von bis zu 140 cm^{-1} möglich, während diese bei einer TDD von 10^9 cm^{-2} nur 15 cm^{-1} betragen. Davon ausgehend, dass die optischen Verluste von 30 cm^{-1} für die niedrige TDD realistisch sind, ergäben sich für die hohe TDD damit Verluste von ca. 155 cm^{-1} . Dies führt in der Simulation dazu, dass der QQW vor dem DQW vor dem SQW die geringste Schwelle hat. Der experimentelle Befund, nach dem auf H01 nur die QQW-Struktur Lasing zeigt, deutet darauf hin, dass die Berechnungen von Liao et al. zumindest qualitativ zutreffen und die erhöhten optischen Verlusten bei den untersuchten Proben zu einer deutlichen Erhöhung der Laserschwelen führen. Die Ergebnisse stimmen außerdem mit numerischen Berechnungen von Yeo et al. überein, nach denen bei erhöhten optischen Verlusten eine größere Anzahl dünnerer Quantenfilme zu geringeren Schwellen führt [218].

4.4. Fazit

In diesem Kapitel wurde der Einfluss des Substratfehlschnitts der ELO-AlN/Saphir-Templates und des Heterostrukturdesigns auf die Lasereigenschaften untersucht. An einem ersten Satz von Laserproben auf ELO-Templates mit variierenden Fehlschnitttrichtungen wurde der Einfluss der Oberflächenmorphologie auf die Homogenität der Quantenfilmemission deutlich, da es an Makrostufen zur Anreicherung von Gallium und damit zu einer Rotverschiebung der Emissionswellenlänge kommt. Unter optischer Anregung wurde Laseremission bei einer Wellenlänge von 237 nm demonstriert. Die mit $>10 \text{ MW/cm}^2$ sehr hohen Schwellen wurden teilweise auf die große Dicke der AlN-Cap-Schicht zurückgeführt, die zu einer Ladungsträgergeneration fernab der Quantenfilme führt, sodass diese zum Teil rekombinieren bevor sie in die QWs diffundieren können.

An diese Ergebnisse anknüpfend wurde bei der zweiten Probenserie die Capdicke von 75 nm auf 20 nm reduziert und es ergaben sich deutlich geringere Laserschwelen im Bereich von 1 bis 2 MW/cm^2 . Heterostrukturen mit variierender Quantenfilmdicke/-anzahl und variierender Dotierung wurden auf ELO-Templates mit Fehlschnittwinkeln von entweder 0.1° oder 0.2° in Saphir-m-Richtung gewachsen. Für einen Fehlschnitt von 0.2° bilden sich $>15 \text{ nm}$ hohe Stufen an den Koaleszenzlinien der ELO-Streifen, an denen es zu der bereits zuvor beobachteten Galliumakkumulation kommt. Gleichzeitig sind die Versetzungen an der Koaleszenzgrenze an die Makrostufe gepinnt, sodass sie mit dieser diagonal durch die Heteroschichten verlaufen, andere Durchstoßversetzungen schneiden und so die Versetzungsdichte insgesamt reduzieren. Auf dem 0.1° verkippten Templates bilden sich keine Makrostufen, sondern nur leichte Höhenundulationen, sodass sich eine homogenere Quantenfilmemission ergibt. Die Versetzungen an den Koaleszenzgrenzen propagieren vertikal und es kommt zu keiner weiteren Versetzungsdichtereduktion. Während eine erhöhte Quantenfilmmhomogenität sich typischerweise positiv auf die Laserschwelle auswirkt, wirken Versetzungen als Zentren nichtstrahlender Rekombination und optische Streuzentren negativ. Aufgrund dieser gegensätzlichen Effekte zeigte die Hälfte der Proben geringere Laserschwelen auf dem 0.1° verkippten Template, während die andere Hälfte auf dem 0.2° verkippten Template geringere Schwellen aufwies. Letztendlich hängt es daher von der exakten Ausprägung der Templateeigenschaften und der Heterostruktur ab, ob

Makrostufen zu einer Verringerung oder Erhöhung der Schwelle führen. Da außerdem die Herstellerangaben zum Fehlschnitt in der Regel nicht ausreichend genau sind, um den gewünschten Wachstumsmodus zu garantieren, scheint die Abkehr von strukturierten ELO-Templates und der Wechsel hin zu unstrukturierten Templates mit entsprechend geringen Versetzungsdichten oder zu einkristallinen AlN-Substraten ratsam.

Im letzten Abschnitt wurde der Einfluss von Quantenfilmanzahl (1–4) und -dicke (1.5–6 nm) auf die Laserschwelle untersucht, wobei durch entgegengesetzte Variation beider Parameter das Gewinnvolumen konstant gehalten wurde. Durch Wachstum auf ELO-Templates mit variierender Versetzungsdichte konnte zusätzlich der Einfluss der Verluste auf das optimale Design der aktiven Zone analysiert werden. Die Ergebnisse zeigen, dass für geringe optische Verluste ein Einzel- oder Doppelquantenfilm aufgrund der verringerten Anzahl von Heterogrenzflächen vorteilhaft für geringe Laserschwellen ist, da die nichtstrahlende Rekombination an den Grenzflächen einen signifikante Verlustmechanismus ausmacht. Der Quantum Confined Stark Effect hingegen zeigt zwar bei geringen Anregungsleistungen einen deutlichen Einfluss auf die strahlende Rekombination, ist aber für die Laserschwellen der hier untersuchten Proben nicht entscheidend, da die Polarisationsfelder bei den für Lasing notwendigen Ladungsträgerdichten abgeschirmt werden. Außerdem deuten die Resultate darauf hin, dass hohe Versetzungsdichten nicht nur aufgrund der erhöhten SRH-Rekombination nachteilig sind, sondern auch zu einer Erhöhung der optischen Streuverluste im Resonator führen können. Auf den Templates mit höheren Verlusten wies der Vierfachquantenfilm aufgrund der größeren erreichbaren Verstärkung eine niedrigere Laserschwelle auf.

Kapitel 5.

Einfluss von Siliziumdotierung auf Quanteneffizienz und Laserschwelle

In Abschnitt 3.3 wurde gezeigt, dass die Dotierung mit Silizium einen positiven Einfluss auf die Photolumineszenzeigenschaften von AlGaIn-Schichten haben kann. Es konnte jedoch nicht abschließend geklärt werden, welcher physikalische Effekt den beobachteten Resultaten zugrunde liegt. Im folgenden Kapitel soll daher zum einen untersucht werden, ob die Siliziumdotierung auch zu einer Verringerung der Schwelle von optisch gepumpten Lasern führen kann. Zum anderen soll versucht werden zu klären, welche physikalischen Effekte für die beobachteten Änderungen verantwortlich sind. Um diese Fragestellungen beantworten zu können, wurde in insgesamt 13 Laserstrukturen die Siliziumkonzentration zwischen $6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ variiert, wobei entweder nur die Quantenfilme, nur die Quantenbarrieren oder die gesamte Heterostruktur dotiert wurden (Abb. 5.1). Die Dotierung unterschiedlicher Schichten sollte Rückschlüsse auf die wirksamen physikalischen Effekte zulassen, da z.B. eine durch das Silizium verursachte verstärkte Ladungsträgerlokalisierung oder donatorgebundene Exzitonen nicht wirksam werden, wenn nur die Barrieren dotiert sind, während beispielsweise eine Erhöhung der Dichte freier Ladungsträger in den Quantenfilmen auch bei Dotierung der Barrieren stattfindet.

Aufgrund der Ergebnisse in Kapitel 4 wurde die Heterostruktur mit einem Doppelquantenfilm und einer 20 nm dünnen AlN-Cap-Schicht gewachsen. Die Wachstumsbedingungen wurden gemäß den Erkenntnissen aus Kapitel 3.2 geändert, um eine möglichst niedrige

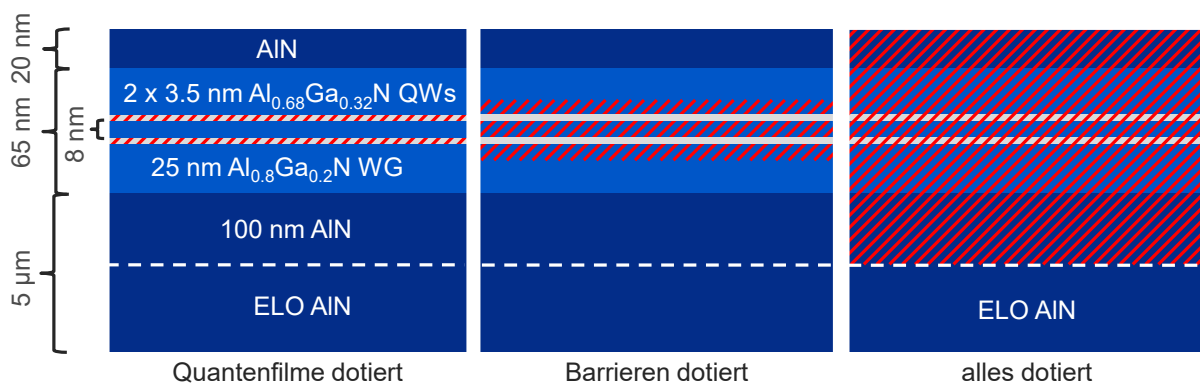


Abbildung 5.1.: Schichtstruktur und Dotierprofile der Laserheterostrukturen. Die schraffierten Bereiche zeigen an, welche Schichten mit Silizium dotiert wurden.

Tabelle 5.1.: Übersicht über die für die einzelnen Heterostrukturen verwendeten Templatewafer A-G (gleicher Buchstabe = gleiches Template). Die Templates wurden so verteilt, dass (a) der Einfluss der Dotierkonzentration in einer Schicht verglichen werden kann und (b) identische Dotierkonzentrationen in unterschiedlichen Schichten.

	dotierte Schichten	Siliziumkonzentration (cm^{-3})				
		6×10^{16}	1×10^{17}	5×10^{17}	1×10^{18}	1×10^{19}
(a)	Quantenfilme		A	A	A	D
	Barrieren		B	B	B	B
	alles	C	C	C	C	G
	dotierte Schichten	Siliziumkonzentration (cm^{-3})				
		6×10^{16}	1×10^{17}	5×10^{17}	1×10^{18}	1×10^{19}
(b)	Quantenfilme		D	E	F	G
	Barrieren		D	E	F	G
	alles	F	D	E	F	G

Siliziumhintergrunddotierung von $6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ zu erreichen. Um den Einfluss von Variationen der Templatewafereigenschaften besser einschätzen zu können, wurde jede Heterostruktur auf 2 Viertelwafern gewachsen. Der Vergleich der identischen Heterostrukturen auf unterschiedlichen Templates ermöglicht eine Abschätzung des Einflusses des Templatewafers, während das Wachstum unterschiedlicher Heterostrukturen auf Vierteln desselben Templates dessen Einfluss eliminiert. Die Viertelwafer wurden daher so eingesetzt, dass einmal der Einfluss unterschiedlicher Dotierkonzentrationen in derselben Schicht verglichen werden kann und einmal der Unterschied zwischen identischen Dotierkonzentrationen in verschiedenen Schichten (vgl. Tab. 5.1).

Die Laserschwellen aller Proben wurden unter optischer Anregung mit einem 193 nm ArF-Excimerlaser ermittelt. Außerdem wurden in temperaturabhängigen Photolumineszenzmessungen die interne Quanteneffizienz und die spektrale Linienbreite bestimmt. Einige Proben wurden im Rasterelektronenmikroskop mittels Kathodolumineszenz untersucht.

5.1. Einfluss der Dotierhöhe

Zunächst soll der Einfluss der Dotierhöhe auf die Lasereigenschaften untersucht werden. Dazu werden die Dotierung der Quantenfilme, Barrieren und der gesamten Heterostruktur separat voneinander betrachtet. Es werden nur die Proben analysiert, die mit der in Tabelle 5.1(a) dargestellten Templateverteilung gewachsen wurden.

5.1.1. Quantenfilmdotierung

Abbildung 5.2 zeigt den Einfluss der Si-Dotierkonzentration auf die Laserschwelle, die interne Quanteneffizienz und die spektrale Linienbreite für die Proben, bei denen nur die Quantenfilme dotiert wurden.

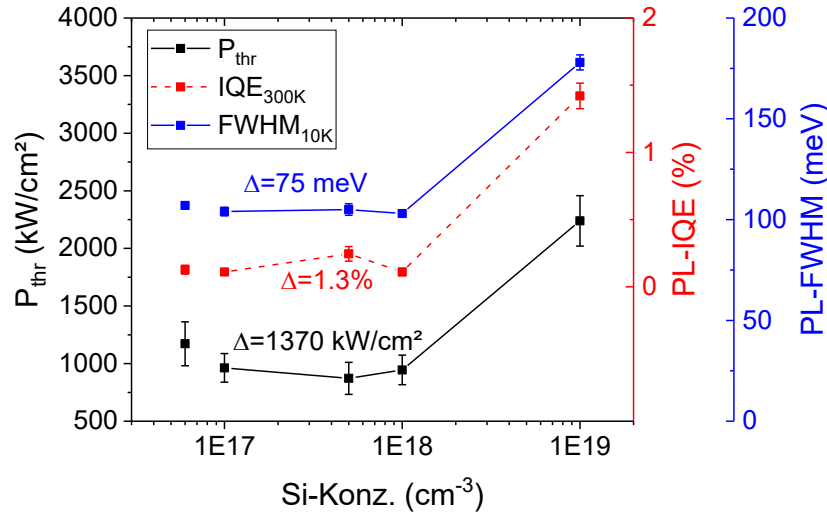


Abbildung 5.2.: Laserschwelle unter optischer Anregung, PL-IQE und spektrale Halbwertsbreite bei 10 K aufgetragen über der Siliziumkonzentration in den Quantenfilmen für die Proben, bei denen nur die Quantenfilme dotiert sind. Die Datenpunkte bei einer Si-Konzentration von $6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ stellen zum Vergleich die Ergebnisse für eine nominell undotierte Heterostruktur dar. (PL-Messungen durchgeführt von Dr. Carsten Netzel.)

Es zeigt sich gegenüber der undotierten Heterostruktur eine leichte Verringerung der Laserschwelle, wobei diese bis zu einer Siliziumkonzentration von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ kaum variiert, sich jedoch für $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ mehr als verdoppelt. Obwohl die Änderungen zwischen $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ im Rahmen der statistischen Schwankung der Messergebnisse insignifikant sind, verhalten sich diese indirekt proportional zur IQE, d.h. eine Erhöhung der IQE korreliert mit einer Verringerung der Schwelle (während die Linienbreite quasi konstant bleibt). Der positive Zusammenhang zwischen IQE und Laserschwelle ist in der Literatur vielfach beschrieben worden [219–221]. Die hier beobachtete Korrelation deutet daher darauf hin, dass die Variation der Laserschwellen real ist und die geringste Schwelle für eine Siliziumkonzentration von $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ in den Quantenfilmen erreicht wird. Dies passt sehr gut zu den Photolumineszenz-Ergebnissen aus Abschnitt 3.3, aber auch zu Resultaten von Chichibu et al. [154, 180], die sowohl eine Verringerung der Gruppe-III-Vakanzen und eine damit einhergehende Erhöhung der IQE als auch eine verbesserte laterale Quantenfilmhomogenität für Siliziumkonzentrationen im Bereich von ca. $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ zeigen. Kathodolumineszenz-Mappings der hier untersuchten Proben zeigen ebenfalls eine leichte Abnahme der Wellenlängenvariation für Si-Konzentrationen bis $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ (Abb. 5.3). Die Unterschiede sind allerdings gering und könnten auch zufälliger Natur sein.

Für eine Dotierkonzentration von $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ steigen sowohl die Schwelle als auch die IQE an. Dieses Verhalten lässt sich erst unter Berücksichtigung der spektralen Linienbreite der PL verstehen, welche für $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ebenso wie die Wellenlängenverschiebung in der CL stark ansteigt, da die zunehmende Dichte von Siliziumatomen die Bandstruktur lokal verzerrt und so die Inhomogenität der Bandlücke in den Quantenfilmen erhöht. Dies führt einerseits zu einer größeren FWHM in der PL und andererseits zu einer verstärkten Lokalisation der Ladungsträger, sodass diese nicht zu nichtstrahlenden Rekombinationszentren

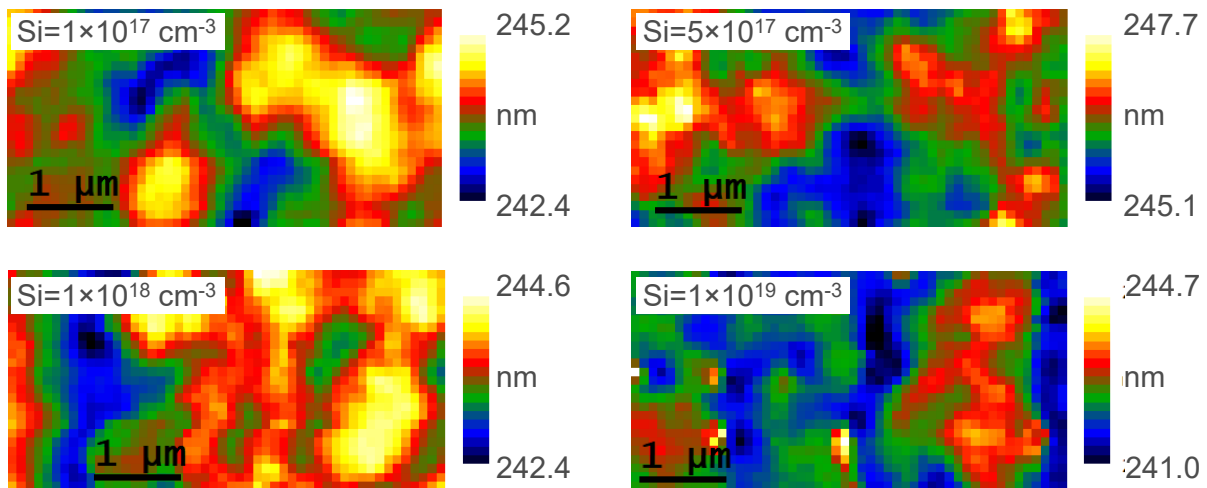


Abbildung 5.3.: Kathodolumineszenz-Mappings der Emissionswellenlängen der Heterostrukturen mit dotierten Quantenfilmen, aufgenommen bei 80 K in einem $5 \times 2.5 \mu\text{m}^2$ großen Bereich. Die Wellenlängenvariation beträgt 2.8 nm ($1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), 2.6 nm ($5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), 2.2 nm ($1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) und 3.7 nm ($1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$). (Messungen durchgeführt von Dr. Ute Zeimer.)

diffundieren können. Dadurch ergibt sich zwar eine erhöhte IQE [222, 223], die Inhomogenität der Quantenfilme wirkt sich allerdings in der Regel negativ auf die Laserschwelle aus [203, 204, 224, 225].

5.1.2. Barrierendotierung

Werden ausschließlich die Barrieren dotiert, so ergibt sich gegenüber der nominell undotierten Struktur zunächst eine leichte Verringerung der Laserschwelle, die dann jedoch mit zunehmender Siliziumkonzentration ansteigt (Abb. 5.4). Im Gegensatz zur Quantenfilmdotierung ist hier also höchstens für die geringste Dotierung eine Verringerung der Laserschwelle durch das Silizium zu erkennen, wobei selbst dieser Effekt gegenüber der Messunsicherheit sehr gering ist. Dies passt zu der im vorigen Abschnitt aufgestellten These, dass die Verringerung der V_{III} sowie eventuell eine Homogenisierung der Quantenfilmzusammensetzung für die beobachtete Schwellenverringerng bei Dotierung der QWs verantwortlich sind, da beide Effekte hier in den Barrieren auftreten würden und damit kaum Einfluss auf die Rekombination in den Quantenfilmen haben. In Übereinstimmung damit variiert die Peakwellenlänge in den CL-Mappings nur wenig und ohne eindeutigen Trend (Abb. 5.5). Der verringerte Einfluss der Dotierung zeigt sich auch darin, dass die Laserschwelle für eine Si-Konzentration von $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ im Gegensatz zu den Ergebnissen bei der QW-Dotierung kaum ansteigt. Allerdings ist die IQE mit mehr als 12 % gegenüber 0.8 % bei einer Si-Konzentration von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ deutlich erhöht. Eine mögliche Erklärung dafür ist die durch die Dotierung erhöhte Konzentration freier Ladungsträger im Quantenfilm, die zu einer höheren strahlenden Rekombinationsrate führen sollte (vgl. Abschnitt 3.3, [179, S. 207f]). Abbildung 5.6 zeigt, dass die theoretischen Berechnungen für diesen Effekt gut mit der experimentellen IQE-Entwicklung übereinstimmen. Außerdem wird deutlich, dass wie auch im Experiment beobachtet keine Auswirkungen dieses

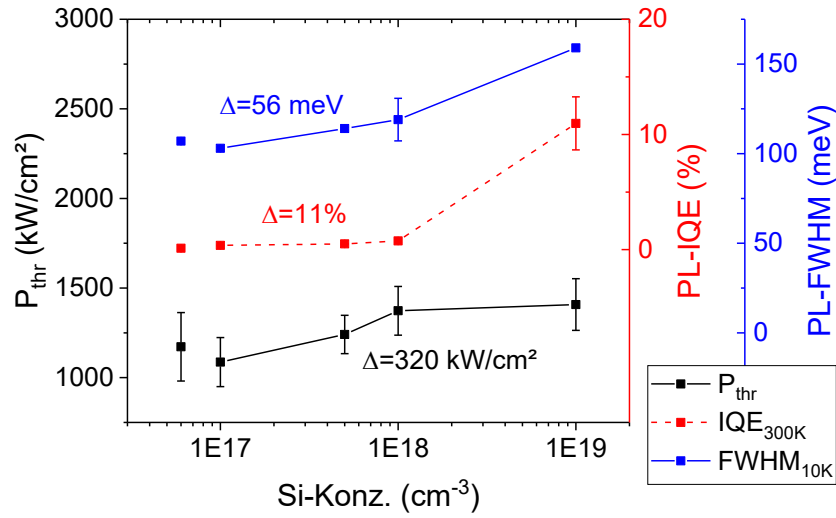


Abbildung 5.4.: Laserschwelle unter optischer Anregung, PL-IQE und spektrale Halbwertsbreite bei 10 K aufgetragen über der Siliziumkonzentration in den Quantenbarrieren für die Proben, bei denen nur die Barrieren dotiert sind. Die Datenpunkte bei einer Si-Konzentration von $6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ stellen zum Vergleich die Ergebnisse für eine nominell undotierte Heterostruktur dar. (PL-Messungen durchgeführt von Dr. Carsten Netzel.)

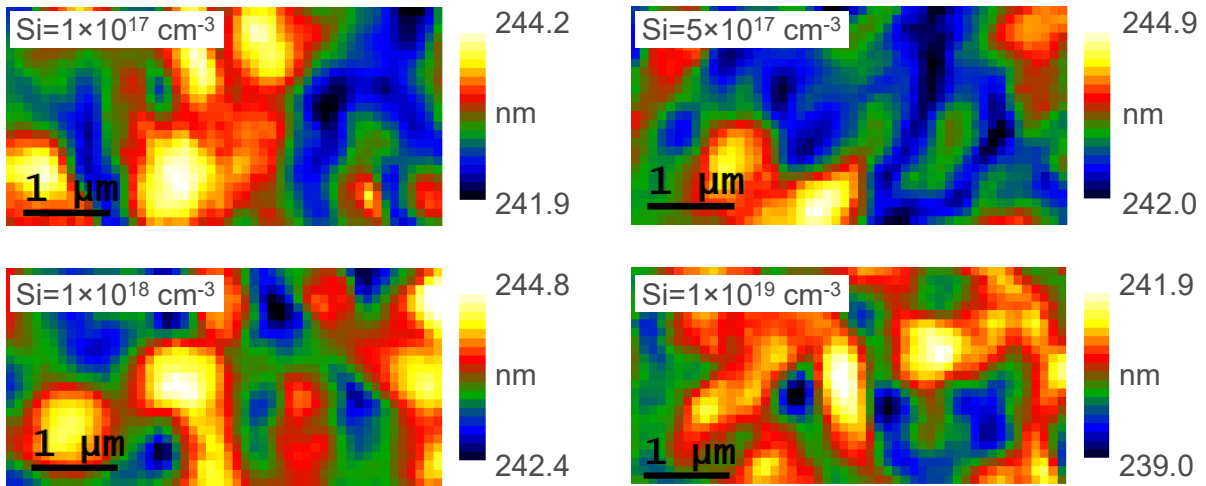


Abbildung 5.5.: Kathodolumineszenz-Mappings der Emissionswellenlängen der Heterostrukturen mit dotierten Barrieren, aufgenommen bei 80 K in einem $5 \times 2.5 \mu\text{m}^2$ großen Bereich. Die Wellenlängenvariation beträgt 2.3 nm ($1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), 2.9 nm ($5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), 2.5 nm ($1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) und 2.9 nm ($1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$). (Messungen durchgeführt von Dr. Ute Zeimer.)

Effekts auf die Laserschwelle zu erwarten sind, da die durch optische Anregung injizierte Ladungsträgerdichte wesentlich höher ist als die durch die Siliziumdotierung erzeugte. Als Ursache für die mit der Siliziumkonzentration in den Barrieren leicht ansteigende Laserschwelle kommt die ebenfalls ansteigende spektrale Linienbreite in Frage. Eine derartige Verbreiterung wurde bereits mehrfach für Si-dotierte AlGaIn- und GaN-Schichten berichtet und entweder mit Si-induzierten Fluktuationen der Bandpotentiale [226, 227] oder mit einer durch das Silizium verursachten erhöhten Rauigkeit und Inhomogenität

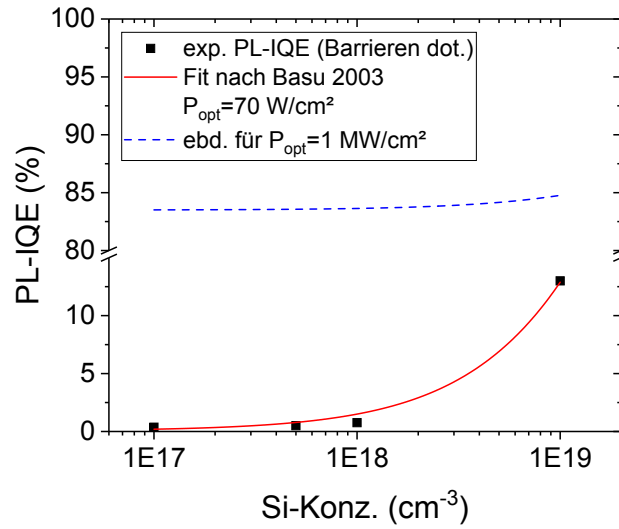


Abbildung 5.6.: Vergleich der experimentell ermittelten PL-IQE mit der theoretischen Abhängigkeit der IQE von der Konzentration freier Ladungsträger nach Basu et al. [179, S. 207f] (vgl. Abschnitt 3.3, $\tau_{nr} = 250$ ps, $B = 2 \times 10^{-10}$ cm³ s⁻¹, $p_0 = 0$ cm⁻³). Die rote Kurve wurde für die tatsächliche Anregungsleistung bei der PL berechnet (Ladungsträgerkonz. δn in QWs 10^{16} cm⁻³), die blaue Kurve zeigt den Fall unter Anregung nahe der Laserschwelle ($\delta n = 10^{20}$ cm⁻³). Zur Abschätzung der Ladungsträgerdichte siehe Anhang S. 107.

der Zusammensetzung erklärt [228, 229]. Auch wenn bei den hier untersuchten Proben die emittierenden Quantenfilme undotiert sind, können die genannten Effekte dennoch das Emissionsspektrum beeinflussen. Potentialfluktuationen in der Nähe der Grenzflächen verschieben die Energieniveaus in den Quantenfilmen, erhöhte Rauigkeiten setzen sich in die Quantenfilme fort. Auch wenn dies zunächst im Widerspruch zu den Ergebnissen für die Quantenfilmdotierung zu stehen scheint, ist es durchaus möglich, dass sich aufgrund der größeren Dicke der dotierten Schicht hier andere Effekte ergeben. Beispielsweise ist eine Siliziumakkumulation an der Kristalloberfläche während des Wachstums denkbar, die ab einer bestimmten Bedeckung zu Aufräumung führt. Neben der Beeinflussung der Materialqualität könnte auch Band Filling an der Verbreiterung des Spektrums beteiligt sein, wenn die Dotierelektronen in die Quantenfilme relaxieren. Auch in diesem Fall ergäbe sich ein stärkerer Effekt als bei Quantenfilmdotierung, da mehr Dotierelektronen vorhanden sind. Allerdings sollte bei Band Filling in Quantenfilmen die spektrale Verbreiterung direkt proportional zur Ladungsträgerdichte sein [230], was hier nicht der Fall ist. Der Effekt kann also keine alleinige Erklärung für die beobachtete Erhöhung der Linienbreite liefern.

5.1.3. Dotierung aller Schichten

Die Serie der Proben, in denen die gesamte Heterostruktur dotiert wurde, weist drei Besonderheiten auf. Erstens gibt es hier einen Datenpunkt für eine Siliziumkonzentration von 6×10^{16} cm⁻³, was der Hintergrunddotierung entspricht. Zweitens gibt es in Abbildung 5.7 keine Ergebnisse für eine Dotierung von 1×10^{19} cm⁻³, da die Probe kein Lasing zeigte und die PL-Spektren soweit blauverschoben waren, dass sie aufgrund des verwendeten

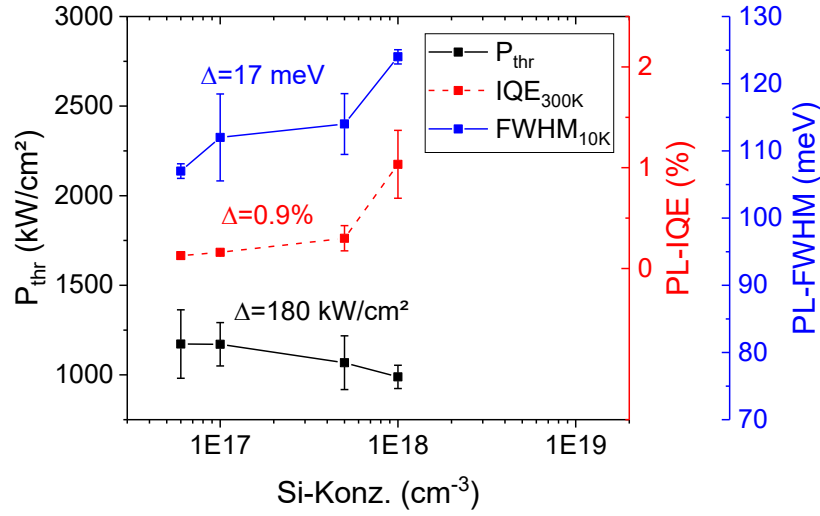


Abbildung 5.7.: Laserschwelle unter optischer Anregung, PL-IQE und spektrale Halbwertsbreite bei 10 K aufgetragen über der Siliziumkonzentration für die Proben, bei denen die gesamte Heterostruktur dotiert ist. (PL-Messungen durchgeführt von Dr. Carsten Netzel.)

Kantenfilters bei 229 nm nicht auswertbar waren. Drittens ist die Variation von Schwelle, IQE und FWHM verglichen mit den vorher untersuchten Proben sehr gering.

Der leichte Abfall der Laserschwellen mit steigender Dotierkonzentration korreliert wie schon bei der Quantenfilmdotierung mit einer Zunahme der IQE, sodass auch hier von einer Verringerung der V_{III} als Ursache ausgegangen werden kann. Die Abnahme der Schwelle selbst für eine Siliziumkonzentration von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ kann mit diesem Effekt basierend auf den Ergebnissen von Chichibu et al. [154] allerdings nicht erklärt werden, da diese für $\text{Si} > 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ eine Zunahme der V_{III} und eine Abnahme der CL-IQE zeigen. Es ist daher möglich, dass die hier beobachtete, innerhalb der Fehlerbalken insignifikante, Schwellenabnahme Messungenauigkeiten geschuldet und nicht real ist. Die Erhöhung der IQE wiederum kann durch die erhöhte Dichte freier Ladungsträger erklärt werden, welche sich nicht auf die Laserschwelle auswirkt (vgl. Abb. 5.6). Der Anstieg der spektralen Linienbreite ist mit 17 meV sehr gering und wird vermutlich durch Band Filling, mit der Dotierkonzentration ansteigende Potentialfluktuationen oder eine Kombination aus diesen Effekten verursacht. Band Filling erscheint hier als Ursache im Gegensatz zur Barrierendotierung etwas wahrscheinlicher, da zum einen die verfügbare Ladungsträgermenge noch einmal erhöht ist und zum anderen die beobachtete Abhängigkeit eher mit dem theoretisch erwarteten linearen Trend übereinstimmt. In den CL-Mappings in Abbildung 5.8 zeigt sich nur für die mit $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ dotierte Probe eine leicht erhöhte Variation der Peakwellenlänge. Auffallend ist allerdings die starke Blauverschiebung der Wellenlänge für eine Siliziumkonzentration von $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Das für $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ebenfalls dargestellte Sekundärelektronenbild zeigt außerdem eine hohe Dichte von Löchern/Pits auf der Oberfläche, die bei den anderen Proben nicht auftraten. Während für die Bildung von Pits im Allgemeinen verschiedenste Ursachen möglich sind [187, 231–233], ist in diesem Fall

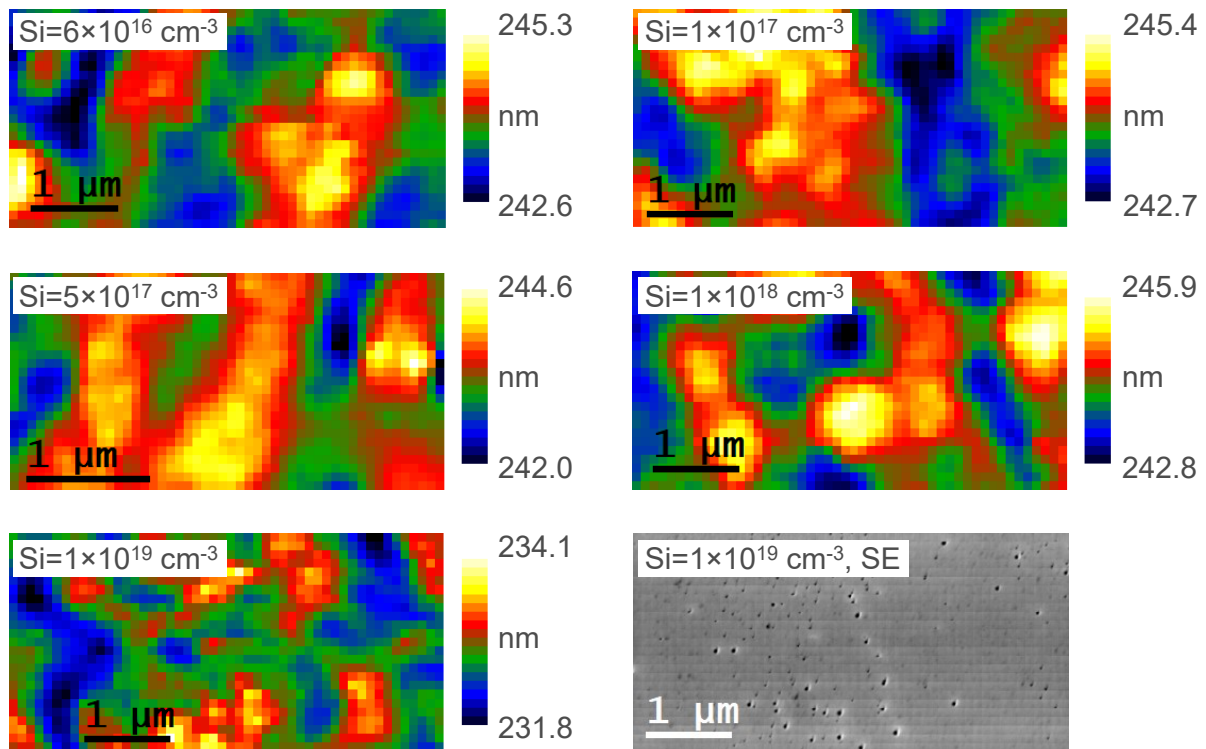


Abbildung 5.8.: Kathodolumineszenz-Mappings der Emissionswellenlängen der vollständig dotierten Heterostrukturen, aufgenommen bei 80 K in einem $5 \times 2.5 \mu\text{m}^2$ großen Bereich. Die Wellenlängenvariation beträgt 2.7 nm ($6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$), 2.7 nm ($1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), 2.6 nm ($5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), 3.1 nm ($1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) und 2.3 nm ($1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$). Für die höchste Dotierkonzentration ist außerdem eine Sekundärelektronenaufnahme abgebildet. (Messungen durchgeführt von Dr. Ute Zeimer.)

die Ausbildung an Durchstoßversetzungen unter Stabilisierung der $(10\bar{1}1)$ -Flächen durch Si-Segregation auf diesen am wahrscheinlichsten [155, 188, 234, 235].

Um die Ursache der Blauverschiebung sowie der nicht erreichbaren Lasertätigkeit zu klären, wurden STEM-Aufnahmen der mit Si-Konzentrationen von $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ und $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ dotierten Heterostrukturen angefertigt. Ausschnitte, die die aktive Zone zeigen, sind in Abbildung 5.9(a-c) dargestellt. Für Dotierkonzentrationen von $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ sind wohldefinierte Quantenfilme mit einer Dicke von 3.5 nm, abrupten Grenzflächen und einem deutlichen Materialkontrast erkennbar. Für die höchste Dotierung von $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ hingegen sind die Quantenfilme kaum erkennbar, ihr mittlerer Galliumgehalt ist deutlich geringer und die Grenzflächen sind nicht klar definiert. Es ist bekannt, dass ein dünner Siliziumfilm auf der AlGaIn-Oberfläche während des Wachstums als Antisurfactant wirkt, dreidimensionales Wachstum begünstigt und daher z.B. für das Wachstum von Quantenpunkten genutzt werden kann [236–239]. Derselbe Effekt tritt mit hoher Wahrscheinlichkeit hier auf. Während des Wachstums sammelt sich an der Kristalloberfläche Silizium an, welches die Diffusionslänge der Galliumadatome vergrößert, dadurch ihre Desorptionswahrscheinlichkeit erhöht und so zu einem verringerten und verzögerten Galliumeinbau führt. Abbildung 5.9(d-f) zeigt auch, dass die hohe Siliziumdotierung zu einem Abknicken von Versetzungen führt, was nach Forghani et al. mit dem verstärkten

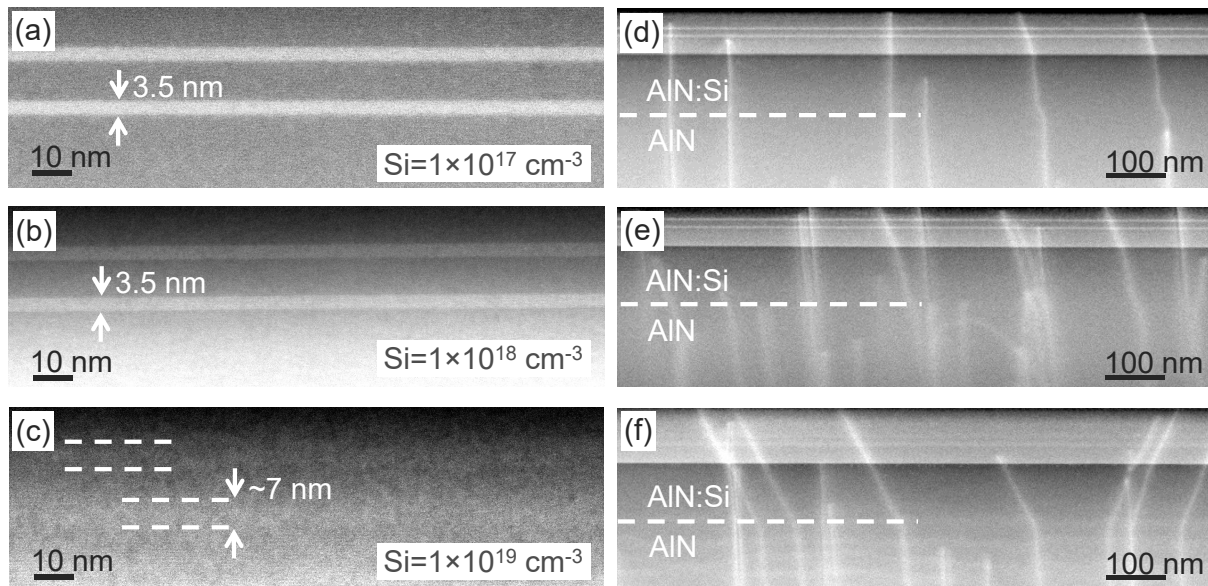


Abbildung 5.9.: (a–c) HAADF-STEM-Aufnahmen der Quantenfilme der vollständig dotierten Heterostrukturen mit Si-Konzentrationen von $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ und $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, aufgenommen bei Raumtemperatur. Für die höchste Dotierung ist die Lage der Quantenfilme angedeutet. (d–f) ADF-STEM-Aufnahmen der gesamten Heterostruktur, die den Verlauf der Durchstoßversetzungen zeigen. (Messungen durchgeführt von Dr. Anna Mogilatenko.)

Einbau der Si-Atome auf der kompressiven Seite der Verspannungsdipole um diese Versetzungen erklärt werden kann [240]. Die kompressive Verspannung wird dadurch teilweise kompensiert, sodass ein tensiler Verspannungsanteil übrig bleibt. Während das Abknicken von Versetzungen theoretisch die Wahrscheinlichkeit für deren Annihilation erhöht, ist die Versetzungsdichte in den hier untersuchten Proben zu gering, sodass dieser potentiell positive Effekt keine signifikanten Auswirkungen hat. Die Aufrauung und Inhomogenität der Quantenfilme sowie die hohe Dichte von Pits, welche als nichtstrahlende Rekombinationszentren für Ladungsträger sowie als optische Streuzentren dienen können, zeigen deutlich, dass eine hohe Siliziumdotierung $>1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ der gesamten Heterostruktur sich nachteilig sowohl auf die Materialqualität als auch auf die optischen Eigenschaften auswirkt.

5.2. Dotierung verschiedener Schichten

Nachdem der Einfluss variierender Siliziumkonzentrationen in den einzelnen Schichten verglichen wurde, soll nun anhand der zweiten Hälfte des Probensatzes (Tab. 5.1(b)) für jede Dotierung der Einfluss in den verschiedenen Schichten verglichen werden. Für diesen Vergleich sind die bisher gezeigten Ergebnisse weniger geeignet, da die unterschiedlichen Templatewafer die Eigenschaften der Heterostruktur beeinflussen könnten, auch wenn sie nominell identisch sein sollten. Für die im Folgenden betrachteten Proben wurden die Viertelwafer eines Templates daher immer so verteilt, dass jeweils die drei Heterostrukturen mit identischem Dotierlevel in Quantenfilmen, Barrieren oder allen Schichten auf drei

Vierteln desselben Templatewafers gewachsen wurden. Die Laserschwellen, internen Quan-

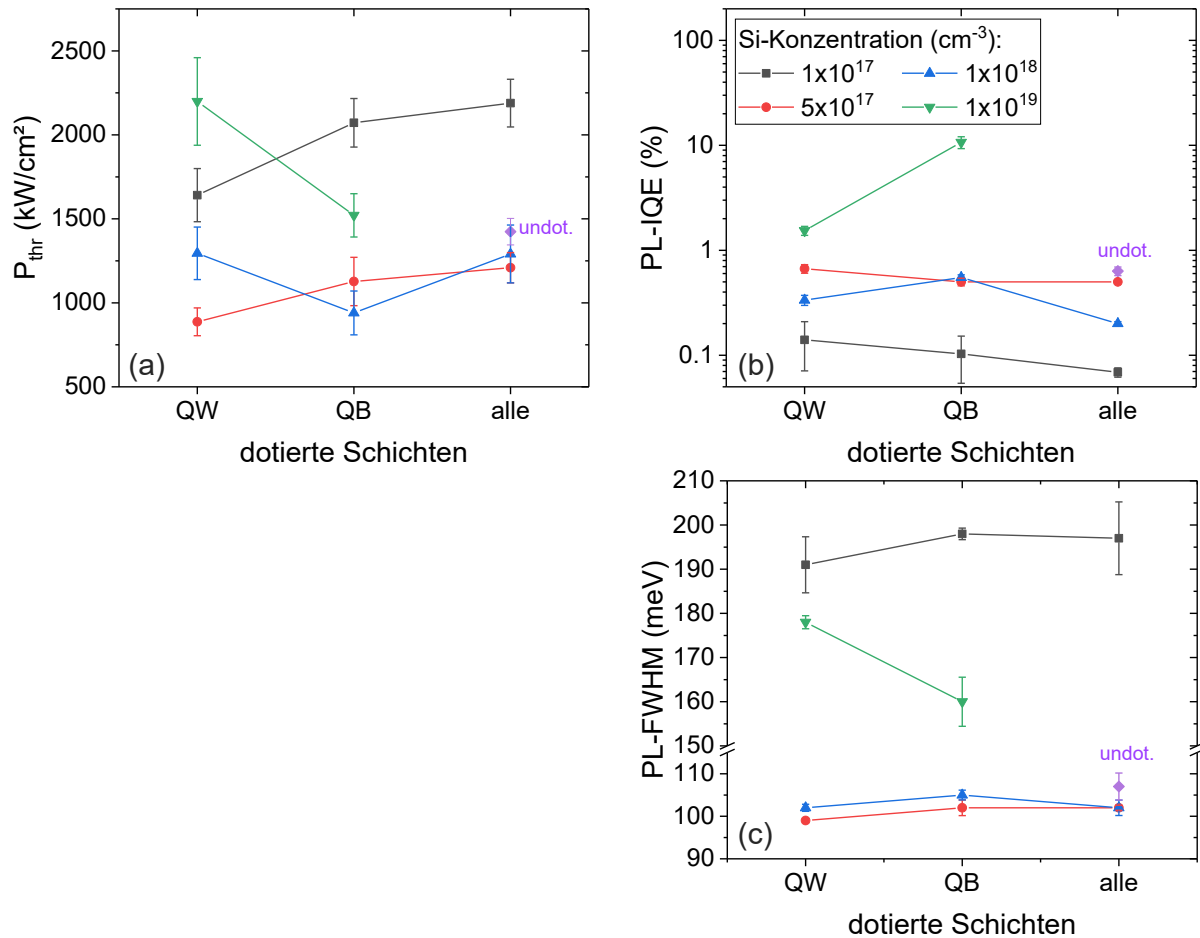


Abbildung 5.10.: (a) Laserschwelle unter optischer Anregung, (b) PL-IQE und (c) spektrale Halbwertsbreite bei 10 K für verschiedene Siliziumkonzentrationen aufgetragen über der dotierten Schichten, d.h. es wurden entweder nur die Quantenfilme, nur die Quantenbarrieren oder alle Schichten der Heterostruktur dotiert. Die Si-Konzentration in der nominell undotierten Probe beträgt ca. 6×10^{16} cm⁻³. Die Legende in (b) gilt für alle Plots. (PL-Messungen durchgeführt von Dr. Carsten Netzel.)

teneffizienzen und spektralen Linienbreiten für die verschiedenen Dotierkonzentrationen sind in Abbildungen 5.10 in Abhängigkeit vom Dotierprofil dargestellt. Die Proben mit einer Dotierkonzentration von 1×10^{17} cm⁻³ wurden unbeabsichtigt auf einem Template mit starkem Step Bunching gewachsen, was die deutlich erhöhten Schwellen und Halbwertsbreiten sowie die verringerte IQE erklärt. Die Absolutwerte der einzelnen Kurven sollten daher nicht mit einander verglichen werden.

Die Ergebnisse zeigen, dass für Siliziumkonzentrationen von 1×10^{17} cm⁻³ und 5×10^{17} cm⁻³ sowohl die niedrigste Schwelle als auch die höchste IQE und die geringste Linienbreite bei Dotierung der Quantenfilme erreicht wird, während eine Dotierung der Barrieren oder auch eine Dotierung aller Schichten zu höheren Schwellen und niedrigeren IQEs führt. Daraus ergeben zwei mögliche Schlussfolgerungen:

- Entweder das Silizium hat einen positiven Effekt und senkt die Laserschwelle ab. Dann ist dieser Effekt bei Dotierung der Quantenfilme offenbar am stärksten, hängt also nicht von der Dichte freier Ladungsträger, sondern von der Dichte der Dotieratome ab, da freie Ladungsträger auch bei Barrierendotierung in die Quantenfilme diffundieren. Als wahrscheinlichster Effekt erscheint damit wie bereits in Abschnitt 5.1.1 beschrieben die Verringerung der Gruppe-III-Vakanzen [154, 180].
- Oder das Silizium wirkt sich negativ auf die Laserschwelle aus und erhöht diese. Dann deutet die Tatsache, dass der Effekt bei Dotierung der Barrieren größer ist als bei Dotierung der Quantenfilme darauf hin, dass der Einfluss mit zunehmender Dicke der dotierten Schicht bzw. mit zunehmender abgeschiedener Siliziummenge zunimmt. Eine Möglichkeit hierfür wäre die Aufrauung der Oberfläche beim Wachstum [227, 228], wobei die damit einhergehende Grenzflächenrauigkeit zu einer erhöhten Inhomogenität der Quantenfilmdicke führt. Alternativ kann die erhöhte Menge freier Elektronen zu einer stärkeren Abschirmung des QCSE und damit zu einem größeren Überlapp der Ladungsträgerwellenfunktionen in den Quantenfilmen führen, sodass die sich daraus ergebende Erhöhung der strahlenden Rekombinationsrate die für Inversion notwendige Anregungsleistung erhöht (vgl. Abschnitt 4.3).

Der Vergleich der Laserswellen bei einer Dotierung von $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ mit denen einer undotierten Heterostruktur (vgl. Abb. 5.2, 5.4, 5.7, 5.10)¹ deutet darauf hin, dass das Silizium eher einen positiven Einfluss auf die Schwelle hat, diese also absenkt. Die Verringerung der V_{III} kann daher mit hoher Wahrscheinlichkeit als wichtigster Effekt für Siliziumkonzentrationen bis $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ identifiziert werden.

Die im Vergleich zur Barrierendotierung leicht erhöhten Schwellen bei Dotierung aller Schichten (obwohl hier auch die QWs dotiert sind) zeigen allerdings, dass auch ein gewisser negativer Einfluss vorhanden sein muss. Eine Erhöhung der Inhomogenitäten als potentielle Ursache war auf den CL-Maps nicht erkennbar (Abb. 5.3, 5.5, 5.8), d.h. falls dieser Effekt vorhanden ist, muss er sich auf Längenskalen von $< 100 \text{ nm}$ abspielen. Berechnungen der Ladungsträgerwellenfunktionen in den Quantenfilmen mit Silvaco Atlas zeigen allerdings für alle Dotierkonzentrationen einen Anstieg des Wellenfunktionsüberlapps durch Abschirmung des QCSE bei Dotierung der Barrieren bzw. der gesamten Heterostruktur (Abb. 5.11). Dies könnte zu einer leichten Erhöhung der Laserswellen beitragen, da die mit zunehmendem Wellenfunktionsüberlapp ansteigende spontane Emission ein Verlustmechanismus für das Lasing ist.

Für Dotierkonzentrationen ab $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ist genau das Gegenteil zum eben beschriebenen Verhalten zu beobachten, d.h. sowohl die Proben, in denen nur die QWs dotiert sind als auch die, in denen alle Schichten dotiert sind, zeigen eine höhere Schwelle und eine geringere IQE als die Proben mit ausschließlich dotierten Barrieren. Gleichzeitig sind zumindest für $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ die Schwellen und Linienbreiten, aber auch die IQEs aller Proben geringer als bei der undotierten Heterostruktur (Abb. 5.10). In Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Chichibu et al. kann davon ausgegangen werden, dass oberhalb einer Siliziumkonzentration von $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ die Dichte von Gruppe-III-Vakanzen wieder

¹Aufgrund des Step Bunchings auf dem für eine Dotierung von $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ verwendeten Template können für diese Dotierung nicht die in Abb. 5.10 dargestellten Daten verglichen werden.

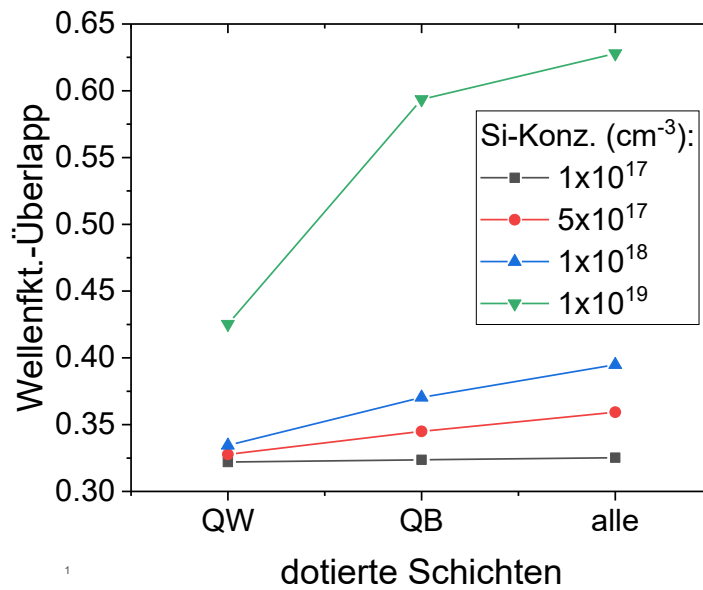


Abbildung 5.11.: Mittlerer Überlapp der Elektronen- und Lochwellenfunktion in den Quantenfilmen ohne äußere optische Anregung, berechnet mit Silvaco Atlas.

ansteigt [154], sodass diese als nichtstrahlende Rekombinationszentren wirken, was sich besonders bei Dotierung der Quantenfilme negativ auf die Laserschwelle auswirkt. Dies erklärt, warum die Proben, in denen nur die Barrieren dotiert sind, eine geringe Schwelle zeigen.

Als mögliche Ursache für die bei einer Siliziumkonzentration von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ unabhängig vom Dotierprofil gegenüber dem undotierten Fall geringeren Schwellen kommt eine Homogenisierung der Materialzusammensetzung sowie eine Verbesserung der Grenzflächenqualität durch das Silizium in Frage [241–243]. Die größere Homogenität kann auch die verringerte IQE erklären, da wie bereits in Abschnitt 5.1.1 argumentiert, Inhomogenitäten die Diffusion von Ladungsträgern zu nichtstrahlenden Rekombinationszentren verhindern. Für eine Dotierkonzentration von $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ in allen Schichten haben STEM-Aufnahmen gezeigt, dass derart hohe Si-Konzentrationen zu einer starken Aufräumung und dadurch sehr inhomogenen Quantenfilmen mit einem deutlich verringerten Galliumgehalt führen (Abb. 5.9). Gleichzeitig erhöht sich höchstwahrscheinlich die Dichte der Gruppe-III-Vakanzen weiter, sodass die deutlich erhöhten Schwellen bei Quantenfilmdotierung leicht nachvollziehbar sind. Die Aufräumung ist bei Dotierung der Barrieren noch nicht ganz so stark ausgebildet, führt aber bereits zu einer erhöhten Schwelle. In der PL-IQE wird dies durch die höhere Konzentration freier Ladungsträger ausgeglichen.

5.3. Fazit

In diesem Kapitel wurde der Einfluss der Siliziumdotierung auf die spontane und stimulierte Emission in AlGaIn-Lasern untersucht. Dabei wurde sowohl die Siliziumkonzentration zwischen $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ variiert als auch das Dotierprofil, d.h. es waren

entweder die Quantenfilme, die Barrieren oder die gesamte Heterostruktur dotiert. Der Vergleich der PL-IQE, der Linienbreite der spontanen Emission und der Laserswellen führt zu folgenden Ergebnissen:

- Siliziumkonzentrationen bis $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ wirken sich unabhängig davon, welche Schichten dotiert werden, tendenziell positiv auf die Laserschwelle unter optischer Anregung aus.
- Bis $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ist dabei eine Dotierung der Quantenfilme günstiger als eine Barrirendotierung, während für höhere Siliziumkonzentrationen undotierte Quantenfilme vorteilhafter sind. Dies kann mit einer Verringerung ($\text{Si} < 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) und anschließenden Erhöhung der als nichtstrahlende Rekombinationszentren wirkenden Gruppe-III-Vakanzen durch die Dotierung erklärt werden.
- Auch für eine Siliziumkonzentration von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ sind die Laserswellen geringer als im undotierten Fall. Die ebenfalls deutlich geringeren spektralen Linienbreiten in der PL lassen eine Homogenisierung der Zusammensetzung und eine Verbesserung der Grenzflächenqualität als Ursache vermuten. Dies steht auch im Einklang mit der beobachteten Verringerung der IQE, die von leichten Fluktuationen der Zusammensetzung in der Regel profitiert.
- Eine Dotierkonzentration von $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ führt für alle Dotierprofile zu einem deutlichen Anstieg der Schwelle oder dem Ausbleiben von Lasing. Ursache ist die Wirkung des Siliziums als Antisurfactant, sodass es zu steigenden Inhomogenitäten, Aufrauung und der Bildung von V-Pits kommt. Die hohe Konzentration freier Ladungsträger ermöglicht für geringe Anregungsleistungen deutlich erhöhte interne Quanteneffizienzen.

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden der Einfluss der Wachstumsbedingungen und des Heterostrukturdesigns auf die Eigenschaften optisch gepumpter Halbleiterlaser auf AlGa_N-Basis mit Emissionswellenlängen im tiefen UV (240–250 nm) untersucht. Ziel war es, anhand dieses Modellsystems allgemeingültige Erkenntnisse über limitierende Effekte und Möglichkeiten zu deren Überwindung in AlGa_N-Lasern zu gewinnen, die sich auch auf andere Pumpkonzepte oder sogar auf völlig andere Bauelemente übertragen lassen.

Im ersten Teil der Arbeit wurde der Einfluss der Temperatur, des Drucks und des V/III-Verhältnisses während des Wachstums von 130 nm dicke Al_{0.7}Ga_{0.3}N-Schichten auf das MOVPE-Wachstum selbst, die Fremdatomkonzentration im Kristall sowie die Photolumineszenzeigenschaften der Schichten analysiert. Der Vergleich der experimentellen Wachstumsraten und Materialzusammensetzungen mit Simulationsrechnungen zeigt eine exzellente Übereinstimmung und trägt wesentlich zum Verständnis der relevanten Effekte bei. Anhand der Simulationen zeigt sich, dass die parasitäre AlGa_N-Partikelbildung in der Gasphase zu einem deutlichen Verlust an Ausgangsstoffen führt und durch hohe Metallorganika-Flüsse, Reaktordrücke und Temperaturen verstärkt wird, sodass die Wachstumsrate teilweise auf nur 10 % der im Transportlimit möglichen Werten absinkt. Für Gallium hemmt zusätzlich die Ätzung durch Wasserstoff die effektive Wachstumsrate.

Die Analyse der Hintergrundkonzentration von Fremdatomen zeigt für Sauerstoff ($<4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) und Kohlenstoff ($<1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) keine Abhängigkeit von den Wachstumsparametern im untersuchten Bereich. Die Siliziumkonzentration hingegen variiert zwischen $9 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ und $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und zeigt eine Arrhenius-artige Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur sowie eine annähernd lineare Abhängigkeit von der Wachstumsrate. Beide Korrelationen deuten darauf hin, dass die Quelle für das Silizium einen temperaturabhängigen, konstanten Si-Fluss erzeugt. Durch den Austausch der SiC-beschichteten Reaktorteile gegen TaC-beschichtete und das vergleichende Wachstum von AlGa_N-Schichten in beiden Setups konnte gezeigt werden, dass das SiC die Hauptquelle für den parasitären Siliziumeinbau ist. Diese Erkenntnis ist für das MOVPE-Wachstum von Nitriden allgemein relevant, da die entsprechenden SiC-Beschichtungen in vielen Reaktoren verwendet werden.

Photolumineszenzspektren der Al_{0.7}Ga_{0.3}N-Schichten weisen neben der Bandkantenemission bei 5.2 eV eine breite Defektlumineszenz im Bereich zwischen 1.8 und 3.7 eV auf, deren Intensität mit der Siliziumkonzentration ansteigt und die vermutlich auf eine Donator-Akzeptor-Paar-Rekombination zwischen Silizium und (V_{III}-Komplex)²⁻ oder V_{III}³⁻ zurückzuführen ist. Auch die Emission von der Bandkante zeigt einen Anstieg der Raumtemperatur-Intensität mit der Siliziumkonzentration, der sich sprunghaft bei einer Konzentration von ca. $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ vollzieht. Als wahrscheinlichste Ursache hierfür erscheint die Abschirmung des Oberflächenpotentials durch die freien Ladungsträger.

Im zweiten Teil der Arbeit wurden zunächst die Eigenschaften der ersten unter optischer Anregung Lasing zeigenden AlGa_N-Heterostrukturen untersucht, um die Ausgangslage für weitere Untersuchungen zu definieren. Die erreichte Emissionswellenlänge von 237 nm ist die bisher kürzeste erreichte Laserwellenlänge für auf einem Saphirsubstrat gewachsene AlGa_N-Laser. Die Proben zeigten sehr hohe Laserschwellen von $>10 \text{ MW/cm}^2$ und einen deutlichen Einfluss der Oberflächenmorphologie der AlN/Saphir-Templates. Hohe Stufen auf der Templateoberfläche führen zu einer lateral inhomogenen Quantenfilmemission durch Galliumanlagerung an diesen Stufen. Simulationen deuten darauf hin, dass die hohen Laserschwellen zumindest teilweise auf die große Dicke der AlN-Cap-Schicht von 75 nm und die starke Absorption des Pumpasers in dieser zurückzuführen ist.

Als Konsequenz wurden die folgenden Laserproben mit einer nur 20 nm dicken Cap-Schicht gewachsen und zeigten deutlich geringere Schwellen im Bereich von $1\text{--}2 \text{ MW/cm}^2$. Durch Variation des Substratfehlschnitts zwischen 0.1° und 0.2° wurde die Oberflächenmorphologie der Templates verändert und der Einfluss auf die Lasereigenschaften untersucht. Templates mit geringerem Fehlschnitt zeigten glattere Oberflächen ohne Makrostufen. Gleichzeitig führt der größere Fehlschnitt auf den strukturierten ELO-Templates zu einer verringerten Versetzungsdichte durch das Abknicken von Versetzungen an den Koaleszenzlinien, welches jedoch erst durch die Makrostufen initiiert wird. Von sechs verschiedenen Laserheterostrukturen zeigten drei geringere Schwellen auf den Templates mit 0.2° Fehlschnitt, während die drei anderen auf den Templates mit 0.1° Fehlschnitt niedrigere Schwellen hatten. Es muss daher geschlussfolgert werden, dass das Wechselspiel der positiven und negativen Einflüsse des Fehlschnitts von minimalen Änderungen abhängt und die resultierende Schwellenänderung nicht vorhersagbar ist. Zur Umgehung dieses Problems scheint der Übergang zu unstrukturierten Templates oder AlN-Substraten sinnvoll.

Abschließend wurde in diesem Teil der Einfluss der Quantenfilmdicke und -anzahl auf die Laserschwelle untersucht, wobei das Gewinnvolumen konstant gehalten wurde, indem Dicke (6 nm, 3 nm, 1.5 nm) und Anzahl (1, 2, 4) gegenläufig variiert wurden. In der spontanen Emission zeigt sich mit zunehmender Quantenfilmdicke eine deutliche Abnahme der Intensität aufgrund des Quantum Confined Stark Effects (QCSE). Die Laserschwellen reproduzieren dies jedoch nicht, sondern sind für den Vierfachquantenfilm am höchsten. Simulationsergebnisse deuten darauf hin, dass dies vor allem durch die erhöhte nichtstrahlende Rekombination an der größeren Anzahl von Heterogrenzflächen verursacht wird. Der QCSE hingegen spielt aufgrund der Abschirmung bei hohen Ladungsträgerdichten eine untergeordnete Rolle.

Der letzte Teil der Arbeit greift, auf den bisherigen Laserergebnissen aufbauend, die Frage des Siliziumeinflusses wieder auf. Basierend auf den Erkenntnissen der Al_{0.7}Ga_{0.3}N-Schichten wurden Wachstumsbedingungen gewählt, die zu einer möglichst geringen Siliziumhintergrundkonzentration führen. Bei diesen Bedingungen wurden Laserstrukturen gewachsen, in denen unterschiedliche Schichten (Quantenfilme, Barrieren oder gesamte Heterostruktur) unterschiedlich hoch mit Silizium ($7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ bis $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) dotiert wurden. Durch Vergleich der Photolumineszenz-, Kathodolumineszenz- und Lasereigenschaften dieser Proben konnte eine Verringerung ($\text{Si} < 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) und anschließende Erhöhung der Gruppe-III-Vakanzen als wesentlicher Effekt identifiziert werden, der zu

leicht verringerten Laserschwellen bei Si-Dotierungen im Bereich von $1\text{--}5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ führt. Für eine Siliziumkonzentration von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ spricht vieles für eine sich positiv auswirkende Homogenisierung der Materialzusammensetzung und Grenzflächen. Dotierungen von $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ hingegen führen zu einer deutlichen Erhöhung der Schwellen oder dem Ausbleiben von Lasing. Das Silizium wirkt hier als Antisurfactant, sodass es zu steigenden Inhomogenitäten, Aufrauung und der Bildung von V-Pits kommt.

Abbildung 5.12 zeigt, dass durch die im Rahmen der Arbeit gewonnenen Erkenntnisse die Schwellen der Laser signifikant reduziert werden konnten.

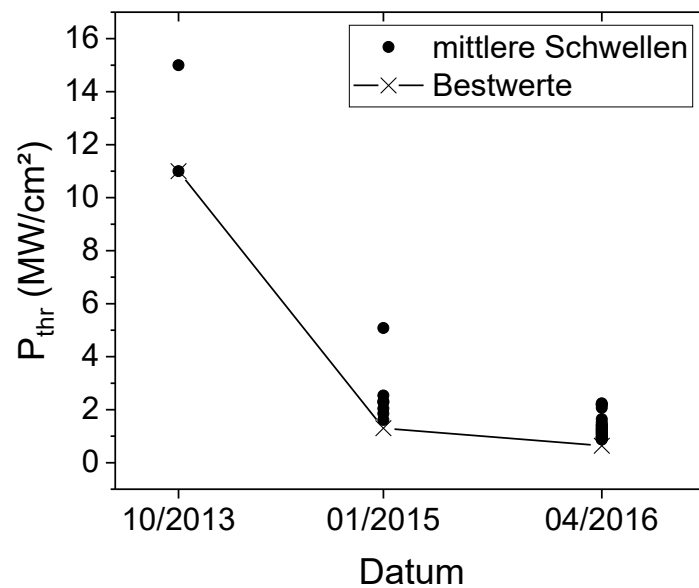


Abbildung 5.12.: Im Rahmen dieser Arbeit erzielte Abnahme der Laserschwellen von AlGaIn-Quantenfilmstrukturen unter optischer Anregung bei 193 nm.

Die Ergebnisse zum Einfluss des Substratfehlschnitts bei Verwendung strukturierter Templates sind nicht nur für Laser, sondern auch für LEDs relevant. Sie unterstreichen die Wichtigkeit der Entwicklung unstrukturierter Templates oder AlN-Substrate.

Grenzflächenrekombination in Nitriden ist bisher wenig untersucht worden. Die gewonnenen Resultate lassen weiterführende Untersuchungen in dieser Richtung sinnvoll erscheinen, insbesondere da bei LEDs häufig die Quantenfilmanzahl erhöht wird, um die Ladungsträgerdichte und damit Droop-Effekte zu reduzieren.

Die Siliziumdotierung der Quantenfilme führte im Experiment sowohl zu niedrigeren Laserschwellen als auch zu einer erhöhten spontanen Emission. Es wäre interessant, diesen Ansatz auf LEDs und langwelligere Nitridlaserdioden zu übertragen und zu überprüfen, ob ähnliche Ergebnisse erreicht werden können.

Anhang A.

Herleitungen, Proben und Parameter

A.1. Herleitungen und Erläuterungen

Im Folgenden sollen einige der im Rahmen der Arbeit verwendeten Formeln näher erläutert bzw. hergeleitet werden.

Molare Flüsse und Partialdrücke während der MOVPE

Der Fluss der verschiedenen Gase in und aus dem MOVPE-Reaktor während des Wachstums wird über Massenflussregler (Einheit Liter/Minute) und Druckregler (Einheit Millibar) gesteuert. Für die stattfindenden Reaktionen sind in der Regel jedoch die molaren Flüsse und Partialdrücke der einzelnen Stoffe im Reaktor relevant. Die Berechnung dieser Größen wird im Folgenden gezeigt (aus [244]).

Die Metallorganika TMAI und TMGa liegen in flüssiger Form in Bubbler vor, die kontrolliert in Laudabädern bei einer konstanten Temperatur $T_{\text{TMAI}} = 17^\circ\text{C}$ und $T_{\text{TMGa}} = 0^\circ\text{C}$ gehalten werden. Ihr temperaturabhängiger Dampfdruck lässt sich über

$$p_{\text{MO}}(T_{\text{Bubbler}})[\text{mbar}] = 10^{A-B/T} \times \frac{1013.25}{760} \quad (\text{A.1})$$

berechnen, wobei A und B Materialkonstanten sind, die häufig für die Druckberechnung in Torr in der Literatur aufgelistet sind (Tab. A.11, [245, 246]). Über den Bubblerdruck und den Trägergasfluss (hier H_2) durch den Bubbler können die molaren Flüsse Q_{MO} in den Reaktor gesteuert und über die ideale Gasgleichung auch berechnet werden:

$$p_i V = N_i k_B T \quad (\text{A.2})$$

$$\frac{N_i}{N_A t} [\text{mol/min}] = \frac{p_{\text{MO}}(T_{\text{Bubbler}})[\text{mbar}] \times \frac{V}{t} [\text{ml/min}]}{k_B [\text{J/K}] \times T_{\text{Bubbler}} [\text{K}] \times N_A [1/\text{mol}] \times 10^4} \quad (\text{A.3})$$

Der Volumenfluss V/t aus dem Bubbler kann aus dem Trägergasfluss Q_{H_2} in den Bubbler (bezogen auf die Standardatmosphäre $p_{\text{std}} = 1013.25 \text{ hPa}$) und dem Bubblerdruck p_{Bubbler} berechnet werden:

$$Q_{\text{MO}} [\text{mol/min}] = \frac{p_{\text{MO}}(T_{\text{Bubbler}})[\text{mbar}] \times Q_{\text{H}_2} [\text{ml/min}] \times \frac{p_{\text{std}}}{p_{\text{Bubbler}}}}{8.314 \times 10^4 [\text{J}/(\text{K mol})] \times T_{\text{Bubbler}} [\text{K}]} \quad (\text{A.4})$$

Die Formel ist so nur für TMGa gültig, welches in der Gasphase als Monomer vorliegt. TMAI dagegen liegt als Dimer vor [247, S.160], sodass sich der molare Fluss durch Multiplikation von Formel A.4 mit 2 ergibt. Der Partialdruck der Metallorganika im Reaktor lässt sich aus ihrem Dampfdruck im Bubbler und dem Fluss durch den Bubbler sowie dem Fluss durch den Reaktor berechnen:

$$p_{\text{MO,Reaktor}} [\text{mbar}] = \frac{p_{\text{MO}}(T_{\text{Bubbler}})[\text{mbar}] \times Q_{\text{H}_2} [\text{ml/min}] \times \frac{p_{\text{std}}}{p_{\text{Bubbler}}}}{Q_{\text{tot}} [\text{ml/min}] \times \frac{p_{\text{std}}}{p_{\text{Reaktor}}}} \quad (\text{A.5})$$

Ammoniak als Gruppe-V-Ausgangsstoff liegt bereits in gasförmiger Form vor. Die Berechnung des molaren Flusses und des Partialdrucks ist daher direkt aus dem Volumenfluss und dem Reaktordruck möglich:

$$Q_{\text{NH}_3}[\text{mol/min}] = \frac{Q_{\text{NH}_3}[\text{ml/min}]}{V_{\text{m}}} \quad (\text{A.6})$$

$$p_{\text{NH}_3}[\text{mbar}] = p_{\text{Reaktor}}[\text{mbar}] \times \frac{Q_{\text{NH}_3}[\text{ml/min}]}{Q_{\text{tot}}[\text{ml/min}]} \quad (\text{A.7})$$

Das V/III-Verhältnis wird aus dem Quotienten der molaren Flüsse von NH_3 und den Metallorganika berechnet.

Die Residenzzeit der Moleküle im Reaktor als Maß für den für Reaktionen zur Verfügung stehenden Zeitraum kann nicht einfach berechnet werden, da sie nicht nur von den Gasflüssen, sondern auch von den Reaktionsraten abhängt. Unter Vernachlässigung der chemischen Reaktionen kann die Residenzzeit τ jedoch über das Reaktorvolumen V_{Reaktor} und den Gesamtvolumenfluss Q_{tot} abgeschätzt werden:

$$\tau = \frac{V_{\text{Reaktor}}}{Q_{\text{tot}}} \quad (\text{A.8})$$

Unter Berücksichtigung der Tatsache, dass Q_{tot} üblicherweise bezogen auf den Standarddruck angegeben wird, ergibt sich

$$\tau = \frac{V_{\text{Reaktor}}}{Q_{\text{tot}} \times \frac{p_{\text{std}}}{p_{\text{Reaktor}}}} \quad (\text{A.9})$$

Die Residenzzeit ist also näherungsweise direkt proportional zum Reaktordruck und indirekt proportional zum Gesamtgasfluss.

Liste der verwendeten Symbole:

A, B	Dampfdruckparameter (Tab. A.11, S. 117)
k_{B}	Boltzmann-Konstante (Tab. A.11, S. 117)
N_i	Teilchenzahl der Komponente i
N_{A}	Avogadro-Konstante (Tab. A.11, S. 117)
p_i	Druck der Komponente i
p_{MO}	Dampfdruck der Metallorganika im Bubbler
p_{std}	Standarddruck (Tab. A.11, S. 117)
p_{Bubbler}	Bubblerdruck
p_{Reaktor}	Reaktordruck
$p_{\text{MO,Reaktor}}$	Partialdruck der Metallorganika im Reaktor
p_{NH_3}	Ammoniak-Partialdruck im Reaktor
Q_{MO}	Molarer Fluss der Metallorganika
Q_{H_2}	Wasserstoff-Volumenfluss
Q_{tot}	Gesamtvolumenfluss in den Reaktor
Q_{NH_3}	Ammoniakfluss (molar/Volumen)

T	Temperatur
T_{Bubbler}	Bubblertemperatur
t	Zeit
τ	Residenzzeit der Moleküle im Reaktor
V, V_m	Volumen, molares Volumen (Tab. A.11, S. 117)

Berechnung der QW-Dicke aus HRXRD-Messungen

Wie bereits in Abschnitt 2.2.1 beschrieben gibt es bei der Bestimmung der Quantenfilmdicke und -zusammensetzung aus ω -2 θ -Scans der AlGaIn- und AlN-(0002)-Peaks von QW-Stacks mit Quantenfilmdicke, Barrierendicke und Quantenfilmzusammensetzung zu viele freie Parameter, um diese eindeutig bestimmen zu können. Nur die Dicke d_{SL} der sich aus QW und QB ergebenden Übergitterschichten

$$d_{\text{SL}} = d_{\text{QW}} + d_{\text{QB}} \quad (\text{A.10})$$

ist direkt aus dem Abstand der Interferenzpeaks messbar. Da beim Wachstum derartiger Stacks aber stets der TMAI-Fluss in Barriere und QW identisch gehalten und für den QW nur TMGa zugeschaltet wurde, kann über die Näherung, dass beim AlGaIn-Wachstum die AlN-Wachstumsrate GR_{AlN} und die GaIn-Wachstumsrate GR_{GaIn} voneinander unabhängig sind¹, ein Zusammenhang zwischen den Wachstumsraten GR_{QW} , GR_{QB} und dem Al-Gehalt x hergestellt werden:

$$\text{GR}_{\text{QW}} = \frac{d_{\text{QW}}}{t_{\text{QW}}} \quad (\text{A.11})$$

$$\text{GR}_{\text{QB}} = \frac{d_{\text{QB}}}{t_{\text{QB}}} = \text{GR}_{\text{AlN}} \quad (\text{A.12})$$

wobei t_{QW} und t_{QB} die jeweiligen Wachstumszeiten sind. Unter der Annahme, dass der QW genau zum Anteil x aus AlN besteht, welches mit derselben Wachstumsrate wie die Barriere wächst, gilt aber auch:

$$\text{GR}_{\text{AlN}} = \frac{d_{\text{AlN}}}{t_{\text{QW}}} \quad (\text{A.13})$$

$$= \frac{x \times d_{\text{QW}}}{t_{\text{QW}}} \quad (\text{A.14})$$

Aus A.12 und A.14 folgt

$$\Rightarrow \frac{d_{\text{QB}}}{t_{\text{QB}}} = x \times \frac{d_{\text{QW}}}{t_{\text{QW}}} \quad (\text{A.15})$$

¹Diese beeinflussen sich aber aufgrund der Gasphasenreaktionen gegenseitig (vgl. Abschnitte 2.1.1.1, 3.1).

Durch Einsetzen von A.15 in Gleichung A.10 können entweder d_{QW} oder d_{QB} eliminiert werden, sodass durch Umstellen d_{QB} bzw d_{QW} in Abhängigkeit von x und den bekannten Größen d_{SL} , t_{QW} und t_{QB} darstellen lassen:

$$d_{\text{QB}} = d_{\text{SL}} \times \left(1 + \frac{t_{\text{QW}}}{x \times t_{\text{QB}}} \right)^{-1} \quad (\text{A.16})$$

$$d_{\text{QW}} = d_{\text{SL}} \times \left(1 + \frac{x \times t_{\text{QB}}}{t_{\text{QW}}} \right)^{-1} \quad (\text{A.17})$$

Durch freie Variation der Zusammensetzung kann die Simulation an die Messkurve angepasst und so x , d_{QW} und d_{QB} bestimmt werden.

Abschätzung der über PL generierten Ladungsträgerdichte

In mehreren Abschnitten dieser Arbeit wird die über Photolumineszenz im Halbleiter generierte Ladungsträgerdichte abgeschätzt. Eine relativ simple Möglichkeit, dies zu tun ist, zunächst über das Bouguer-Lambert'sche Gesetz [56, 57] die absorbierte Lichtleistung P_{abs} aus der Anregungsleistung P_{exc} , dem Absorptionskoeffizienten α für die Anregungswellenlänge λ_{exc} und der Dicke d der absorbierenden Schichten zu berechnen:

$$P_{\text{abs}} = 0.8 P_{\text{exc}} (1 - e^{-\alpha d}) \quad (\text{A.18})$$

Der Vorfaktor berücksichtigt, dass bei senkrechtem Einfall ca. 20 % der Anregungsleistung reflektiert werden. Anschließend kann unter Annahme einer Generationseffizienz von 1 (ein Elektron-Loch-Paar je Photon) sowie unter Berücksichtigung der Ladungsträgerlebensdauer τ und der Energie E_{phot} der anregenden Photonen die Anzahl n' generierter Elektron-Loch-Paare berechnet werden:

$$n' = \frac{\tau P_{\text{abs}}}{E_{\text{phot}}} \quad (\text{A.19})$$

Aus dem Radius r des Anregungsspots und der Absorptionsdicke d wiederum lässt sich das Anregungsvolumen $V_{\text{exc}} = \pi r^2 d$ bestimmen, sodass über den Quotienten die Dichte n der Elektron-Loch-Paare berechnet werden kann:

$$n = \frac{n'}{\pi r^2 d} \quad (\text{A.20})$$

Die Ladungsträgerlebensdauer kann häufig nur grob geschätzt werden und auch die Größe des Anregungsspots ist oft nicht exakt bekannt. Die berechnete Ladungsträgerdichte kann daher nur als grober Richtwert dienen und die zu erwartende Größenordnung angeben. Als Sonderfall ist die Ladungsträgerdichte in Quantenfilmen bei gleichzeitiger Absorption in den umliegenden Schichten zu erwähnen, wie sie in Abschnitt 5.1.2 verwendet wird. In diesem Fall wurde davon ausgegangen, dass alle in den absorbierenden Wellenleiterschichten generierten Ladungsträger in die Quantenfilme relaxieren. Da die Gesamtdicke aus Wellenleiter- und Quantenfilmschichten weniger als 100 nm betrug, die notwendige Diffusionslänge also weniger als 50 nm, scheint diese Annahme realistisch.

Berechnung der SRH-Lebensdauern aus der TDD

Die Lebensdauer nichtstrahlender Rekombinationsprozesse, auch als Shockley-Read-Hall-Rekombination bezeichnet, hängt stark von den Materialeigenschaften der betrachteten Halbleiterschicht ab. Insbesondere Durchstoßversetzungen, aber auch Punktdefekte dienen als Zentren für nichtstrahlende Rekombination, da sie zu Störungen des periodischen Kristallpotentials führen und, wenn sie geladen sind, freie Ladungsträger anziehen. Für die Berechnung der in den Simulationen verwendeten nichtstrahlenden Lebensdauern wurde das von Karpov und Makarov [133] für GaN entwickelte Modell verwendet, welches Durchstoßversetzungen als akzeptorartige Zustände betrachtet. Die Lebensdauern τ_n und τ_p von Elektronen und Löchern können dann in Abhängigkeit von der TDD, den Ladungsträgerdiffusivitäten D_n , D_p , den thermischen Geschwindigkeiten v_n , v_p , der Gitterkonstanten a und dem Anteil S elektrisch aktiver Zentren im Versetzungskern berechnet werden:

$$\tau_{n,p}^{\text{TDD}} = (4\pi D_{n,p} \times \text{TDD})^{-1} \times \left[\frac{2D_{n,p}}{av_{n,p}S} - \frac{3}{2} - \ln(\pi a^2 \times \text{TDD}) \right] \quad (\text{A.21})$$

Die thermische Geschwindigkeit ist dabei über die effektiven Massen definiert:

$$v_{n,p} = \sqrt{\frac{3k_B T}{m_{n,p}^* m_0}} \quad (\text{A.22})$$

Das Modell von Karpov und Makarov berücksichtigt nur die Rekombination an Durchstoßversetzungen. Messungen an Heterostrukturen auf AlN-Substraten, die typischerweise TDDs $< 1 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$ aufweisen, führen allerdings zu Lebensdauern im Bereich von 200–800 ps [248–250]. Dies deutet darauf hin, dass Punktdefekte ebenfalls eine wichtige Rolle für die nichtstrahlende Lebensdauer spielen [251]. Daher wurde für die nichtstrahlende Rekombination an Punktdefekten eine zweite, von der TDD unabhängige Lebensdauer τ_{PD} postuliert und die kumulierte Lebensdauer τ_{nr} über die Kehrwerte berechnet:

$$\frac{1}{\tau_{\text{nr}}} = \frac{1}{\tau_{\text{TDD}}} + \frac{1}{\tau_{\text{PD}}} \quad (\text{A.23})$$

Alle für die Berechnung verwendeten Parameter sind Tabelle A.1 aufgeführt. In den Simulationen wurden aufgrund des hohen Al-Gehalts aller Schichten der Einfachheit halber die Werte für AlN verwendet. Sofern für AlN keine verlässlichen Werte verfügbar waren, wurden die von GaN benutzt². Zur Abschätzung von $\tau_{n,p}^{\text{PD}}$ wurden die bereits zitierten Lebensdaueremessungen von AlGaIn auf AlN-Substraten herangezogen und analog zu dem Modell von Karpov und Makarov eine Differenz zwischen Elektronen- und Löcherlebensdauer von ca. einer Größenordnung angenommen, da die Einfangwahrscheinlichkeit sowohl bei Durchstoßversetzungen als auch bei Punktdefekten von den thermischen Geschwindigkeiten und Diffusivitäten der Ladungsträger abhängen sollte.

²Für die Diffusivitäten in AlN ergaben Messungen von Šćajev et al. und Podlipskas et al. Werte zwischen $0.4 \text{ cm}^2/\text{s}$ und $2.8 \text{ cm}^2/\text{s}$ [252, 253]. Eine näherungsweise Übereinstimmung mit den Diffusivitäten in GaN scheint daher gegeben.

Tabelle A.1.: Für die Berechnung der nichtstrahlenden Lebensdauer nach Karpov und Makarov [133] verwendete Materialparameter.

Bezeichnung	Symbol	Einheit	AlN	GaN	Quelle
effektive Elektronenmasse	m_n^*	m_0	0.3	0.19	[83]
effektive Löchermasse	m_p^*	m_0	0.42	1	[83]
therm. Geschw. (Elektronen)	v_n	cm/s	2.15×10^7	2.6×10^7	
therm. Geschw. (Löcher)	v_p	cm/s	1.80×10^7	9.4×10^6	
Diffusivität (Elektronen)	D_n	cm ² /s	–	2.6	[193]
Diffusivität (Löcher)	D_p	cm ² /s	–	0.12	[193]
Gitterkonstante	a_0	Å	3.112	3.189	[83]
Anteil elektrisch aktiver Zentren im Versetzungskern	S	–	–	0.5	[133]
Elektronen-Lebensdauer f. nicht-strahlende Rekomb. an Punktdef.	τ_n^{PD}	ps	35	–	
Löcher-Lebensdauer f. nicht-strahlende Rekomb. an Punktdef.	τ_p^{PD}	ps	350	–	[249]

Abbildung A.1 zeigt die berechneten nichtstrahlenden Lebensdauern in Abhängigkeit von der Versetzungsdichte einmal mit und einmal ohne Berücksichtigung von Punktdefekten.

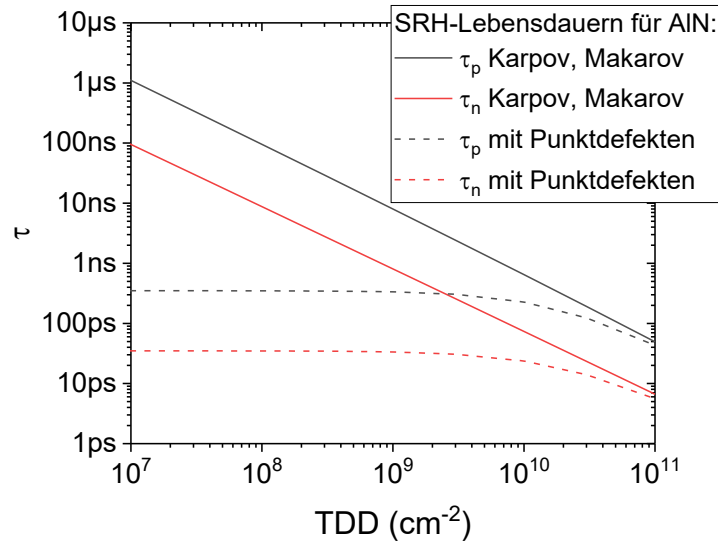


Abbildung A.1.: Nach dem Modell von Karpov und Makarov für AlN berechnete nichtstrahlende Lebensdauern einmal ohne und einmal mit Berücksichtigung von nichtstrahlender Rekombination an Punktdefekten ($\tau_p^{\text{PD}} = 350$ ps, $\tau_n^{\text{PD}} = 35$ ps).

Berechnung der optischen Streuverluste an Versetzungen

Ergebnisse verschiedener Autoren deuten darauf hin, dass eine hohe TDD zu verstärkter Lichtstreuung führt [138, 216, 217]. Dieser Mechanismus wurde daher basierend auf dem von Liao et al. vorgeschlagenen Modell bei der Festlegung der internen optischen Verluste für die Lasersimulationen berücksichtigt. Grundlage des Modells ist die Phasenverschiebung zwischen Bereichen der optischen Welle, die an Versetzungen den Weg durch eine zusätzliche Atomebene zurücklegen und solchen, die dies nicht tun. Die theoretische Herleitung basiert auf der Brechungsindexvariation durch das Spannungsfeld der Versetzung. Für die Streuverluste α einer ebenen Welle der lateralen Ausdehnung w und der Wellenlänge λ ergibt sich

$$\alpha = \frac{2}{3} \left(\frac{2\pi\delta}{\lambda} \right)^2 \times \text{EDD} \times w \quad (\text{A.24})$$

wobei EDD die Dichte der Stufenversetzungen und δ der durch eine Stufenversetzung verursachte optische Weglängenunterschied ist, der über

$$\delta = -\frac{1 - 2\nu}{4(1 - \nu)} n^3 p b_E \quad (\text{A.25})$$

aus dem Poissonverhältnis ν , dem Brechungsindex n , dem elasto-optischen Koeffizienten p und Burgersvektor b_E der Stufenversetzungen berechnet werden kann. Die verwendeten Materialparameter sind in Tabelle A.2 aufgeführt. Abbildung A.2 zeigt die zu erwartenden Streuverluste in einem 15 μm breiten Resonator mit einem mittleren Al-Gehalt von 0.8.

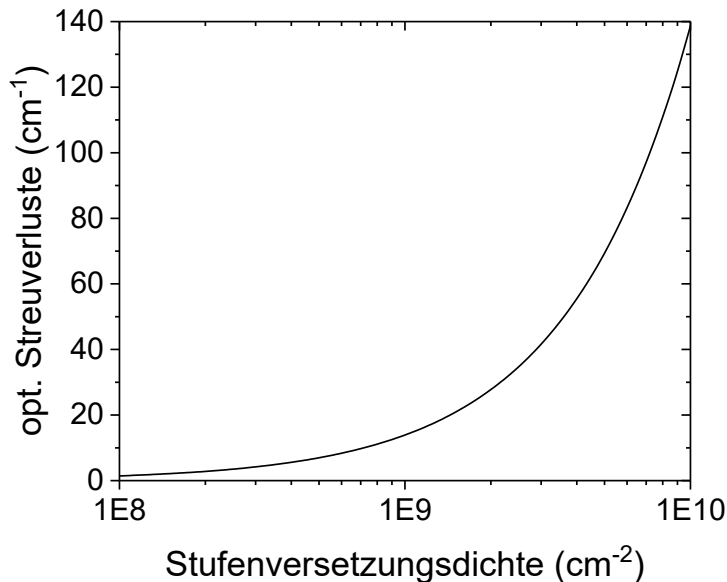


Abbildung A.2.: Nach dem Modell von Liao et al. [138] berechnete optische Streuverluste durch Stufenversetzungen in einem 15 μm breiten Resonator mit einem mittleren Al-Gehalt von 0.8.

Tabelle A.2.: Für die Berechnung der Streuverluste nach Liau et al verwendete Materialparameter. Für $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{GaN}$ wurde linear interpoliert.

Bezeichnung	Symbol	Einheit	AlN	GaN	Quelle
Poissonverhältnis	ν	–	0.191	0.210	[199]
elasto-optischer Koeff.	p	–	-0.130	-0.103	[254]
Burgersvektor von Stufenversetzungen	b_e	Å	3.113	3.189	–

Bestimmung der Ungenauigkeit statistischer Messungen

Wurde ein im Rahmen dieser Arbeit gezeigtes Ergebnis, wie z.B. die Laserschwellen durch Mehrfachmessung an verschiedenen Probenpositionen gewonnen, so wurden in der Regel der Mittelwert und die statistische Ungenauigkeit für ein Vertrauensniveau von 95 % berechnet.

Sind die Ergebnisse der n Einzelmessungen die x_i , so berechnet sich der Mittelwert über

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (\text{A.26})$$

und die Standardabweichung des Mittelwerts über

$$s_{\bar{x}} = \sqrt{\frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (\text{A.27})$$

Die Vertrauensgrenzen können durch Multiplikation von $s_{\bar{x}}$ mit dem Parameter τ berechnet werden, wobei τ entsprechend der Freiheitsgrade und dem gewünschten Vertrauensniveau aus der Student'schen t-Verteilung entnommen werden kann. Für den hier beschriebenen Fall ist die Anzahl der Freiheitsgrade gleich $n - 1$. In Tabelle A.3 sind die τ -Werte für das in dieser Arbeit gewählte Vertrauensniveau von 95 % aufgeführt. Dies bedeutet, dass der wahre Wert mit einer Wahrscheinlichkeit von 95 % im Intervall $[\bar{x} - \tau s_{\bar{x}}, \bar{x} + \tau s_{\bar{x}}]$ liegt.

Tabelle A.3.: τ -Werte der Student'schen t-Verteilung in Abhängigkeit von der Anzahl der Messwerte n für ein Vertrauensniveau von 95 %.

n	τ	n	τ	n	τ	n	τ
		6	2.447	11	2.201	16	2.120
2	4.303	7	2.365	12	2.179	17	2.110
3	3.182	8	2.306	13	2.160	18	2.101
4	2.776	9	2.262	14	2.145	19	2.093
5	2.571	10	2.228	15	2.131	20	2.086

A.2. Probendaten

Im Folgenden werden alle untersuchten Proben unterteilt nach Probenserien aufgelistet.

A.2.1. AlGa_N-Schichten für Wachstumsstudien

AlGa_N-Schichten für Wachstumsstudien wurden in Kapitel 3 diskutiert. Alle Proben wurden, soweit nicht anders angegeben, auf planaren AlN/Saphir-Templates (500 nm AlN auf c-planarem Saphir) gewachsen. Als erstes wurde stets eine 50 nm dicke AlN-Schicht gewachsen, um die Templateoberfläche, an der in der Regel Verunreinigungen wie z.B. Silizium-haltige Moleküle aus der Umgebungsluft angelagert sind, zu vergraben und eine saubere Oberfläche für die weiteren Schichten bereitzustellen.

Tabelle A.4.: In Abschnitt 3.1 und 3.3 analysierte AlGa_N-Einzelschichten. Der Al-Gehalt wurde über HRXRD- ω - 2θ -Scans des (0002)-Reflexes bestimmt während die Schichtdicken aus den in-situ gemessenen Wachstumsraten berechnet wurden.

Probe Name	Probe Nummer	T (°C)	p (mbar)	V/III	Al-Gehalt	Schichtdicke (nm)
T1	E4797	1050	200	550	0.68	128
T2	E4798	1080	200	550	0.72	125
T3	E4802	1110	200	550	0.73	125
T4	E4807	1140	200	550	0.73	132
P1	E4816	1140	60	550	0.71	132
P2	E4815	1140	100	550	0.73	123
P3	E4812	1140	150	550	0.72	128
P4	E4807	1140	200	550	0.73	132
V1	E4871	1050	200	550	0.69	128
V2	E4872	1050	200	1110	0.69	142
V3	E4870	1050	200	2250	0.71	138
V4	E4873	1050	200	3320	0.71	139

In Abschnitt 3.2 wird die Hintergrundkonzentration von Kohlenstoff, Sauerstoff und Silizium bei verschiedenen Wachstumsbedingungen untersucht. Zu diesem Zweck wurden drei Proben mit je vier AlGa_N-Schichten auf planaren AlN/Saphir-Templates gewachsen. Die Wachstumsbedingungen und Schichtdicken der AlGa_N-Schichten sind in Tabelle A.5 dargestellt und entsprechen denen der Einzelschichten in Tabelle A.4. Zwischen den AlGa_N-Schichten wurden ca. 30 nm dicke AlN-Schichten gewachsen, während gleichzeitig der variierte Wachstumsparameter (T, p, V/III) graduell auf den Zielwert für die nächste Schicht eingestellt wurde. Die AlN-Schichten dienen durch das fehlende Gallium gleichzeitig als in der SIMS erkennbare Trennschichten. Den Abschluss jeder Probe bildet eine >100 nm dicke AlN-Schicht, da die SIMS typischerweise erst ab einer Tiefe von ungefähr 100 nm verlässliche Ergebnisse liefert.

Tabelle A.5.: Wachstumsbedingungen und über die in-situ Wachstumsrate berechnete Schichtdicken der AlGaIn-Schichten in den Proben zur Bestimmung von C-, O- und Si-Konzentration mittels SIMS (Abschnitt 3.2). Die Al-Gehalte wurden nicht explizit bestimmt, sollten aber aufgrund der identischen Wachstumsbedingungen ungefähr den in Tabelle A.4 aufgeführten Al-Gehalten entsprechen.

Schicht	T (°C)	p (mbar)	V/III	Schichtdicke (nm)
Probe P E5032				
1	1140	200	550	105
2	1140	150	550	108
3	1140	100	550	116
4	1140	60	550	127
Probe T E5033				
1	1050	200	550	105
2	1080	200	550	102
3	1110	200	550	112
4	1140	200	550	114
Probe V E5034				
1	1050	200	550	117
2	1050	200	1100	113
3	1050	200	2200	115
4	1050	200	3300	107

Tabelle A.6.: Wachstumsbedingungen sowie Wachstumsrate WR und Al-Gehalt x für die zwei AlGaIn-Schichten der bei identischen Bedingungen auf einem SiC- und einem TaC-beschichteten Satelliten überwachsenen Wafer. Mit (*) gekennzeichnete Wachstumstemperaturen sind mittels LayTec EpiTT in-situ gemessen, mit (**) gekennzeichnete Temperaturen wurden aus Simulationen und dem Al-Gehalt errechnet.

Probe	Beschichtung	Schicht	T (°C)	p (mbar)	V/III	WR (nm/h)	x
E5142-5	SiC	1	1050*	200	550	87	0.62
E5142-5	SiC	2	1140*	200	550	109	0.66
E5142-10	TaC	1	1103**	200	550	60	0.77
E5142-10	TaC	2	1215**	200	550	78	0.82

Tabelle A.7.: Wachstumsbedingungen sowie Wachstumsrate WR und Schichtdicke von zwei AlN-Schichten, die bei annähernd identischen Bedingungen unter Verwendung SiC-beschichteter bzw. TaC-beschichteter Reaktorteile auf c-planaren Saphirwafern gewachsen wurden. Als Temperatur ist in diesem Fall die auf der Rückseite des Suszeptors gemessene Prozesstemperatur T_{proc} gegeben, da die Satellitentemperatur in-situ auf den TaC-beschichteten Waferhaltern nicht direkt gemessen werden kann.

Probe	Beschichtung	T_{proc} (°C)	p (mbar)	V/III	WR (nm/h)	Schichtdicke (nm)
E4914-1	SiC	1190	50	30	1500	1000
E4934-1	TaC	1200	50	30	1500	500

A.2.2. Laserproben

Die in dieser Arbeit untersuchten Laserproben sind in der Regel sowohl auf planaren als auch auf ELO-Templates, teilweise mit unterschiedlichen Fehlschnittwinkeln und -richtungen, gewachsen worden. Bei Wachstum auf ELO-Templates können aufgrund der Streuung an der ELO-Strukturierung keine verlässlichen in-situ Daten zur Wachstumsrate gewonnen werden, weshalb das zusätzliche Wachstum auf einem planaren Templates sinnvoll ist. Da die Schichtstrukturen bereits in den Kapiteln 4 und 5 aufgeführt sind, werden im Folgenden nur die eindeutigen Probenbezeichnungen sowie die verwendeten Templates und die variierten Parameter gelistet.

Tabelle A.8.: Liste der in Abschnitt 4.1 analysierten Laserproben. Variiert wurde die Wachstumstemperatur der Heterostruktur. Es sind der vom Hersteller angegebene nominelle Fehlschnittwinkel und die Fehlschnitttrichtung im Saphir aufgeführt (vgl. Abb. 2.5). Falls Ergebnisse vermuten lassen, dass die nominellen Werte nicht korrekt sind, sind auch die vermuteten realen Werte angegeben.

Probe	Template	Fehlschnitt		T (°C)
		nom.	real	
E4420-2	ELO	0.2° m	0.1° m	1100
E4420-5	planar	0.2° m		1100
E4421-2	ELO	0.2° m	0.1° m	1060
E4421-5	planar	0.2° m		1060
E4422-2	ELO	0.2° m	0.1° m	1080
E4422-5	planar	0.2° m		1080
E4422-11	ELO	0.2° a		1080

Tabelle A.9.: Liste der in Abschnitt 4.2 und 4.3 analysierten Laserproben. Variiert wurden Fehlschnitt und Versetzungsdichte der Templates sowie Quantenfilmanzahl und -dicke. Es sind der vom Hersteller angegebene nominelle Fehlschnittwinkel und die Fehlschnitttrichtung im Saphir aufgeführt. Die Versetzungsdichte wurde bei den ELO-Templates über TEM und bei den planaren Templates über HRXRD bestimmt.

Probe	Template	nom. Fehlschnitt	TDD (cm^{-2})	QW-Anzahl	QW-Dicke (nm)
E4891-5	ELO	0.1° m	3×10^9	4	1.5
E4891-7	ELO	0.1° m	1×10^{10}	4	1.5
E4891-11	ELO	0.2° m	1×10^9	4	1.5
E4892-2	planar	0.2° m	2×10^{10}	2	3.0
E4892-5	ELO	0.1° m	3×10^9	2	3.0
E4892-7	ELO	0.1° m	1×10^{10}	2	3.0
E4892-11	ELO	0.2° m	1×10^9	2	3.0
E4893-2	planar	0.2° m	2×10^{10}	1	6.0
E4893-5	ELO	0.1° m	3×10^9	1	6.0
E4893-7	ELO	0.1° m	1×10^{10}	1	6.0
E4893-11	ELO	0.2° m	1×10^9	1	6.0

Tabelle A.10.: Liste der in Kapitel 5 analysierten Si-dotierten Laserproben. Es wurde die Dotierhöhe sowie die dotierten Schichten variiert. Es sind der vom Hersteller angegebene nominelle Fehlschnittwinkel und die Fehlschnitttrichtung im Saphir aufgeführt. Falls Ergebnisse vermuten lassen, dass die nominellen Werte nicht korrekt sind, sind auch die vermuteten realen Werte angegeben.

Probe	Template	nom. Fehlschnitt	real Fehlschnitt	dot. Schichten	Si-Konz. (cm^{-3})
E5279-2	ELO	0.1° m		QWs	1×10^{17}
E5279-5	planar	0.1° m		QWs	1×10^{17}
E5279-7	ELO	0.1° m	0.2° m	QWs	1×10^{17}
E5280-2	ELO	0.1° m		QWs	5×10^{17}
E5280-5	planar	0.1° m		QWs	5×10^{17}
E5280-7	ELO	0.1° m		QWs	5×10^{17}
E5281-2	ELO	0.1° m		QWs	1×10^{18}
E5281-5	planar	0.1° m		QWs	1×10^{18}
E5281-7	ELO	0.1° m		QWs	1×10^{18}
E5282-2	ELO	0.1° m	0.2° m	QWs	1×10^{19}
E5282-5	planar	0.1° m		QWs	1×10^{19}
E5282-7	ELO	0.1° m		QWs	1×10^{19}

Probe	Template	Fehlschnitt		dot. Schichten	Si-Konz. (cm ⁻³)
		nom.	real		
E5283-2	ELO	0.1° m		alle	6×10^{16}
E5283-5	planar	0.1° m		alle	6×10^{16}
E5283-7	ELO	0.1° m		alle	6×10^{16}
E5284-2	ELO	0.1° m		alle	1×10^{17}
E5284-5	planar	0.1° m		alle	1×10^{17}
E5284-7	ELO	0.1° m	0.2° m	alle	1×10^{17}
E5285-2	ELO	0.1° m		alle	5×10^{17}
E5285-5	planar	0.1° m		alle	5×10^{17}
E5285-7	ELO	0.1° m		alle	5×10^{17}
E5286-2	ELO	0.1° m		alle	1×10^{18}
E5286-5	planar	0.1° m		alle	1×10^{18}
E5286-7	ELO	0.1° m		alle	1×10^{18}
E5287-2	ELO	0.1° m		alle	1×10^{19}
E5287-5	planar	0.1° m		alle	1×10^{19}
E5287-7	ELO	0.1° m		alle	1×10^{19}
E5288-2	ELO	0.1° m		QBs	1×10^{17}
E5288-5	planar	0.1° m		QBs	1×10^{17}
E5288-7	ELO	0.1° m	0.2° m	QBs	1×10^{17}
E5289-2	ELO	0.1° m		QBs	5×10^{17}
E5289-5	planar	0.1° m		QBs	5×10^{17}
E5289-7	ELO	0.1° m		QBs	5×10^{17}
E5290-2	ELO	0.1° m		QBs	1×10^{18}
E5290-5	planar	0.1° m		QBs	1×10^{18}
E5290-7	ELO	0.1° m		QBs	1×10^{18}
E5291-2	ELO	0.1° m		QBs	1×10^{19}
E5291-5	planar	0.1° m		QBs	1×10^{19}
E5291-7	ELO	0.1° m		QBs	1×10^{19}

A.3. Konstanten und Materialparameter

Tabelle A.11.: Nützliche physikalische Konstanten und Materialparameter

Bezeichnung	Symbol	Wert	Einheit	Quelle
Lichtgeschwindigkeit	c_0	2.99792458×10^8	m/s	[255]
Elementarladung	e	$1.60217646 \times 10^{-19}$	C	[255]
Elektronenmasse	m_0	$9.1093819 \times 10^{-31}$	kg	[255]
Boltzmann-Konstante	k_B	1.38065×10^{-23}	J/K	[255]
Plancksches Wirkungsquantum	A_3	$6.6260688 \times 10^{-34}$	J s	[255]
Avogadro-Konstante	N_A	$6.022140857 \times 10^{23}$	mol ⁻¹	[256]
molares Volumen (ideales Gas)	V_m	22.413962	mol/L	[257]
Standarddruck	p_{std}	1.01325	bar	[258]
Dampfdruckparameter TMAI (Formel A.1)	A	8.224	–	[245]
Dampfdruckparameter TMAI (Formel A.1)	B	2134	K	[245]
Dampfdruckparameter TMGa (Formel A.1)	A	8.07	–	[246]
Dampfdruckparameter TMGa (Formel A.1)	B	1703	K	[246]

Tabelle A.12.: In den Simulationen verwendete Materialparameter für AlN und GaN. Die Interpolation für $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ erfolgte für alle Größen außer der Bandlücke linear. Für E_g wurde ein Bowingparameter von 0.7 verwendet [21].

Bezeichnung	Symbol	Einheit	AlN	GaN	Quelle
effektive Elektronenmasse (z)	$m_e^\perp$	m_0	0.33	0.20	[83]
effektive Elektronenmasse (x,y)	$m_e^\parallel$	m_0	0.25	0.18	[83]
Parameter f. eff. Löchermasse	A_1	–	-3.95	-7.24	[83]
Parameter f. eff. Löchermasse	A_2	–	-0.27	-0.51	[83]
Parameter f. eff. Löchermasse	A_3	–	3.68	6.73	[83]
Parameter f. eff. Löchermasse	A_4	–	-1.84	-3.36	[83]
Parameter f. eff. Löchermasse	A_5	–	-1.92	-3.35	[83]
Parameter f. eff. Löchermasse	A_6	–	-2.91	-4.72	[83]
Bandlückenenergie (300 K)	E_g	eV	6	3.43	[83, 259]
Spin-Bahn-Aufspaltung	Δ_{so}	eV	-0.164	0.019	[83]
Kristallfeldaufspaltung	Δ_{cr}	eV	0.01913	0.01413	[22]
Gitterkonstante	a_0	Å	3.112	3.189	[22]
Gitterkonstante	c_0	Å	4.982	5.186	[83]
Elastische Konstante (z)	C_{33}	GPa	382	392	[83]
Elastische Konstante (x,y)	C_{13}	GPa	127	100	[83]
Piezelektrische Konstante (z)	e_{33}	C/m ²	1.79	1.27	[131]
Piezelektrische Konstante (x,y)	e_{31}	C/m ²	-0.5	-0.35	[131]
Spontane Polarisation	P_{sp}	C/m ²	-0.081	-0.029	[131]
Elektronenmobilität	μ_e	cm ² /(V s)	100	100	[128, 130]
Löchermobilität	μ_h	cm ² /(V s)	5	5	[129]
Elektronen-Auger-Koeffizient	C_n	cm ⁶ /s	3×10^{-30}	3×10^{-30}	[73, 74]
Löcher-Auger-Koeffizient	C_p	cm ⁶ /s	3×10^{-30}	3×10^{-30}	[73, 74]
Grenzflächenrekombinationsgeschwindigkeit	s_i	cm/s	1000	1000	[134, 135]
Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit	s_s	cm/s	10^7	10^7	[134]

Anhang B.

Verzeichnisse

Abkürzungsverzeichnis

Allgemeine Abkürzungen

ADF	annulare Dunkelfeldaufnahme (Annular Dark Field)
AFM	Rasterkraftmikroskop (Atomic Force Microscope)
b.E.	beliebige Einheiten
BKE	Bandkantenemission
CL	Kathodolumineszenz (Cathodoluminescence)
cw	kontinuierlich (continous wave)
DL	Defektlumineszenz
DOS	Zustandsdichte (Density of States)
DQW	Doppelquantenfilm (Double Quantum Well)
EDD	Stufenversetzungsdichte (Edge Dislocation Density)
ELO	epitaktisches laterales Überwachsen (Epitaxial Lateral Overgrowth)
FIB	fokussierter Ionenstrahl (Focused Ion Beam)
FWHM	Halbwertsbreite (Full Width at Half Maximum)
GR	Wachstumsrate (Growth Rate)
HAADF	annulare Dunkelfeldaufnahme bei großen Winkeln (High Angle Annular Dark Field)
hh	Schwerloch (heavy hole)
HRXRD	Hochauflösende Röntgendiffraktometrie (High Resolution X-Ray Diffraction)
IQE	interne Quanteneffizienz
LB	Leitungsband
LED	Licht emittierende Diode
lh	Leichtloch (light hole)
MOVPE	Metallorganische Gasphasenepitaxie (Metal Organic Vapor Phase Epitaxy)
MQW	Mehrfachquantenfilm (Multi Quantum Well)
PL	Photolumineszenz
QB	Quantenbarriere (Quantum Barrier)
QCSE	Quantum Confined Stark Effect
QQW	Vierfachquantenfilm (Quadruple Quantum Well)
QW	Quantenfilm (Quantum Well)
REM	Rasterelektronenmikroskopie

RSM	Reciprocal Space Map, zweidimensionale Messung der Intensitätsverteilung im reziproken Raum
SDD	Schraubenversetzungsdichte (Screw Dislocation Density)
SIMS	Sekundärionenmassenspektrometrie
SL	Übergitter (Superlattice)
so	Split-Off
SQW	Einzelquantenfilm (Single Quantum Well)
SRH	Shockley-Read-Hall
STEM	Rastertransmissionselektronenmikroskopie (Scanning Transmission Electron Microscopy)
TDD	Durchstoßversetzungsdichte (Threading Dislocation Density)
TE	transversal elektrisch
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
TM	transversal magnetisch
UV	Ultraviolett, Spektralbereich zwischen 10 nm und 380 nm
VB	Valenzband
V_{III}	Gruppe-III-Vakanz, fehlendes Al/Ga-Atom im Kristall

Stoffe und Materialien

Al	Aluminium
Al₂O₃	Saphir, Aluminium(III)-oxid
AlGaN	Aluminiumgalliumnitrid
AlN	Aluminiumnitrid
ArF	Argonfluorid
DMAI	Dimethylaluminium
DMGa	Dimethylgallium
Ga	Gallium
GaN	Galliumnitrid
H₂	Wasserstoff
MMAI	Monomethylaluminium
MMGa	Monomethylgallium
NH₃	Ammoniak
Si	Silizium oder auch Siliziumkonzentration
Si₂H₆	Disilan

SiC	Siliziumkarbid
TaC	Tantalkarbid
TMAI	Trimethylaluminium
TMGa	Trimethylgallium

Symbole

$E_{\mathbf{A}}$	Aktivierungsenergie
$E_{\mathbf{g}}$	Bandlücke
n	Elektronenkonzentration
p	Löcherkonzentration
λ	Wellenlänge
$P_{\mathbf{thr}}$	Schwellenleistungsdichte
Q	molarer oder volumentrischer Fluss
$\tau_{\mathbf{nr}}$	nichtstrahlende Lebensdauer
$\tau_{\mathbf{rad}}$	strahlende Lebensdauer
x	Stoffmengenanteil von Aluminium

Tabellenverzeichnis

1.1.	Gitterkonstanten a und c sowie Bandlücken E_g von AlN und GaN (aus [22]).	4
3.1.	Übersicht über die gewählten Wachstumsparameterkombinationen aus Wafer-temperatur T , Reaktordruck p und V/III-Verhältnis	38
3.2.	Konzentrationen von Si, C und O in $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten in Abhängigkeit von T , p und V/III	45
3.3.	Wachstumsbedingungen und Si-Konzentration für gleichzeitig auf einem TaC- und einem SiC-beschichteten Waferhalter gewachsene Proben	48
4.1.	Schichtdicken und -zusammensetzungen der Laserstrukturen	60
4.2.	HRXRD-FWHM und Versetzungsdichten in Laserstrukturen auf 0.1° bzw. 0.2° verkippten ELO-Templates	71
5.1.	Übersicht über die für die einzelnen Heterostrukturen verwendeten Template-wafer	86
A.1.	Für die Berechnung der nichtstrahlenden Lebensdauer nach Karpov und Makarov [133] verwendete Materialparameter.	109
A.2.	Für die Berechnung der Streuverluste nach Liao et al verwendete Materialparameter	111
A.3.	τ -Werte der Student'schen t -Verteilung in Abhängigkeit von der Anzahl der Messwerte n für ein Vertrauensniveau von 95 %.	111
A.4.	Probenliste der in Abschnitt 3.1 und 3.3 analysierten AlGaIn-Einzelschichten	112
A.5.	Proben, Wachstumsbedingungen und Schichtdicken der SIMS-Proben zur Bestimmung von C-, O- und Si-Konzentration	113
A.6.	Wachstumsbedingungen der gleichzeitig auf SiC- und auf TaC-Waferhalter gewachsenen Proben	113
A.7.	Wachstumsbedingungen sowie Wachstumsrate WR und Schichtdicke von zwei AlN-Schichten, die bei annähernd identischen Bedingungen unter Verwendung SiC-beschichteter bzw. TaC-beschichteter Reaktorteile auf c-planaren Saphirwafern gewachsen wurden. Als Temperatur ist in diesem Fall die auf der Rückseite des Suszeptors gemessene Prozesstemperatur T_{proc} gegeben, da die Satellitentemperatur in-situ auf den TaC-beschichteten Waferhaltern nicht direkt gemessen werden kann.	114
A.8.	Liste der in Abschnitt 4.1 analysierten Laserproben	114
A.9.	Liste der in Abschnitt 4.2 und 4.3 analysierten Laserproben	115
A.10.	Liste der in Kapitel 5 analysierten Si-dotierten Laserproben	115
A.11.	Nützliche physikalische Konstanten und Materialparameter	117
A.12.	In den Simulationen verwendete Materialparameter für AlN und GaN.	118

Abbildungsverzeichnis

1.1.	Einheitszelle sowie Bandlücke und Gitterkonstante von AlGaN	4
1.2.	Bandstruktur von GaN und AlN am Γ -Punkt	5
1.3.	Schematische Darstellung des Quantum Confined Stark Effect sowie experimentelle Wellenlängenverschiebung	6
1.4.	Generations- und Rekombinationsprozesse in Halbleitern	10
1.5.	Heterostruktur eines Kantenemitter-Lasers sowie Brechungsindexprofil und vertikale optische Grundmode	12
1.6.	Cut-off-Wellenleiterdicken für verschiedene vertikale Moden	13
1.7.	Schematische Darstellung der Laserbedingung in einem Kantenemitter	15
2.1.	Innen- und Außenansicht der AIX2400 G3 HT MOVPE-Anlage	18
2.2.	Reaktorquerschnitt in der MOVPE-Simulation mit Temperaturverteilung . . .	19
2.3.	Reaktionswege bei der AlGa _N -MOVPE	19
2.4.	Exemplarische berechnete Stoffverteilungen im MOVPE-Reaktor	20
2.5.	Schematische Gitteranpassung von AlN auf Saphir und Ausrichtung der Kristallebenen auf dem Wafer	21
2.6.	Schematische Darstellung der verwendeten AlN/Saphir-Templates	23
2.7.	Einfluss von variierenden Templateeigenschaften auf die Laserschwellen	23
2.8.	Stabilität des MOVPE-Reaktor anhand der Eigenschaften identischer Standardstrukturen	24
2.9.	Si-Konzentration und spezifischer Widerstand über SiH ₄ /III-Fluss	25
2.10.	REM-Aufnahmen der gespaltenen Laserfacetten	26
2.11.	HRXRD-RSM der ($\bar{1}012$)-Reflexe einer AlGa _N -Laserstruktur	28
2.12.	Anregungsvolumen im REM und spektrale Fits bei CL-Mappings	29
2.13.	Exemplarische SIMS-Tiefenprofile mit typischen Features	31
2.14.	Illustration der Abhängigkeit der PL-Intensität von der wellenlängenabhängigen Detektionseffizienz	32
2.15.	Schematische Darstellung des Messaufbaus zum optischen Pumpen	33
2.16.	Veranschaulichung der Bestimmung der Laserschwelle über Kennlinie und Linienbreite	34
2.17.	Simulationsmodell einer AlGa _N -Laserstruktur und berechnete optische Intensitätsverteilung	36
3.1.	Wachstumsraten der 130 nm dicken Al _{0,7} Ga _{0,3} N-Schichten aufgetragen über den variierten Parametern	39
3.2.	AlN- und GaN-Wachstumseffizienzen der Al _{0,7} Ga _{0,3} N-Schichten aufgetragen über den variierten Parametern	39
3.3.	Vergleich der MOVPE-Simulationen mit den experimentellen Wachstumsraten und -effizienzen bei verschiedenen Wachstumstemperaturen	40
3.4.	Vergleich der simulierten Partikeldichte und MMGa-Verteilung mit AlN- bzw. mit AlGa _N -Gasphasenreaktionen	41
3.5.	Aus den Simulationen berechnete GaN-Ätzrate	42

3.6.	Experimentell ermittelte und simulierte Wachstumsraten, -effizienzen sowie berechnete GaN-Ätzrate in Abhängigkeit vom Reaktordruck	42
3.7.	Experimentell ermittelte und simulierte Wachstumsraten, -effizienzen sowie berechnete GaN-Ätzrate in Abhängigkeit vom V/III-Verhältnis	43
3.8.	Abhängigkeit der Siliziumhintergrundkonzentration von Wachstumstemperatur und Wachstumsrate	46
3.9.	Si-Konzentrationen für gleichzeitig auf einem TaC- und einem SiC-beschichteten Waferhalter gewachsene Proben aufgetragen über der Wachstumstemperatur .	49
3.10.	SIMS-Profil der Si-Konzentration in zwei AlN-Schichten, gewachsen unter ausschließlicher Verwendung von TaC- bzw. SiC-beschichteten Waferhaltern .	50
3.11.	Typisches PL-Spektrum einer 130 nm dicken $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schicht	51
3.12.	PL-Intensität der Bandkantenemission der $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten in Abhängigkeit von Wachstumstemperatur, -druck und V/III-Verhältnis	52
3.13.	PL-Intensitäten der Bandkanten- und der Defektlumineszenz der $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten aufgetragen über der Si-Konzentration	53
3.14.	Vergleich der Abhängigkeit der PL-Intensität der $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ -Schichten von der Si-Konzentration mit verschiedenen Modellen	55
4.1.	AFM-Aufnahmen der Templates und der auf diesen gewachsenen Laser	61
4.2.	CL-Aufnahmen der bei 1080 °C auf den verschiedenen Templates gewachsenen Laserproben	61
4.3.	Sekundärelektronenbild, CL-Aufnahme sowie aus einem CL-Mapping extrahierte Intensitäts- und Wellenlängenverteilung einer 1080 °C auf m-verkipptem ELO gewachsenen Laserstruktur	63
4.4.	Sekundärelektronenbild, CL-Aufnahme sowie aus einem CL-Mapping extrahierte Intensitäts- und Wellenlängenverteilung einer 1080 °C auf a-verkipptem ELO gewachsenen Laserstruktur	64
4.5.	STEM-Aufnahme sowie extrahierte QW-Dicke und Ga-Gehalt in einer Laserstruktur auf bzw. neben einer ELO-Makrostufe	64
4.6.	Sekundärelektronenbild, CL-Aufnahme sowie aus einem CL-Mapping extrahierte Intensitäts- und Wellenlängenverteilung einer 1080 °C auf planarem Template gewachsenen Laserstruktur	65
4.7.	CL-Spektren der auf m-verkipptem ELO bei 1060 °C, 1080 °C und 1100 °C gewachsenen Laserproben	66
4.8.	PL-Spektren und anregungsleistungsabhängige IQEs der bei verschiedenen Temperaturen auf unterschiedlichen Templates gewachsenen Laserproben . .	67
4.9.	Kennlinien und polarisationsabhängige Spektren der Lasing zeigenden Heterostrukturen	68
4.10.	Simulierte Abhängigkeit der Schwellenleistungsdichte und der Ladungsträgerdichte in den QWs von der Dicke der AlN-Cap-Schicht	69
4.11.	Laserswellen der drei untersuchten Heterostrukturen auf 0.1° bzw. 0.2° nach m-verkippten Templates	70
4.12.	AFM-, CL- und ADF-STEM-Aufnahmen sowie CL-Mappings der Peakwellenlänge von auf 0.1° bzw. 0.2°-verkippten ELO-Templates gewachsenen Lasern .	72

4.13. Sekundärelektronen- und CL-Aufnahme sowie Verteilung der Peakwellenlänge von Laserstrukturen auf ELO-Templates mit und ohne Makrostufen	73
4.14. Gemittelte Laserschwelen der drei untersuchten Heterostrukturen auf einem Template mit und einem ohne Makrostufen	74
4.15. Schichtaufbau der drei Laserheterostrukturen mit 4, 2 und 1 Quantenfilm . .	75
4.16. Exemplarische Kennlinie und Laserspektrum sowie mittlere Laserschwelen in Abhängigkeit vom Template und der Quantenfilmanzahl/-dicke	76
4.17. CL-Aufnahmen und Peakwellenlängenverteilung für QQW-, DQW- und SQW-Laserstrukturen auf Templates mit unterschiedlichem Fehlschnitt	77
4.18. CL-Spektren für 1.5 nm QQW-, 3 nm DQW- und 6 nm SQW-Laserstrukturen auf Templates mit unterschiedlichem Fehlschnitt	78
4.19. Berechneter Überlapp der Elektronen- und Lochwellenfunktion in Abhängigkeit von der Quantenfilmdicke	78
4.20. Experimentell bestimmte und über Simulationen berechnete Laserschwelen für die SQW, DQW und QQW-Heterostruktur auf verschiedenen Templates .	79
4.21. (a) Simulierte Ladungsträgerverteilung in den Quantenfilmen; (b) Bandverlauf im QQW	80
4.22. (a) Simulierte Laserschwelen als Funktion der Quantenfilmanzahl/-dicke mit bzw. ohne QCSE und Grenzflächenrekombination; (b) Simulierte Laser-Kennlinien unter- und oberhalb der Schwelle	81
4.23. Simulierte Gewinnkurven der verschiedenen Heterostrukturen auf unterschiedlichen Templates	82
5.1. Schichtstruktur und Dotierprofile der Laserheterostrukturen	85
5.2. Laserschwelle, PL-IQE und PL-FWHM aufgetragen über der Si-Konzentration für Proben, bei denen nur die QWs dotiert wurden	87
5.3. CL-Mappings der Peakwellenlängenverteilung für unterschiedliche Si-Konzentrationen bei QW-Dotierung	88
5.4. Laserschwelle, PL-IQE und PL-FWHM aufgetragen über der Si-Konzentration für Proben, bei denen nur die Barrieren dotiert wurden	89
5.5. CL-Mappings der Peakwellenlängenverteilung für unterschiedliche Si-Konzentrationen bei Barrieren-Dotierung	89
5.6. PL-IQE über Si-Konzentration bei Barrieren-Dotierung sowie berechnete Abhängigkeit von der Dichte freier Ladungsträger bei Niederanregung und bei Hochanregung	90
5.7. Laserschwelle, PL-IQE und PL-FWHM aufgetragen über der Si-Konzentration für Proben, bei denen die gesamte Heterostruktur dotiert wurde	91
5.8. CL-Mappings der Peakwellenlängenverteilung für unterschiedliche Si-Konzentrationen bei Dotierung der gesamten Heterostruktur	92
5.9. STEM-Aufnahmen der Si-dotierten Laserheterostrukturen	93
5.10. Vergleich der Laserschwelen, PL-IQEs und PL-FHWMs für Dotierung verschiedener Schichten	94

5.11. Berechneter Überlapp der Elektronen- und Lochwellenfunktion in den Quantenfilmen in Abhängigkeit von der Dotierung in QW, QB bzw. der gesamten Heterostruktur	96
5.12. Im Rahmen dieser Arbeit erzielte Abnahme der Laserschwelen von AlGaN-Quantenfilmstrukturen	101
A.1. Nach dem Modell von Karpov und Makarov [133] für AlN berechnete nicht-strahlende Lebensdauern	109
A.2. Nach dem Modell von Liao et al. [138] berechnete optische Streuverluste durch Stufenversetzungen in einem 15 μm breiten Resonator mit einem mittleren Al-Gehalt von 0.8.	110

Literaturverzeichnis

- [1] P. Crump, J. Wang, T. Crum, S. Das, M. DeVito, W. Dong, J. Farmer, Y. Feng, M. Grimshaw, D. Wise, and S. Zhang. > 360 W and > 70% efficient GaAs-based diode lasers. In *Proc. SPIE*, 5711:21, San Jose, California, USA, March 2005. <http://dx.doi.org/10.1117/12.602577>.
- [2] 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.*, 28(12A):L2112, December 1989. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.28.L2112>.
- [3] S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh, and N. Iwasa. Thermal Annealing Effects on P-Type Mg-Doped GaN Films. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 31(Part 2, No. 2B):L139–L142, February 1992. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.31.L139>.
- [4] S. Nakamura, N. Iwasa, M. Senoh, and T. Mukai. Hole Compensation Mechanism of P-Type GaN Films. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 31(5R):1258, May 1992. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.31.1258>.
- [5] J. Heber. Nobel Prize 2014: Akasaki, Amano & Nakamura. *Nat. Phys.*, 10(11):791–791, November 2014. <http://dx.doi.org/10.1038/nphys3147>.
- [6] H. Yoshida, Y. Yamashita, M. Kuwabara, and H. Kan. Demonstration of an ultraviolet 336 nm AlGaIn multiple-quantum-well laser diode. *Appl. Phys. Lett.*, 93(24):241106, December 2008. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3050539>.
- [7] F. Giannazzo, G. Fisichella, G. Greco, A. La Magna, F. Roccaforte, B. Pecz, R. Yakimova, R. Dagher, A. Michon, and Y. Cordier. Graphene integration with nitride semiconductors for high power and high frequency electronics. *Phys. Status Solidi A*, 214(4):n/a–n/a, April 2017. <http://dx.doi.org/10.1002/pssa.201600460>.
- [8] Y. Zhang, S. Krishnamoorthy, F. Akyol, A. A. Allerman, M. W. Moseley, A. M. Armstrong, and S. Rajan. Design and demonstration of ultra-wide bandgap AlGaIn tunnel junctions. *Appl. Phys. Lett.*, 109(12):121102, September 2016. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4962900>.
- [9] N. Ruhnke, A. Müller, B. Eppich, M. Maiwald, B. Sumpf, G. Erbert, and G. Tränkle. Compact Deep UV System at 222.5 nm Based on Frequency Doubling of GaN Laser Diode Emission. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 30(3):289–292, February 2018. <http://dx.doi.org/10.1109/LPT.2017.2787463>.
- [10] T. Hayashi, Y. Kawase, N. Nagata, T. Senga, S. Iwayama, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, I. Akasaki, and T. Matsumoto. Demonstration of electron beam laser excitation in the UV range using a GaN/AlGaIn multiquantum well active layer. *Sci. Rep.*, 7(1):2944, June 2017. <http://dx.doi.org/10.1038/s41598-017-03151-8>.

-
- [11] N. Johnson, B. Cheng, S. Choi, C. Chua, C. Knollenberg, J. E. Northrup, M. Teepe, T. Wunderer, and Z. Yang. Mid-UV AlGaIn lasers on bulk AlN substrates. In *Proc. Int. Workshop Nitrides*, pages 2–4, Sapporo, Japan, October 2012.
- [12] H. Kawanishi, M. Senuma, and T. Nukui. Anisotropic polarization characteristics of lasing and spontaneous surface and edge emissions from deep-ultraviolet ($\lambda \approx 240$ nm) AlGaIn multiple-quantum-well lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 89(4):041126, July 2006. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2236792>.
- [13] X.-H. Li, T.-T. Kao, M. M. Satter, Y. O. Wei, S. Wang, H. Xie, S.-C. Shen, P. D. Yoder, A. M. Fischer, F. A. Ponce, T. Detchprohm, and R. D. Dupuis. Demonstration of transverse-magnetic deep-ultraviolet stimulated emission from AlGaIn multiple-quantum-well lasers grown on a sapphire substrate. *Appl. Phys. Lett.*, 106(4):041115, January 2015. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4906590>.
- [14] F. A. Ponce, J. S. Major, W. E. Plano, and D. F. Welch. Crystalline structure of AlGaIn epitaxy on sapphire using AlN buffer layers. *Appl. Phys. Lett.*, 65(18):2302–2304, October 1994. <http://dx.doi.org/10.1063/1.112724>.
- [15] H. Tsuchiya, K. Sunaba, T. Suemasu, and F. Hasegawa. Growth of thick and pure cubic GaN on (001) GaAs by halide VPE. *Journal of Crystal Growth*, 198-199:1056–1060, March 1999. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(98\)01182-8](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(98)01182-8).
- [16] B. M. Shi, M. H. Xie, H. S. Wu, N. Wang, and S. Y. Tong. Transition between wurtzite and zinc-blende GaN: An effect of deposition condition of molecular-beam epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 89(15):151921, 2006. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2360916>.
- [17] S. V. Novikov, N. M. Stanton, R. P. Campion, R. D. Morris, H. L. Geen, C. T. Foxon, and A. J. Kent. Growth and characterization of free-standing zinc-blende (cubic) GaN layers and substrates. *Semicond. Sci. Technol.*, 23(1):015018, 2008. <http://dx.doi.org/10.1088/0268-1242/23/1/015018>.
- [18] H. Morkoç. *Handbook of Nitride Semiconductors and Devices, Materials Properties, Physics and Growth*, volume 1. Wiley-VCH, Weinheim : Chichester, May 2008.
- [19] L. Vegard. Die Konstitution der Mischkristalle und die Raumfüllung der Atome. *Z. Physik*, 5(1):17–26, Januar 1921. <http://dx.doi.org/10.1007/BF01349680>.
- [20] J. C. Mikkelsen and J. B. Boyce. Atomic-Scale Structure of Random Solid Solutions: Extended X-Ray-Absorption Fine-Structure Study of GaInAs. *Phys. Rev. Lett.*, 49(19):1412–1415, November 1982. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.49.1412>.
- [21] I. Vurgaftman and J. R. Meyer. Band parameters for nitrogen-containing semiconductors. *Journal of Applied Physics*, 94(6):3675–3696, August 2003. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1600519>.

- [22] J. Piprek. *Nitride Semiconductor Devices: Principles and Simulation*. Wiley-VCH, Weinheim, January 2007.
- [23] A. Adams. Strained-Layer Quantum-Well Lasers. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 17(5):1364–1373, September 2011. <http://dx.doi.org/10.1109/JSTQE.2011.2108995>.
- [24] C. Persson, A. Ferreira da Silva, R. Ahuja, and B. Johansson. Effective electronic masses in wurtzite and zinc-blende GaN and AlN. *Journal of Crystal Growth*, 231(3): 397–406, October 2001. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(01\)01470-1](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(01)01470-1).
- [25] C. Reich, M. Guttman, M. Feneberg, T. Wernicke, F. Mehnke, C. Kuhn, J. Rass, M. Lapeyrade, S. Einfeldt, A. Knauer, V. Kueller, M. Weyers, R. Goldhahn, and M. Kneissl. Strongly transverse-electric-polarized emission from deep ultraviolet AlGaIn quantum well light emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.*, 107(14):142101, October 2015. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4932651>.
- [26] J. Zhang, H. Zhao, and N. Tansu. Effect of crystal-field split-off hole and heavy-hole bands crossover on gain characteristics of high Al-content AlGaIn quantum well lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 97(11):111105, September 2010. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3488825>.
- [27] Z. Bryan, I. Bryan, S. Mita, J. Tweedie, Z. Sitar, and R. Collazo. Strain dependence on polarization properties of AlGaIn and AlGaIn-based ultraviolet lasers grown on AlN substrates. *Appl. Phys. Lett.*, 106(23):232101, June 2015. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4922385>.
- [28] H. Morkoç. General Properties of Nitrides. In *Handbook of Nitride Semiconductors and Devices: Materials Properties, Physics and Growth, Volume 1*, pages 1–129. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, September 2009. <http://dx.doi.org/10.1002/9783527628438.ch1>.
- [29] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt. Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides. *Phys. Rev. B*, 56(16):R10024–R10027, October 1997. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.56.R10024>.
- [30] E. T. Yu, X. Z. Dang, P. M. Asbeck, S. S. Lau, and G. J. Sullivan. Spontaneous and piezoelectric polarization effects in III–V nitride heterostructures. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena*, 17(4):1742–1749, July 1999. <http://dx.doi.org/10.1116/1.590818>.
- [31] F. Bernardini and V. Fiorentini. Macroscopic polarization and band offsets at nitride heterojunctions. *Phys. Rev. B*, 57(16):R9427–R9430, April 1998. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.57.R9427>.

-
- [32] F. Bernardini and V. Fiorentini. Spontaneous versus Piezoelectric Polarization in III–V Nitrides: Conceptual Aspects and Practical Consequences. *phys. stat. sol. (b)*, 216(1):391–398, November 1999. [http://dx.doi.org/10.1002/\(SICI\)1521-3951\(199911\)216:1<391::AID-PSSB391>3.0.CO;2-K](http://dx.doi.org/10.1002/(SICI)1521-3951(199911)216:1<391::AID-PSSB391>3.0.CO;2-K).
- [33] F. Bernardini and V. Fiorentini. Polarization fields in nitride nanostructures: 10 points to think about. *Applied Surface Science*, 166(1):23–29, October 2000. [http://dx.doi.org/10.1016/S0169-4332\(00\)00434-7](http://dx.doi.org/10.1016/S0169-4332(00)00434-7).
- [34] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt. Accurate calculation of polarization-related quantities in semiconductors. *Phys. Rev. B*, 63(19):193201, April 2001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.63.193201>.
- [35] F. Bernardini and V. Fiorentini. First-principles calculation of the piezoelectric tensor d of III–V nitrides. *Appl. Phys. Lett.*, 80(22):4145–4147, May 2002. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1482796>.
- [36] M. Leroux, N. Grandjean, J. Massies, B. Gil, P. Lefebvre, and P. Bigenwald. Barrier-width dependence of group-III nitrides quantum-well transition energies. *Phys. Rev. B*, 60(3):1496–1499, July 1999. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.60.1496>.
- [37] N. Suzuki and N. Iizuka. Effect of Polarization Field on Intersubband Transition in AlGaIn/GaN Quantum Wells. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 38(4A):L363, April 1999. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.38.L363>.
- [38] S.-H. Park. Crystal Orientation Effects on Electronic Properties of Wurtzite GaN/AlGaIn Quantum Wells with Spontaneous and Piezoelectric Polarization. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39(6R):3478, June 2000. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.39.3478>.
- [39] S.-H. Park and S.-L. Chuang. Spontaneous polarization effects in wurtzite GaN/AlGaIn quantum wells and comparison with experiment. *Appl. Phys. Lett.*, 76(15):1981–1983, April 2000. <http://dx.doi.org/10.1063/1.126229>.
- [40] J. Pal, G. Tse, V. Haxha, M. A. Migliorato, and S. Tomić. Second-order piezoelectricity in wurtzite III–N semiconductors. *Phys. Rev. B*, 84(8):085211, August 2011. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.84.085211>.
- [41] V. Fiorentini, F. Bernardini, F. Della Sala, A. Di Carlo, and P. Lugli. Effects of macroscopic polarization in III–V nitride multiple quantum wells. *Phys. Rev. B*, 60(12):8849–8858, September 1999. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.60.8849>.
- [42] T. Kolbe, T. Sembdner, A. Knauer, V. Kueller, H. Rodriguez, S. Einfeldt, P. Vogt, M. Weyers, and M. Kneissl. (In)AlGaIn deep ultraviolet light emitting diodes with optimized quantum well width. *phys. stat. sol. (a)*, 207(9):2198–2200, September 2010. <http://dx.doi.org/10.1002/pssa.201026046>.

- [43] S. Ghosh, U. P. Gomes, and D. Biswas. Optimization of optical and electrical behaviour of quantum well based GaN-InGaN blue LED. In *2012 Asia Pacific Conference on Postgraduate Research in Microelectronics and Electronics*, pages 188–191, December 2012. <http://dx.doi.org/10.1109/PrimeAsia.2012.6458651>.
- [44] S.-H. Park and S.-L. Chuang. Piezoelectric effects on electrical and optical properties of wurtzite GaN/AlGaIn quantum well lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 72(24):3103–3105, June 1998. <http://dx.doi.org/10.1063/1.121560>.
- [45] 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.*, July 2008. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2953543>.
- [46] H. Yoshida, Y. Yamashita, M. Kuwabara, and H. Kan. A 342-nm ultraviolet AlGaIn multiple-quantum-well laser diode. *Nat. Photonics*, 2(9):551–554, September 2008. <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2008.135>.
- [47] E. Burstein. Anomalous Optical Absorption Limit in InSb. *Phys. Rev.*, 93(3): 632–633, February 1954. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.93.632>.
- [48] T. S. Moss. The Interpretation of the Properties of Indium Antimonide. *Proc. Phys. Soc. B*, 67(10):775, 1954. <http://dx.doi.org/10.1088/0370-1301/67/10/306>.
- [49] M. Feneberg, S. Osterburg, K. Lange, C. Lidig, B. Garke, R. Goldhahn, E. Richter, C. Netzel, M. D. Neumann, N. Esser, S. Fritze, H. Witte, J. Bläsing, A. Dadgar, and A. Krost. Band gap renormalization and Burstein-Moss effect in silicon- and germanium-doped wurtzite GaN up to 10^{20} cm^{-3} . *Phys. Rev. B*, 90(7):075203, August 2014. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.075203>.
- [50] K. F. Berggren and B. E. Sernelius. Band-gap narrowing in heavily doped many-valley semiconductors. *Phys. Rev. B*, 24(4):1971–1986, August 1981. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.24.1971>.
- [51] M. Asif Khan, C. J. Sun, J. W. Yang, Q. Chen, B. W. Lim, M. Zubair Anwar, A. Osinsky, and H. Temkin. Cleaved cavity optically pumped InGaIn–GaN laser grown on spinel substrates. *Appl. Phys. Lett.*, 69(16):2418–2420, October 1996. <http://dx.doi.org/10.1063/1.117656>.
- [52] D. M. Bagnall, Y. F. Chen, Z. Zhu, T. Yao, S. Koyama, M. Y. Shen, and T. Goto. Optically pumped lasing of ZnO at room temperature. *Appl. Phys. Lett.*, 70(17): 2230–2232, April 1997. <http://dx.doi.org/10.1063/1.118824>.
- [53] L. Toikkanen, A. Härkönen, J. Lyytikäinen, T. Leinonen, A. Laakso, A. Tukiainen, J. Viheriälä, M. Bister, and M. Guina. Optically Pumped Edge-Emitting GaAs-Based Laser With Direct Orange Emission. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 26(4):384–386, February 2014. <http://dx.doi.org/10.1109/LPT.2013.2294726>.

- [54] N. A. Gamov, E. V. Zhdanova, M. M. Zverev, D. V. Peregudov, V. B. Studenov, A. V. Mazalov, V. A. Kureshov, D. R. Sabitov, A. A. Padalitsa, and A. A. Marmalyuk. Pulsed electron-beam-pumped laser based on AlGa_N/InGa_N/Ga_N quantum-well heterostructure. *Quantum Electron.*, 45(7):601, 2015. <http://dx.doi.org/10.1070/QE2015v045n07ABEH015780>.
- [55] T. Wunderer, J. Jeschke, Z. Yang, M. Teepe, M. Batres, B. Vancil, and N. Johnson. Resonator-Length Dependence of Electron-Beam-Pumped UV-A Ga_N-Based Lasers. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 29(16):1344–1347, August 2017. <http://dx.doi.org/10.1109/LPT.2017.2722359>.
- [56] Pierre Bouguer. *Essai d’optique, Sur la gradation de la lumière*, 1729.
- [57] Johann Heinrich Lambert. *Photometria, Sive de Mensura et Gradibus Luminis, Colorum et Umbrae*. Sumptibus Vidae Eberhardi Klett, Augsburg, 1760.
- [58] J. Shah. *Hot Carriers in Semiconductor Nanostructures: Physics and Applications*. Elsevier, December 2012.
- [59] M. Fukuda. *Optical Semiconductor Devices*. John Wiley & Sons, 1999.
- [60] P. K. Basu, B. Mukhopadhyay, and R. Basu. *Semiconductor Laser Theory*. CRC Press, June 2015.
- [61] M. Grundmann. *The Physics of Semiconductors*. Springer Verlag Berlin, Heidelberg, 2010.
- [62] P. Blood. On the dimensionality of optical absorption, gain, and recombination in quantum-confined structures. *IEEE J. Quantum Electron.*, 36(3):354–362, March 2000. <http://dx.doi.org/10.1109/3.825883>.
- [63] X. Li, S. Okur, F. Zhang, V. Avrutin, Ü. Özgür, H. Morkoç, S. M. Hong, S. H. Yen, T. C. Hsu, and A. Matulionis. Impact of active layer design on InGa_N radiative recombination coefficient and LED performance. *Journal of Applied Physics*, 111(6):063112, March 2012. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3699199>.
- [64] E. Kioupakis, Q. Yan, D. Steiauf, and C. G. V. de Walle. Temperature and carrier-density dependence of Auger and radiative recombination in nitride optoelectronic devices. *New J. Phys.*, 15(12):125006, 2013. <http://dx.doi.org/10.1088/1367-2630/15/12/125006>.
- [65] W. Shockley and W. T. Read. Statistics of the Recombinations of Holes and Electrons. *Phys. Rev.*, 87(5):835–842, September 1952. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.87.835>.
- [66] R. N. Hall. Electron-Hole Recombination in Germanium. *Phys. Rev.*, 87(2):387–387, July 1952. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.87.387>.

- [67] W. G. Perry, M. B. Bremser, and R. F. Davis. Cathodoluminescence studies of the deep level emission bands of Al_xGa_{1-x}N films deposited on 6H-SiC (0001). *J. Appl. Phys.*, 83(1):469–475, 1998.
- [68] C. G. Van de Walle and J. Neugebauer. First-principles calculations for defects and impurities: Applications to III-nitrides. *Journal of Applied Physics*, 95(8):3851–3879, March 2004. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1682673>.
- [69] C. H. Henry and D. V. Lang. Nonradiative capture and recombination by multiphonon emission in GaAs and GaP. *Phys. Rev. B*, 15(2):989–1016, January 1977. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.15.989>.
- [70] R. Pässler. Temperature dependences of the nonradiative multiphonon carrier capture and ejection properties of deep traps in semiconductors. I. Theoretical results. *phys. stat. sol. (b)*, 85(1):203–215, January 1978. <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.2220850122>.
- [71] H. J. Queisser. Recombination at deep traps. *Solid-State Electronics*, 21(11):1495–1503, November 1978. [http://dx.doi.org/10.1016/0038-1101\(78\)90231-9](http://dx.doi.org/10.1016/0038-1101(78)90231-9).
- [72] J. Piprek, F. Römer, and B. Witzigmann. On the uncertainty of the Auger recombination coefficient extracted from InGaN/GaN light-emitting diode efficiency droop measurements. *Appl. Phys. Lett.*, 106(10):101101, March 2015. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4914833>.
- [73] J. Yun, J.-I. Shim, and H. Hirayama. Analysis of efficiency droop in 280-nm AlGaN multiple-quantum-well light-emitting diodes based on carrier rate equation. *Appl. Phys. Express*, 8(2):022104, January 2015. <http://dx.doi.org/10.7567/APEX.8.022104>.
- [74] X. Wang, X. Chen, L. Hou, B. Wang, W. Xie, and M. Pan. Role of n-type AlGaN layer in photoresponse mechanism for separate absorption and multiplication (SAM) GaN/AlGaN avalanche photodiode. *Opt Quant Electron*, 47(6):1357–1365, June 2015. <http://dx.doi.org/10.1007/s11082-014-0065-2>.
- [75] B. Mroziec, M. Bugajski, and W. Nakwaski. *Physics of Semiconductor Lasers*. Elsevier, January 2017.
- [76] K. J. Ebeling. *Integrierte Optoelektronik: Wellenleiteroptik Photonik Halbleiter*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1989.
- [77] S. Nakamura, M. Senoh, S.-i. 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 Grown on GaN Substrates with a Fundamental Transverse Mode. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 37(Part 2, No. 9A/B):L1020–L1022, September 1998. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.37.L1020>.

- [78] G. H. B. Thompson. A theory for filamentation in semiconductor lasers including the dependence of dielectric constant on injected carrier density. *Opto-Electron.*, 4(3):257–310, 1972.
- [79] W. W. Chow, H. Amano, and I. Akasaki. Theoretical analysis of filamentation and fundamental-mode operation in InGaN quantum well lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 76(13):1647, 2000. <http://dx.doi.org/10.1063/1.126123>.
- [80] D. Scholz, H. Braun, U. T. Schwarz, S. Brüningshoff, D. Queren, A. Lell, and U. Strauss. Measurement and simulation of filamentation in (Al, In) GaN laser diodes. *Opt. Express*, 16(10):6846–6859, 2008.
- [81] D. Brunner, H. Angerer, E. Bustarret, F. Freudenberger, R. Höpler, R. Dimitrov, O. Ambacher, and M. Stutzmann. Optical constants of epitaxial AlGaN films and their temperature dependence. *Journal of Applied Physics*, 82(10):5090–5096, November 1997. <http://dx.doi.org/10.1063/1.366309>.
- [82] M. Kuramoto, C. Sasaoka, N. Futagawa, M. Nido, and A. Yamaguchi. Reduction of Internal Loss and Threshold Current in a Laser Diode with a Ridge by Selective Re-Growth (RiS-LD). *Phys. Status Solidi A*, 192(2):329–334, August 2002. [http://dx.doi.org/10.1002/1521-396X\(200208\)192:2<329::AID-PSSA329>3.0.CO;2-A](http://dx.doi.org/10.1002/1521-396X(200208)192:2<329::AID-PSSA329>3.0.CO;2-A).
- [83] J. Piprek. *Semiconductor Optoelectronic Devices: Introduction to Physics and Simulation*. Academic Press, 2003.
- [84] E. Kioupakis, P. Rinke, and C. G. Van de Walle. Determination of Internal Loss in Nitride Lasers from First Principles. *Appl. Phys. Express*, 3(8):082101, July 2010. <http://dx.doi.org/10.1143/APEX.3.082101>.
- [85] E. Kioupakis, P. Rinke, A. Schleife, F. Bechstedt, and C. G. Van de Walle. Free-carrier absorption in nitrides from first principles. *Phys. Rev. B*, 81(24), June 2010. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.81.241201>.
- [86] P. S. Zory. *Quantum Well Lasers*. Academic Press, 1993.
- [87] T. Meyer, H. Braun, U. T. Schwarz, S. Tautz, M. Schillgalies, S. Lutgen, U. Strauss, and others. Spectral dynamics of 405 nm (Al, In) GaN laser diodes grown on GaN and SiC substrate. *Opt. Express*, 16(10):6833–6845, 2008.
- [88] J. Xie, S. Mita, Z. Bryan, W. Guo, L. Hussey, B. Moody, R. Schlessler, R. Kirste, M. Gerhold, R. Collazo, and Z. Sitar. Lasing and longitudinal cavity modes in photo-pumped deep ultraviolet AlGaN heterostructures. *Appl. Phys. Lett.*, 102(17):171102, 2013. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4803689>.
- [89] CVDSim-Nitride Edition software for modeling of epitaxy (MOVPE, HVPE). http://www.str-soft.com/products/cvdsim/Nitride_Edition/index.htm.

- [90] C. Kleijn. Chemical vapor deposition processes. In *Computational Modeling in Semiconductor Processing*, pages 97–230. Artech House, 1995.
- [91] T. G. Mihopoulos, V. Gupta, and K. F. Jensen. A reaction-transport model for AlGa_N MOVPE growth. *J. Cryst. Growth*, 195(1):733–739, 1998.
- [92] J. Stellmach, M. Pristovsek, Ö. Savaş, J. Schlegel, E. Yakovlev, and M. Kneissl. High aluminium content and high growth rates of AlGa_N in a close-coupled showerhead MOVPE reactor. *J. Cryst. Growth*, 315(1):229–232, January 2011. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2010.06.036>.
- [93] J. R. Creighton, W. G. Breiland, M. E. Coltrin, and R. P. Pawlowski. Gas-phase nanoparticle formation during AlGa_N metalorganic vapor phase epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 81(14):2626, 2002. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1510580>.
- [94] J. Creighton, G. T. Wang, W. G. Breiland, and M. E. Coltrin. Nature of the parasitic chemistry during AlGaIn_N OMVPE. *J. Cryst. Growth*, 261(2-3):204–213, January 2004. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2003.11.074>.
- [95] E.E. Zavarin, D.S. Sizov, W.V. Lundin, A.F. Tsatsulnikov, R.A. Talalaev, A.V. Kondratyev, and O.V. Bord. In-situ investigations of Ga_N chemical unstability during MOCVD. In *Proceedings of the Fifteenth International European Conference on Chemical Vapor Deposition (EUROCV-15)*, 2005-09:299, Bochum, Germany, 2005. Electrochemical Society, NJ, USA.
- [96] E. V. Yakovlev, R. A. Talalaev, A. S. Segal, A. V. Lobanova, W. V. Lundin, E. E. Zavarin, M. A. Sinitsyn, A. F. Tsatsulnikov, and A. E. Nikolaev. Hydrogen effects in III-nitride MOVPE. *Journal of Crystal Growth*, 310(23):4862–4866, November 2008. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2008.07.099>.
- [97] Y. Shvyd’ko. *X-Ray Resonators and Other Applications of Bragg Backscattering*. PhD thesis, Universität Hamburg, Habil., 2002, 2002. <http://dx.doi.org/10.3204/DESY-THESIS-2002-028>.
- [98] M. Morita, N. Uesugi, S. Isogai, K. Tsubouchi, and N. Mikoshiba. Epitaxial Growth of Aluminum Nitride on Sapphire Using Metalorganic Chemical Vapor Deposition. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 20(1):17, January 1981. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.20.17>.
- [99] A. Knauer, A. Mogilatenko, S. Hagedorn, J. Enslin, T. Wernicke, M. Kneissl, and M. Weyers. Correlation of sapphire off-cut and reduction of defect density in MOVPE grown AlN. *Phys. Status Solidi B*, 253(5):809–813, May 2016. <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.201600075>.
- [100] V. Kueller, A. Knauer, C. Reich, A. Mogilatenko, M. Weyers, J. Stellmach, T. Wernicke, M. Kneissl, Z. Yang, C. L. Chua, and N. M. Johnson. Modulated Epitaxial Lateral Overgrowth of AlN for Efficient UV LEDs. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 24(18):1603–1605, September 2012. <http://dx.doi.org/10.1109/LPT.2012.2210542>.

-
- [101] U. Zeimer, V. Kueller, A. Knauer, A. Mogilatenko, M. Weyers, and M. Kneissl. High quality AlGa_N grown on ELO AlN/sapphire templates. *Journal of Crystal Growth*, 377:32–36, August 2013. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2013.04.041>.
- [102] G. L. Miller, D. a. H. Robinson, and J. D. Wiley. Contactless measurement of semiconductor conductivity by radio frequency-free-carrier power absorption. *Review of Scientific Instruments*, 47(7):799–805, July 1976. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1134756>.
- [103] R. Collazo, S. Mita, J. Xie, A. Rice, J. Tweedie, R. Dalmau, and Z. Sitar. Progress on n-type doping of AlGa_N alloys on AlN single crystal substrates for UV optoelectronic applications. *Phys. Status Solidi C*, 8(7-8):2031–2033, July 2011. <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.201000964>.
- [104] F. Mehnke, X. T. Trinh, H. Pingel, T. Wernicke, E. Janzén, N. T. Son, and M. Kneissl. Electronic properties of Si-doped Al_x Ga_{1-x}N with aluminum mole fractions above 80%. *Journal of Applied Physics*, 120(14):145702, October 2016. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4964442>.
- [105] J. R. van Look, S. Einfeldt, O. Kruger, V. Hoffmann, A. Knauer, M. Weyers, P. Vogt, and M. Kneissl. Laser Scribing for Facet Fabrication of InGa_N MQW Diode Lasers on Sapphire Substrates. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 22(6):416–418, March 2010. <http://dx.doi.org/10.1109/LPT.2009.2039995>.
- [106] A. Krost, G. Bauer, and J. Woitok. High Resolution X-Ray Diffraction. In *Optical Characterization of Epitaxial Semiconductor Layers*, pages 287–391. Springer, Berlin, Heidelberg, 1996. http://dx.doi.org/10.1007/978-3-642-79678-4_6.
- [107] L. Spiess, G. Teichert, R. Schwarzer, H. Behnken, and C. Genzel. *Moderne Röntgenbeugung: Röntgendiffraktometrie für Materialwissenschaftler, Physiker und Chemiker*. Vieweg+Teubner Verlag, 2. Ausgabe, 2009.
- [108] H. Fitouri, M. M. Habchi, and A. Rebey. High-Resolution X-Ray Diffraction of III–V Semiconductor Thin Films. In *X-Ray Scattering*. InTech, 2017.
- [109] M. A. Moram and M. E. Vickers. X-ray diffraction of III-nitrides. *Rep. Prog. Phys.*, 72(3):036502, March 2009. <http://dx.doi.org/10.1088/0034-4885/72/3/036502>.
- [110] M. E. Vickers, M. J. Kappers, T. M. Smeeton, E. J. Thrush, J. S. Barnard, and C. J. Humphreys. Determination of the indium content and layer thicknesses in InGa_N/Ga_N quantum wells by x-ray scattering. *J. Appl. Phys.*, 94(3):1565, 2003. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1587251>.
- [111] V. Srikant, J. S. Speck, and D. R. Clarke. Mosaic structure in epitaxial thin films having large lattice mismatch. *Journal of Applied Physics*, 82(9):4286–4295, November 1997. <http://dx.doi.org/10.1063/1.366235>.

- [112] C. Roder. *Analyse struktureller Eigenschaften von GaN mittels hochauflösender Röntgenbeugung bei variabler Meßtemperatur*. Doktorarbeit, Universität Bremen, 2007.
- [113] T. Böttcher. *Heteroepitaxy of Group-III-Nitrides for the Application in Laser Diodes*. PhD thesis, Universität Bremen, 2002.
- [114] C. G. Dunn and E. F. Kogh. Comparison of dislocation densities of primary and secondary recrystallization grains of Si-Fe. *Acta Metallurgica*, 5(10):548–554, October 1957. [http://dx.doi.org/10.1016/0001-6160\(57\)90122-0](http://dx.doi.org/10.1016/0001-6160(57)90122-0).
- [115] H. Heinke, V. Kirchner, S. Einfeldt, and D. Hommel. X-ray diffraction analysis of the defect structure in epitaxial GaN. *Appl. Phys. Lett.*, 77(14):2145–2147, September 2000. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1314877>.
- [116] R. Chierchia, T. Böttcher, H. Heinke, S. Einfeldt, S. Figge, and D. Hommel. Microstructure of heteroepitaxial GaN revealed by x-ray diffraction. *J. Appl. Phys.*, 93(11):8918–8925, June 2003. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1571217>.
- [117] L. Reimer and G. Pfefferkorn. *Raster-Elektronenmikroskopie*. Springer-Verlag, März 2013.
- [118] J. Ohnsorge and R. Holm. *Rasterelektronenmikroskopie*. Thieme Georg Verlag, Stuttgart, September 1992.
- [119] P. F. Schmidt. *Praxis der Rasterelektronenmikroskopie und Mikrobereichsanalyse*. expert Verlag, Renningen, 2. Ausgabe, September 2018.
- [120] A. Yasan, R. McClintock, K. Mayes, D. H. Kim, P. Kung, and M. Razeghi. Photoluminescence study of AlGaIn-based 280 nm ultraviolet light-emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.*, 83(20):4083–4085, November 2003. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1626808>.
- [121] A. Sasaki, S.-i. Shibakawa, Y. Kawakami, K. Nishizuka, Y. Narukawa, and T. Mukai. Equation for Internal Quantum Efficiency and Its Temperature Dependence of Luminescence, and Application to In_xGa_{1-x}N/GaN Multiple Quantum Wells. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 45(11R):8719, November 2006. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.45.8719>.
- [122] T. Lu, Z. Ma, C. Du, Y. Fang, H. Wu, Y. Jiang, L. Wang, L. Dai, H. Jia, W. Liu, and H. Chen. Temperature-dependent photoluminescence in light-emitting diodes. *Sci. Rep.*, 4:6131, August 2014. <http://dx.doi.org/10.1038/srep06131>.
- [123] Dominique Drouin, Alexandre Réal Couture, Raynald Gauvin, Pierre Hovington, Paula Horny, and Hendrix Demers. Casino, July 2017.
- [124] K. B. Nam, M. L. Nakarmi, J. Y. Lin, and H. X. Jiang. Deep impurity transitions involving cation vacancies and complexes in AlGaIn alloys. *Appl. Phys. Lett.*, 86(22):222108, 2005. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1943489>.

-
- [125] N. Nepal, M. L. Nakarmi, J. Y. Lin, and H. X. Jiang. Photoluminescence studies of impurity transitions in AlGaIn alloys. *Appl. Phys. Lett.*, 89(9):092107, 2006. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2337856>.
- [126] G. Kusch, M. Nouf-Alleghiani, F. Mehnke, C. Kuhn, P. R. Edwards, T. Wernicke, A. Knauer, V. Kueller, G. Naresh-Kumar, M. Weyers, M. Kneissl, C. Trager-Cowan, and R. W. Martin. Spatial clustering of defect luminescence centers in Si-doped low resistivity Al_{0.82}Ga_{0.18}N. *Appl. Phys. Lett.*, 107(7):072103, August 2015. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4928667>.
- [127] Atlas - Device Simulation Software, April 2017. https://www.silvaco.com/products/tcad/device_simulation/atlas/atlas.html.
- [128] T. T. Mnatsakanov, M. E. Levinshtein, L. I. Pomortseva, S. N. Yurkov, G. S. Simin, and M. Asif Khan. Carrier mobility model for GaN. *Solid-State Electronics*, 47(1): 111–115, January 2003. [http://dx.doi.org/10.1016/S0038-1101\(02\)00256-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0038-1101(02)00256-3).
- [129] M. L. Nakarmi, K. H. Kim, J. Li, J. Y. Lin, and H. X. Jiang. Enhanced p-type conduction in GaN and AlGaIn by Mg-delta-doping. *Appl. Phys. Lett.*, 82(18): 3041–3043, May 2003. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1559444>.
- [130] F. Mehnke, T. Wernicke, H. Pingel, C. Kuhn, C. Reich, V. Kueller, A. Knauer, M. Lapeyrade, M. Weyers, and M. Kneissl. Highly conductive n-Al_xGa_{1-x}N layers with aluminum mole fractions above 80%. *Appl. Phys. Lett.*, 103(21):212109, 2013. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4833247>.
- [131] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan. Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys. *Journal of Applied Physics*, 89(11): 5815–5875, June 2001. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1368156>.
- [132] Bernd Witzigmann. Persönliche Kommunikation, März 2015.
- [133] S. Y. Karpov and Y. N. Makarov. Dislocation effect on light emission efficiency in gallium nitride. *Appl. Phys. Lett.*, 81(25):4721–4723, December 2002. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1527225>.
- [134] D. E. Aspnes. Recombination at semiconductor surfaces and interfaces. *Surface Science*, 132(1):406–421, September 1983. [http://dx.doi.org/10.1016/0039-6028\(83\)90550-2](http://dx.doi.org/10.1016/0039-6028(83)90550-2).
- [135] P. Arivazhagan, R. Ramesh, M. Jayasakthi, R. Loganathan, M. Balaji, and K. Baskar. Structural and Carrier Dynamics of GaN and AlGaIn-Based Double Heterostructures in the UV Region. *Journal of Elec Materi.*, 42(8):2486–2491, August 2013. <http://dx.doi.org/10.1007/s11664-013-2632-x>.
- [136] J. K. Son, S. N. Lee, H. S. Paek, T. Sakong, H. K. Kim, Y. Park, H. Y. Ryu, O. H. Nam, J. S. Hwang, and Y. H. Cho. Measurement of optical loss variation on thickness

- of InGaN optical confinement layers of blue-violet-emitting laser diodes. *J. Appl. Phys.*, 103(10):103101, 2008. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2931025>.
- [137] M. Martens, C. Kuhn, T. Simoneit, S. Hagedorn, A. Knauer, T. Wernicke, M. Weyers, and M. Kneissl. The effects of magnesium doping on the modal loss in AlGaN-based deep UV lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 110(8):081103, February 2017. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4977029>.
 - [138] Z. L. Liao, R. L. Aggarwal, P. A. Maki, R. J. Molnar, J. N. Walpole, R. C. Williamson, and I. Melngailis. Light scattering in high-dislocation-density GaN. *Appl. Phys. Lett.*, 69(12):1665–1667, September 1996. <http://dx.doi.org/10.1063/1.117021>.
 - [139] W. W. Chow and M. Kneissl. Laser gain properties of AlGaN quantum wells. *Journal of Applied Physics*, 98(11):114502, December 2005. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2128495>.
 - [140] S. Nakamura, M. Senoh, S.-i. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, Y. Sugimoto, and H. Kiyoku. Optical gain and carrier lifetime of InGaN multi-quantum well structure laser diodes. *Appl. Phys. Lett.*, 69(11):1568–1570, September 1996. <http://dx.doi.org/10.1063/1.117032>.
 - [141] M. E. Coltrin, J. Randall Creighton, and C. C. Mitchell. Modeling the parasitic chemical reactions of AlGaN organometallic vapor-phase epitaxy. *Journal of Crystal Growth*, 287(2):566–571, January 2006. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2005.10.077>.
 - [142] D. Zhao, J. Zhu, D. Jiang, H. Yang, J. Liang, X. Li, and H. Gong. Parasitic reaction and its effect on the growth rate of AlN by metalorganic chemical vapor deposition. *J. Cryst. Growth*, 289(1):72–75, March 2006. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2005.11.083>.
 - [143] J. Randall Creighton, G. T. Wang, and M. E. Coltrin. Fundamental chemistry and modeling of group-III nitride MOVPE. *J. Cryst. Growth*, 298:2–7, January 2007. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2006.10.060>.
 - [144] M. Dauelsberg, D. Brien, R. Püsche, O. Schön, E. V. Yakovlev, A. S. Segal, and R. A. Talalaev. Investigation of nitride MOVPE at high pressure and high growth rates in large production reactors by a combined modelling and experimental approach. *Journal of Crystal Growth*, 315(1):224–228, January 2011. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2010.07.064>.
 - [145] A. Lobanova, E. Yakovlev, J. Jeschke, A. Knauer, and M. Weyers. Kinetics of AlGaN metal-organic vapor phase epitaxy for deep-UV applications. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 55(5S):05FD07, April 2016. <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.55.05FD07>.
 - [146] M. Dauelsberg, D. Brien, H. Rauf, F. Reiher, J. Baumgartl, O. Häberlen, A. S. Segal, A. V. Lobanova, E. V. Yakovlev, and R. A. Talalaev. On mechanisms

- governing AlN and AlGaN growth rate and composition in large substrate size planetary MOVPE reactors. *Journal of Crystal Growth*, 393:103–107, May 2014. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2013.08.018>.
- [147] F. Brunner, T. Zettler, and M. Weyers. Advanced in-situ control for III-nitride RF power device epitaxy. *Semicond. Sci. Technol.*, 2018. <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6641/aab410>.
- [148] W. Lundin, A. Nikolaev, M. Rozhavskaia, E. Zavarin, A. Sakharov, S. Troshkov, M. Yagovkina, and A. Tsatsulnikov. Fast AlGaN growth in a whole composition range in planetary reactor. *J. Cryst. Growth*, 370:7–11, May 2013. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2012.09.056>.
- [149] U. Honda, Y. Yamada, Y. Tokuda, and K. Shiojima. Deep levels in n-GaN Doped with Carbon Studied by Deep Level and Minority Carrier Transient Spectroscopies. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 51(4S):04DF04, April 2012. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.51.04DF04>.
- [150] N. Okada, K. Tadatomo, K. Yamane, H. Mangyo, Y. Kobayashi, H. Ono, K. Ikenaga, Y. Yano, and K. Matsumoto. Performance of InGaN/GaN light-emitting diodes grown using NH_3 with oxygen-containing impurities. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 53(8):081001, July 2014. <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.53.081001>.
- [151] R. Meli, G. Miceli, and A. Pasquarello. Oxygen DX center in $\text{In}_{0.17}\text{Al}_{0.83}\text{N}$: Nonradiative recombination and persistent photoconductivity. *Appl. Phys. Lett.*, 110(7):072101, February 2017. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4975934>.
- [152] R. A. Youngman and J. H. Harris. Luminescence Studies of Oxygen-Related Defects In Aluminum Nitride. *J. Am. Ceram. Soc.*, 73(11):3238–3246, November 1990. <http://dx.doi.org/10.1111/j.1151-2916.1990.tb06444.x>.
- [153] X. Tang, F. Hossain, K. Wongchotigul, and M. G. Spencer. Near band-edge transition in aluminum nitride thin films grown by metal organic chemical vapor deposition. *Appl. Phys. Lett.*, 72(12):1501–1503, March 1998. <http://dx.doi.org/10.1063/1.121039>.
- [154] S. F. Chichibu, H. Miyake, Y. Ishikawa, M. Tashiro, T. Ohtomo, K. Furusawa, K. Hazu, K. Hiramatsu, and A. Uedono. Impacts of Si-doping and resultant cation vacancy formation on the luminescence dynamics for the near-band-edge emission of $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ films grown on AlN templates by metalorganic vapor phase epitaxy. *J. Appl. Phys.*, 113(21):213506, June 2013. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4807906>.
- [155] P. Cantu, F. Wu, P. Waltereit, S. Keller, A. E. Romanov, U. K. Mishra, S. P. DenBaars, and J. S. Speck. Si doping effect on strain reduction in compressively strained $\text{Al}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{N}$ thin films. *Appl. Phys. Lett.*, 83(4):674–676, July 2003. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1595133>.

- [156] S. Fritze, A. Dadgar, H. Witte, M. Bügler, A. Rohrbeck, J. Bläsing, A. Hoffmann, and A. Krost. High Si and Ge n-type doping of GaN doping - Limits and impact on stress. *Appl. Phys. Lett.*, 100(12):122104, March 2012. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3695172>.
- [157] G. Parish, S. Keller, S. P. Denbaars, and U. K. Mishra. SIMS investigations into the effect of growth conditions on residual impurity and silicon incorporation in GaN and $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$. *Journal of Elec Materi*, 29(1):15–20, January 2000. <http://dx.doi.org/10.1007/s11664-000-0087-3>.
- [158] D. D. Koleske, A. E. Wickenden, R. L. Henry, and M. E. Twigg. Influence of MOVPE growth conditions on carbon and silicon concentrations in GaN. *Journal of Crystal Growth*, 242(1–2):55–69, July 2002. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(02\)01348-9](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(02)01348-9).
- [159] J.-T. Chen, U. Forsberg, and E. Janzén. Impact of residual carbon on two-dimensional electron gas properties in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ heterostructure. *Appl. Phys. Lett.*, 102(19):193506, May 2013. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4804600>.
- [160] A. Tian, J. Liu, M. Ikeda, S. Zhang, Z. Li, M. Feng, K. Zhou, D. Li, L. Zhang, P. Wen, F. Zhang, and H. Yang. Conductivity enhancement in AlGaIn:Mg by suppressing the incorporation of carbon impurity. *Appl. Phys. Express*, 8(5):051001, April 2015. <http://dx.doi.org/10.7567/APEX.8.051001>.
- [161] T. F. Kuech, D. J. Welford, E. Veuhoff, V. Deline, P. M. Mooney, R. Potemski, and J. Bradley. Properties of high-purity $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ grown by the metalorganic vapor-phase-epitaxy technique using methyl precursors. *Journal of Applied Physics*, 62(2):632–643, July 1987. <http://dx.doi.org/10.1063/1.339792>.
- [162] H. W. Jang, J. M. Baik, M.-K. Lee, H.-J. Shin, and J.-L. Lee. Incorporation of Oxygen Donors in AlGaIn . *J. Electrochem. Soc.*, 151(8):G536–G540, January 2004. <http://dx.doi.org/10.1149/1.1768951>.
- [163] A. Kakanakova-Georgieva, D. Nilsson, and E. Janzén. High-quality AlN layers grown by hot-wall MOCVD at reduced temperatures. *Journal of Crystal Growth*, 338(1):52–56, January 2012. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2011.10.052>.
- [164] M. A. Khan, D. T. Olson, and J. N. Kuznia. High quality $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ grown by metalorganic chemical vapor deposition using trimethylamine alane as the aluminum precursor. *Appl. Phys. Lett.*, 65(1):64–66, July 1994. <http://dx.doi.org/10.1063/1.113075>.
- [165] A. Kakanakova-Georgieva, D. Nilsson, X. T. Trinh, N. T. Son, and E. Janzén. Silicon and Oxygen in High-Al-Content AlGaIn : Incorporation Kinetics and Electron Paramagnetic Resonance Study. *Solid State Phenom.*, 205-206:441–445, 2014. <http://dx.doi.org/10.4028/www.scientific.net/SSP.205-206.441>.

-
- [166] M. Takeuchi, H. Shimizu, R. Kajitani, K. Kawasaki, T. Kinoshita, K. Takada, H. Murakami, Y. Kumagai, A. Koukitu, T. Koyama, S. F. Chichibu, and Y. Aoyagi. Al- and N-polar AlN layers grown on c-plane sapphire substrates by modified flow-modulation MOCVD. *Journal of Crystal Growth*, 305(2):360–365, July 2007. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2007.04.004>.
- [167] J. Jeschke, A. Knauer, and M. Weyers. Si impurity concentration in nominally undoped $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ grown in a planetary MOVPE reactor. *Journal of Crystal Growth*, 483:297–300, February 2018. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2017.12.025>.
- [168] H.G.B. Hicks and P.D. Greene. In *Gallium Arsenide and Related Compounds: Proceedings of the Third International Symposium*, number 9 in Institute of Physics Conference Series, page 92. 1971.
- [169] A. A. Burk and L. B. Rowland. The role of excess silicon and in situ etching on 4HSiC and 6HSiC epitaxial layer morphology. *Journal of Crystal Growth*, 167(3): 586–595, October 1996. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248\(96\)00293-X](http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248(96)00293-X).
- [170] A. J. Van Bommel, J. E. Crombeen, and A. Van Tooren. LEED and Auger electron observations of the SiC(0001) surface. *Surface Science*, 48(2):463–472, March 1975. [http://dx.doi.org/10.1016/0039-6028\(75\)90419-7](http://dx.doi.org/10.1016/0039-6028(75)90419-7).
- [171] A. Charrier, A. Coati, T. Argunova, F. Thibaudau, Y. Garreau, R. Pinchaux, I. Forbeaux, J.-M. Debever, M. Sauvage-Simkin, and J.-M. Themlin. Solid-state decomposition of silicon carbide for growing ultra-thin heteroepitaxial graphite films. *Journal of Applied Physics*, 92(5):2479–2484, August 2002. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1498962>.
- [172] H. Hibino, H. Kageshima, and M. Nagase. Graphene Growth on Silicon Carbide. *NTT Tech. Rev.*, 8(8), August 2010.
- [173] W. A. de Heer, C. Berger, M. Ruan, M. Sprinkle, X. Li, Y. Hu, B. Zhang, J. Han-kinson, and E. Conrad. Large area and structured epitaxial graphene produced by confinement controlled sublimation of silicon carbide. *PNAS*, 108(41):16900–16905, November 2011. <http://dx.doi.org/10.1073/pnas.1105113108>.
- [174] E. Pearson, T. Takai, T. Halicioglu, and W. A. Tiller. Computer modeling of Si and SiC surfaces and surface processes relevant to crystal growth from the vapor. *Journal of Crystal Growth*, 70(1):33–40, December 1984. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248\(84\)90244-6](http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248(84)90244-6).
- [175] E. A. Belenkov, E. N. Agalyamova, and V. A. Greshnyakov. Classification and structure of silicon carbide phases. *Phys. Solid State*, 54(2):433–440, February 2012. <http://dx.doi.org/10.1134/S1063783412020072>.

- [176] F. Imoto, J.-I. Iwata, M. Boero, and A. Oshiyama. Microscopic Mechanisms of Initial Formation Process of Graphene on SiC(0001) Surfaces: Selective Si Desorption from Step Edges. *J. Phys. Chem. C*, 121(9):5041–5049, March 2017. <http://dx.doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b11985>.
- [177] Q. Yan, A. Janotti, M. Scheffler, and C. G. Van de Walle. Origins of optical absorption and emission lines in AlN. *Appl. Phys. Lett.*, 105(11):111104, September 2014. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4895786>.
- [178] A. Uedono, K. Tenjinbayashi, T. Tsutsui, Y. Shimahara, H. Miyake, K. Hiramatsu, N. Oshima, R. Suzuki, and S. Ishibashi. Native cation vacancies in Si-doped AlGaN studied by monoenergetic positron beams. *J. Appl. Phys.*, 111(1):013512, January 2012. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3675270>.
- [179] P. K. Basu. *Theory of Optical Processes in Semiconductors: Bulk and Microstructures*. Series on Semiconductor Science and Technology. Oxford University Press, Oxford, New York, January 2003.
- [180] S. F. Chichibu, H. Miyake, Y. Ishikawa, K. Furusawa, and K. Hiramatsu. Reduction in the concentration of cation vacancies by proper Si-doping in the well layers of high AlN mole fraction $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ multiple quantum wells grown by metalorganic vapor phase epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 107(12):121602, September 2015. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4931754>.
- [181] A. Chandra, C. E. C. Wood, D. W. Woodard, and L. F. Eastman. Surface and interface depletion corrections to free carrier-density determinations by hall measurements. *Solid-State Electronics*, 22(7):645–650, July 1979. [http://dx.doi.org/10.1016/0038-1101\(79\)90138-2](http://dx.doi.org/10.1016/0038-1101(79)90138-2).
- [182] C. Pietzka, G. Li, M. Alomari, H. Xing, D. Jena, and E. Kohn. Surface potential analysis of AlN/GaN heterostructures by electrochemical capacitance-voltage measurements. *Journal of Applied Physics*, 112(7):074508, October 2012. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4757932>.
- [183] K. Köhler, J. Wiegert, H. P. Menner, M. Maier, and L. Kirste. The surface potential of GaN:Si. *Journal of Applied Physics*, 103(2):023706, January 2008. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2831004>.
- [184] G. Steude, D. M. Hofmann, B. K. Meyer, H. Amano, and I. Akasaki. The Residual Donor Binding Energy in AlGaN Epitaxial Layers. *phys. stat. sol. (a)*, 165(2):R3–R4, February 1998. [http://dx.doi.org/10.1002/\(SICI\)1521-396X\(199802\)165:23.0.CO;2-H](http://dx.doi.org/10.1002/(SICI)1521-396X(199802)165:23.0.CO;2-H).
- [185] B. Neuschl, K. Thonke, M. Feneberg, S. Mita, J. Xie, R. Dalmau, R. Collazo, and Z. Sitar. Optical identification of silicon as a shallow donor in MOVPE grown homoepitaxial AlN. *Phys. Status Solidi B*, 249(3):511–515, March 2012. <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.201100381>.

-
- [186] U. Zeimer, J. Jeschke, A. Mogilatenko, A. Knauer, V. Kueller, V. Hoffmann, Christian Kuhn, T. Simoneit, M. Martens, T. Wernicke, M. Kneissl, and M. Weyers. Spatial inhomogeneities in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ quantum wells induced by the surface morphology of AlN/sapphire templates. *Semicond. Sci. Technol.*, 30(11):114008, 2015. <http://dx.doi.org/10.1088/0268-1242/30/11/114008>.
- [187] B. Pécz, Z. Makkai, M. A. di Forte-Poisson, F. Huet, and R. E. Dunin-Borkowski. V-shaped defects connected to inversion domains in AlGaN layers. *Appl. Phys. Lett.*, 78(11):1529, 2001. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1355996>.
- [188] K. S. Son, D. G. Kim, H. K. Cho, K. Lee, S. Kim, and K. Park. Formation of V-shaped pits in GaN thin films grown on high temperature GaN. *J. Cryst. Growth*, 261(1):50–54, January 2004. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2003.08.075>.
- [189] J. Bai, T. Wang, P. Parbrook, I. Ross, and A. Cullis. V-shaped pits formed at the GaN/AlN interface. *J. Cryst. Growth*, 289(1):63–67, March 2006. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2005.10.146>.
- [190] J. W. P. Hsu, M. J. Manfra, S. N. G. Chu, C. H. Chen, L. N. Pfeiffer, and R. J. Molnar. Effect of growth stoichiometry on the electrical activity of screw dislocations in GaN films grown by molecular-beam epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 78(25):3980–3982, June 2001. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1379789>.
- [191] Anna Mogilatenko, Viola Küller, Arne Knauer, J. Jeschke, Ute Zeimer, Markus Weyers, and Günther Tränkle. Defect analysis in AlGaN layers on AlN templates obtained by epitaxial lateral overgrowth. *Journal of Crystal Growth*, 402:222–229, September 2014. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2014.06.025>.
- [192] S. Hong and J. Singh. Study of the low-temperature line broadening mechanisms for excitonic transitions in GaAs/AlGaAs modulator structures. *Appl. Phys. Lett.*, 49(6):331–333, August 1986. <http://dx.doi.org/10.1063/1.97158>.
- [193] Z. Z. Bandić, P. M. Bridger, E. C. Piquette, and T. C. McGill. The values of minority carrier diffusion lengths and lifetimes in GaN and their implications for bipolar devices. *Solid-State Electronics*, 44(2):221–228, February 2000. [http://dx.doi.org/10.1016/S0038-1101\(99\)00227-0](http://dx.doi.org/10.1016/S0038-1101(99)00227-0).
- [194] K. Kumakura, T. Makimoto, N. Kobayashi, T. Hashizume, T. Fukui, and H. Hasegawa. Minority carrier diffusion lengths in MOVPE-grown n- and p-InGaN and performance of AlGaN/InGaN/GaN double heterojunction bipolar transistors. *Journal of Crystal Growth*, 298(Supplement C):787–790, January 2007. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2006.10.098>.
- [195] J. Danhof, H.-M. Solowan, U. T. Schwarz, A. Kaneta, Y. Kawakami, D. Schiavon, T. Meyer, and M. Peter. Lateral charge carrier diffusion in InGaN quantum wells. *Phys. Status Solidi B*, 249(3):480–484, March 2012. <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.201100476>.

- [196] A. Cremades, M. Albrecht, J. Krinke, R. Dimitrov, M. Stutzmann, and H. P. Strunk. Effects of phase separation and decomposition on the minority carrier diffusion length in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ films. *Journal of Applied Physics*, 87(5):2357–2362, February 2000. <http://dx.doi.org/10.1063/1.372187>.
- [197] S. Hafiz, F. Zhang, M. Monavarian, V. Avrutin, H. Morkoç, Ü. Özgür, S. Metzner, F. Bertram, J. Christen, and B. Gil. Determination of carrier diffusion length in GaN. *J. Appl. Phys.*, 117(1):013106, January 2015. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4905506>.
- [198] R. G. Banal, M. Funato, and Y. Kawakami. Optical anisotropy in [0001]-oriented $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}/\text{AlN}$ quantum wells ($x < 0.69$). *Phys. Rev. B*, 79(12):121308, March 2009. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.121308>.
- [199] B. Neuschl, J. Helbing, M. Knab, H. Lauer, M. Madel, K. Thonke, T. Meisch, K. Forghani, F. Scholz, and M. Feneberg. Composition dependent valence band order in c-oriented wurtzite AlGaIn layers. *Journal of Applied Physics*, 116(11):113506, September 2014. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4895995>.
- [200] G. Kusch, H. Li, P. R. Edwards, J. Bruckbauer, T. C. Sadler, P. J. Parbrook, and R. W. Martin. Influence of substrate miscut angle on surface morphology and luminescence properties of AlGaIn. *Appl. Phys. Lett.*, 104(9):092114, March 2014. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4867165>.
- [201] S. Keller, U. K. Mishra, S. P. Denbaars, and W. Seifert. Spiral Growth of InGaIn Nanoscale Islands on GaIn. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 37(4B):L431, April 1998. <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.37.L431>.
- [202] M. Funato, R. G. Banal, and Y. Kawakami. Screw dislocation-induced growth spirals as emissive exciton localization centers in Al-rich AlGaIn/AlN quantum wells. *AIP Advances*, 5(11):117115, November 2015. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4935567>.
- [203] I. Vurgaftman and J. R. Meyer. Effects of bandgap, lifetime, and other nonuniformities on diode laser thresholds and slope efficiencies. *Sel. Top. Quantum Electron. IEEE J. Of*, 3(2):475–484, 1997.
- [204] J. Jeschke, U. Zeimer, L. Redaelli, S. Einfeldt, M. Kneissl, and M. Weyers. Effect of quantum well non-uniformities on lasing threshold, linewidth, and lateral near field filamentation in violet (Al,In)GaIn laser diodes. *Appl. Phys. Lett.*, 105(17):173501, October 2014. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4899298>.
- [205] J. Jeschke, M. Martens, A. Knauer, V. Kueller, U. Zeimer, C. Netzel, C. Kuhn, F. Krueger, C. Reich, T. Wernicke, M. Kneissl, and M. Weyers. UV-C Lasing From AlGaIn Multiple Quantum Wells on Different Types of AlN/Sapphire Templates. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 27(18):1969–1972, September 2015. <http://dx.doi.org/10.1109/LPT.2015.2448127>.

-
- [206] M. Martens, F. Mehnke, C. Kuhn, C. Reich, V. Kueller, A. Knauer, C. Netzel, C. Hartmann, J. Wollweber, J. Rass, T. Wernicke, M. Bickermann, M. Weyers, and M. Kneissl. Performance Characteristics of UV-C AlGaIn-Based Lasers Grown on Sapphire and Bulk AlN Substrates. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 26(4):342–345, February 2014. <http://dx.doi.org/10.1109/LPT.2013.2293611>.
- [207] O. Ambacher, R. Dimitrov, D. Lentz, T. Metzger, W. Rieger, and M. Stutzmann. Growth of GaN/AlN by low-pressure MOCVD using triethylgallium and tritertbutylaluminium. *J. Cryst. Growth*, 167(1-2):1–7, September 1996. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248\(96\)00244-8](http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248(96)00244-8).
- [208] J. Enslin, A. Knauer, A. Mogilatenko, F. Mehnke, T. Wernicke, K. Bellmann, V. Kueller, M. Weyers, and M. Kneissl. Effect of the off-cut angle on the morphology and defect distribution of epitaxially laterally overgrown AlN on c-plane sapphire. In *Poster D6*, Lund, Sweden, June 2015.
- [209] J. Jeschke, M. Martens, S. Hagedorn, A. Knauer, A. Mogilatenko, H. Wenzel, U. Zeimer, J. Enslin, T. Wernicke, M. Kneissl, and M. Weyers. Influence of template properties and quantum well number on stimulated emission from $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}/\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{N}$ quantum wells. *Semicond. Sci. Technol.*, 33(3):035015, 2018. <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6641/aaab79>.
- [210] A. Hangleiter, J. S. Im, J. Off, and F. Scholz. Optical Properties of Nitride Quantum Wells: How to Separate Fluctuations and Polarization Field Effects. *Phys. Status Solidi B*, 216(1):427–430, November 1999. [http://dx.doi.org/10.1002/\(SICI\)1521-3951\(199911\)216:1<427::AID-PSSB427>3.0.CO;2-K](http://dx.doi.org/10.1002/(SICI)1521-3951(199911)216:1<427::AID-PSSB427>3.0.CO;2-K).
- [211] W. W. Chow, H. Amano, T. Takeuchi, and J. Han. Quantum-well width dependence of threshold current density in InGaN lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 75(2):244, 1999. <http://dx.doi.org/10.1063/1.124336>.
- [212] W. O. Schlosser. Gain-induced modes in planar structures. *Bell Syst. Tech. J.*, 52(6):887–905, July 1973. <http://dx.doi.org/10.1002/j.1538-7305.1973.tb01995.x>.
- [213] D. P. Bour, M. Kneissl, L. T. Romano, R. M. Donaldson, C. J. Dunnrowicz, N. M. Johnson, and G. A. Evans. Stripe-width dependence of threshold current for gain-guided AlGaInN laser diodes. *Appl. Phys. Lett.*, 74(3):404–406, January 1999. <http://dx.doi.org/10.1063/1.123084>.
- [214] J. Peter S. Zory. *Quantum Well Lasers*. Elsevier, December 2012.
- [215] W. W. Chow, S. W. Koch, and M. I. Sargent. *Semiconductor-Laser Physics*. Springer Science & Business Media, December 2012.
- [216] G. H. B. Thompson, P. A. Kirkby, and J. E. A. Whiteaway. The analysis of optical scattering in double-heterostructure and five-layer heterostructure (GaAl) As/GaAs injection lasers. *Quantum Electron. IEEE J. Of*, 11(7):481–488, 1975.

- [217] F. R. Nash. Threshold current variations and optical scattering losses in (Al,Ga)As double-heterostructure lasers. *J. Appl. Phys.*, 47(9):3992, 1976. <http://dx.doi.org/10.1063/1.323222>.
- [218] Y. C. Yeo, T. C. Chong, M. F. Li, and W. J. Fan. Analysis of optical gain and threshold current density of wurtzite InGaN/GaN/AlGaIn quantum well lasers. *J. Appl. Phys.*, 84(4):1813, 1998. <http://dx.doi.org/10.1063/1.368338>.
- [219] M. Hansen, P. Fini, L. Zhao, A. C. Abare, L. A. Coldren, J. S. Speck, and S. P. DenBaars. Improved characteristics of InGaIn multiple-quantum-well laser diodes grown on laterally epitaxially overgrown GaN on sapphire. *Appl. Phys. Lett.*, 76(5): 529–531, January 2000. <http://dx.doi.org/10.1063/1.125808>.
- [220] M. Hansen, J. Piprek, P. M. Pattison, J. S. Speck, S. Nakamura, and S. P. DenBaars. Higher efficiency InGaIn laser diodes with an improved quantum well capping configuration. *Appl. Phys. Lett.*, 81(22):4275–4277, November 2002. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1524690>.
- [221] K. Takeda, K. Nagata, T. Ichikawa, K. Nonaka, Y. Ogiso, Y. Oshimura, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, I. Akasaki, H. Amano, H. Yoshida, M. Kuwabara, Y. Yamashita, and H. Kan. Internal quantum efficiency and internal loss of ultraviolet laser diodes on the low dislocation density AlGaIn underlying layer. *Phys. Status Solidi (c)*, 8(2):464–466, February 2011. <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.201000588>.
- [222] S. M. Olaizola, S. T. Pendlebury, J. P. O’Neill, D. J. Mowbray, A. G. Cullis, M. S. Skolnick, P. J. Parbrook, and A. M. Fox. Influence of GaN barrier growth temperature on the photoluminescence of InGaIn/GaN heterostructures. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 35(7):599, 2002. <http://dx.doi.org/10.1088/0022-3727/35/7/305>.
- [223] F.-P. Massabuau, C. Tartan, R. Traynier, W. Blenkhorn, M. Kappers, P. Dawson, C. Humphreys, and R. Oliver. The impact of substrate miscut on the microstructure and photoluminescence efficiency of (0001) InGaIn quantum wells grown by a two-temperature method. *J. Cryst. Growth*, 386:88–93, January 2014. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2013.10.004>.
- [224] V. Hoffmann, A. Mogilatenko, C. Netzel, U. Zeimer, S. Einfeldt, M. Weyers, and M. Kneissl. Influence of barrier growth schemes on the structural properties and thresholds of InGaIn quantum well laser diodes. *Journal of Crystal Growth*, 391: 46–51, April 2014. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2013.12.046>.
- [225] P. Wen, S. Zhang, D. Li, J. Liu, L. Zhang, X. Su, K. Zhou, A. Tian, Chang Zeng, D. Jiang, Z. Liu, and H. Yang. Enhanced temperature characteristic of InGaIn/GaN laser diodes with uniform multiple quantum wells. *Semicond. Sci. Technol.*, 30(12): 125015, 2015. <http://dx.doi.org/10.1088/0268-1242/30/12/125015>.
- [226] E. F. Schubert, I. D. Goepfert, W. Grieshaber, and J. M. Redwing. Optical properties of Si-doped GaIn. *Appl. Phys. Lett.*, 71(7):921–923, August 1997. <http://dx.doi.org/10.1063/1.119689>.

-
- [227] A. Cremades, L. Görgens, O. Ambacher, M. Stutzmann, and F. Scholz. Structural and optical properties of Si-doped GaN. *Phys. Rev. B*, 61(4):2812, 2000.
- [228] S. Kurai, F. Ushijima, H. Miyake, K. Hiramatsu, and Y. Yamada. Inhomogeneous distribution of defect-related emission in Si-doped AlGaIn epitaxial layers with different Al content and Si concentration. *Journal of Applied Physics*, 115(5):053509, February 2014. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4864020>.
- [229] S. Kurai, H. Miyake, K. Hiramatsu, and Y. Yamada. Microscopic potential fluctuations in Si-doped AlGaIn epitaxial layers with various AlN molar fractions and Si concentrations. *J. Appl. Phys.*, 119(2):025707, January 2016. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4939864>.
- [230] D. F. Welch, G. W. Wicks, and L. F. Eastman. Luminescence line shape broadening mechanisms in GaInAs/AlInAs quantum wells. *Appl. Phys. Lett.*, 46(10):991–993, May 1985. <http://dx.doi.org/10.1063/1.95791>.
- [231] Y. Chen, T. Takeuchi, H. Amano, I. Akasaki, N. Yamada, Y. Kaneko, and S. Y. Wang. Pit formation in GaInN quantum wells. *Appl. Phys. Lett.*, 72(6):710, 1998. <http://dx.doi.org/10.1063/1.120853>.
- [232] H. K. Cho, J. Y. Lee, and G. M. Yang. Characterization of pit formation in III-nitrides grown by metalorganic chemical vapor deposition. *Appl. Phys. Lett.*, 80(8):1370–1372, February 2002. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1454215>.
- [233] S. B. Thapa, J. Hertkorn, F. Scholz, G. M. Prinz, R. A. R. Leute, M. Feneberg, K. Thonke, R. Sauer, O. Klein, J. Biskupek, and U. Kaiser. Growth and studies of Si-doped AlN layers. *Journal of Crystal Growth*, 310(23):4939–4941, November 2008. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2008.07.091>.
- [234] Z. Liliental-Weber, Y. Chen, S. Ruvimov, and J. Washburn. Formation Mechanism of Nanotubes in GaN. *Phys. Rev. Lett.*, 79(15):2835–2838, October 1997. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.79.2835>.
- [235] J. E. Northrup, L. T. Romano, and J. Neugebauer. Surface energetics, pit formation, and chemical ordering in InGaIn alloys. *Appl. Phys. Lett.*, 74(16):2319, 1999. <http://dx.doi.org/10.1063/1.123837>.
- [236] S. Tanaka, S. Iwai, and Y. Aoyagi. Self-assembling GaN quantum dots on $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ surfaces using a surfactant. *Appl. Phys. Lett.*, 69(26):4096–4098, December 1996. <http://dx.doi.org/10.1063/1.117830>.
- [237] H. Hirayama, S. Tanaka, P. Ramvall, and Y. Aoyagi. Intense photoluminescence from self-assembling InGaIn quantum dots artificially fabricated on AlGaIn surfaces. *Appl. Phys. Lett.*, 72(14):1736–1738, April 1998. <http://dx.doi.org/10.1063/1.121168>.

- [238] X.-Q. Shen, S. Tanaka, S. Iwai, and Y. Aoyagi. The formation of GaN dots on $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ surfaces using Si in gas-source molecular beam epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 72(3):344–346, January 1998. <http://dx.doi.org/10.1063/1.120731>.
- [239] H. Hirayama, Y. Aoyagi, and S. Tanaka. Fabrication of Self-Assembling AlGaIn Quantum Dot on AlGaIn Surfaces Using Anti-Surfactant. *Mater. Res. Soc. Internet J. Nitride Semicond. Res.*, 4(S1):852–857, 1999/ed. <http://dx.doi.org/10.1557/S1092578300003525>.
- [240] K. Forghani, L. Schade, U. T. Schwarz, F. Lipski, O. Klein, U. Kaiser, and F. Scholz. Strain and defects in Si-doped (Al)GaIn epitaxial layers. *Journal of Applied Physics*, 112(9):093102, November 2012. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4761815>.
- [241] S. Keller, S. F. Chichibu, M. S. Minsky, E. Hu, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars. Effect of the growth rate and the barrier doping on the morphology and the properties of InGaIn/GaIn quantum wells. *Journal of Crystal Growth*, 195(1):258–264, December 1998. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(98\)00680-0](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(98)00680-0).
- [242] D.-B. Li, M. Aoki, T. Katsuno, H. Miyake, K. Hiramatsu, and T. Shibata. Influence of growth interruption and Si doping on the structural and optical properties of $\text{Al}_x\text{GaIn}/\text{AlIn}$ ($x>0.5$) multiple quantum wells. *Journal of Crystal Growth*, 298: 500–503, January 2007. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2006.10.197>.
- [243] C. Sasaoka, F. Miyasaka, T. Koi, M. Kobayashi, Y. Murase, Y. Ando, and A. A. Yamaguchi. Surface Morphologies and Optical Properties of Si Doped InGaIn Multi-Quantum-Well Grown on Vicinal Bulk GaIn(0001) Substrates. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 52(11R):115601, October 2013. <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.52.115601>.
- [244] R. Engelhardt. *Metallorganische Gasphasenepitaxie und Laseranwendungen von CdSe/Zn(S,Se) Quantenpunkten*. Doktorarbeit, Technische Universität Berlin, Mai 2000.
- [245] AkzoNobel. Product Data Sheet TMAI SSG, January 2014.
- [246] AkzoNobel. Product Data Sheet TMGa SSG, September 2017.
- [247] K. Seshan. *Handbook of Thin Film Deposition Techniques Principles, Methods, Equipment and Applications, Second Edition*. CRC Press, Norwich, N.Y, 1 edition edition, February 2002.
- [248] T. Wunderer, C. L. Chua, Z. Yang, J. E. Northrup, N. M. Johnson, G. A. Garrett, H. Shen, and M. Wraback. Pseudomorphically Grown Ultraviolet C Photopumped Lasers on Bulk AlIn Substrates. *Appl. Phys. Express*, 4(9):092101, August 2011. <http://dx.doi.org/10.1143/APEX.4.092101>.
- [249] A. V. Sampath, G. A. Garrett, E. D. Readinger, R. W. Enck, H. Shen, M. Wraback, J. R. Grandusky, and L. J. Schowalter. Characterization of nanometer scale compositionally inhomogeneous AlGaIn active regions on bulk AlIn substrates. *Solid-State*

- Electronics*, 54(10):1130–1134, October 2010. <http://dx.doi.org/10.1016/j.sse.2010.05.006>.
- [250] C. G. Moe, G. A. Garrett, J. R. Grandusky, J. Chen, L. E. Rodak, P. Rotella, M. Wraback, and L. J. Schowalter. Correlation between optical and electrical performance of mid-ultraviolet light-emitting diodes on AlN substrates. *Phys. Status Solidi C*, 11(3-4):786–789, February 2014. <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.201300686>.
- [251] Z. Bryan, I. Bryan, J. Xie, S. Mita, Z. Sitar, and R. Collazo. High internal quantum efficiency in AlGa_N multiple quantum wells grown on bulk AlN substrates. *Appl. Phys. Lett.*, 106(14):142107, April 2015. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4917540>.
- [252] P. Ščajev, S. Miasojedovas, K. Jarašiūnas, K. Hiramatsu, H. Miyake, and B. Gil. Excitation-dependent carrier dynamics in Al-rich AlGa_N layers and multiple quantum wells. *Phys. Status Solidi B*, 252(5):1043–1049, May 2015. <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.201451479>.
- [253] Ž. Podlipskas, R. Aleksiejūnas, S. Nargelas, J. Jurkevičius, J. Mickevičius, A. Kadys, G. Tamulaitis, M. S. Shur, M. Shatalov, J. Yang, and R. Gaska. Photomodification of carrier lifetime and diffusivity in AlGa_N epitaxial layers. *Current Applied Physics*, 16(6):633–637, June 2016. <http://dx.doi.org/10.1016/j.cap.2016.03.010>.
- [254] S. Y. Davydov. Evaluation of physical parameters for the group III nitrates: BN, AlN, GaN, and InN. *Semiconductors*, 36(1):41–44, January 2002. <http://dx.doi.org/10.1134/1.1434511>.
- [255] D. Meschede. *Gerthsen Physik*. Springer-Lehrbuch. Springer Spektrum, 25 edition, 2015.
- [256] NIST. CODATA Value: Molar volume of ideal gas (273.15 K, 101.325 kPa), 2014.
- [257] NIST. CODATA Value: Avogadro constant, 2014.
- [258] ISO 13443:1996 - Natural gas – Standard reference conditions, 2016.
- [259] E. Silveira, J. A. Freitas, S. B. Schujman, and L. J. Schowalter. AlN bandgap temperature dependence from its optical properties. *Journal of Crystal Growth*, 310(17):4007–4010, August 2008. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2008.06.015>.

Danksagung

Abschließend möchte ich allen Personen danken, die zum Gelingen dieser Dissertation beigetragen haben:

- Prof. Dr. Günther Tränkle danke für die Möglichkeit, meine Promotion am Ferdinand-Braun-Institut durchführen zu können. Ich danke ihm auch für die ausgezeichneten Arbeitsbedingungen, für das Interesse an meinen Fortschritten und die regelmäßige Diskussion über diese sowie für seine stete Unterstützung bei extrakurrikularen Aktivitäten.
- Prof. Dr. Michael Kneissl danke ich für die Betreuung meiner Arbeit auf Seiten der Technischen Universität Berlin. Ich danke ihm ebenso dafür, dass er es mir ermöglicht hat, im Rahmen von Vorträgen, internationalen Konferenzen und eines einjährigen Forschungsaufenthalts am Palo Alto Research Center mein Wissen zu teilen, zu mehren und Kontakte mit anderen Wissenschaftlern zu knüpfen.
- Prof. Dr. Markus Weyers danke ich für die Betreuung meiner Arbeit am Ferdinand-Braun-Institut, für seine stete Bereitschaft zu Diskussionen, für seine unzähligen Anregungen und dafür, dass er mir die vielfache Teilnahme an diversen Workshops ermöglicht hat, auch wenn diese nicht in direktem Zusammenhang mit meinem Promotionsthema standen.
- Prof. Dr. Ulrich Schwarz danke ich für die Begutachtung dieser Arbeit.
- Dr. Arne Knauer und Dr. Veit Hoffmann danke ich dafür, dass sie mich in die Geheimnisse der MOVPE eingewiesen haben.
- Dr. Carsten Netzel und Helen Lawrenz danke ich für die gewissenhaften Photolumineszenzmessungen und deren Auswertung.
- Dr. Ute Zeimer und Helen Lawrenz danke ich für die unermüdliche Analyse meiner vielen Proben am REM und in der CL.
- Dr. Anna Mogilatenko danke ich für die TEM-Messungen und ihr scheinbar unerschöpfliches Wissen zu Nitridhalbleitern.
- Martin Martens danke ich für die Durchführung der optischen Pumpexperimente an der TUB sowie für das Design des entsprechenden Messplatzes, sodass auch ich diesen nutzen konnte.
- Dr. Hans Wenzel danke ich für die Unterstützung bei Bauelementsimulationen und bei der Diskussion über die Sinnhaftigkeit von Simulationsergebnissen.

- Den eben Genannten sowie all meinen Kollegen vom Ferdinand-Braun-Institut und der Technischen Universität Berlin, insbesondere Dr. Moritz Brendel, Dr. Frank Brunner, Johannes Enslin, Simon Fleischmann, Dr. Sylvia Hagedorn, Christan Kuhn, Dr. Viola Küller, Dr. Frank Mehnke, Christoph Reich, Dr. Eberhard Richter, Sebastian Walde und Dr. Tim Wernicke danke ich für die unzähligen Diskussionen über Ergebnisse, Unsicherheiten und weitere Untersuchungsmöglichkeiten, für das Feedback zu geplanten Veröffentlichungen und dafür, dass sie auf meine mal mehr, mal weniger intelligenten Fragen stets ausführliche Antworten gefunden haben.
- Torsten Petzke, aber auch Olaf Fink, Daniel Schauer und Thomas Tessaro danke ich für die technische Betreuung der Epitaxieanlage und -infrastruktur. Zweifelslos wäre die Epitaxie am FBH ohne sie nicht ansatzweise so erfolgreich.
- Nadine Möller und Claudia Fischer gilt mein Dank für die stete Unterstützung bei Dienstreisen und anderen administrativen Angelegenheiten.
- Für die vielen angenehmen Gespräche beim Mittagessen sowie manch andere gemütliche halbe Stunde vielen Dank an Nadine, Claudia, Andre, Simon, Frank, Moritz, Sebastian und Julian.
- Meinen Eltern, Geschwistern und Freunden danke ich für ihre Unterstützung, für ihr stets offenes Ohr, wenn es mal nicht so gut lief, für ihr Verständnis, wenn meine Anrufe oder Besuche zeitweilig nur sehr spärlich stattfanden und für die Ablenkung vom Alltag, wenn es dann doch mal dazu kam.
- Uli danke ich für ihre bedingungslose Unterstützung, die unter anderem, aber längst nicht nur in leckerem, gesundem Essen, vielen interessanten Gesprächsthemen abseits der Arbeit, aber auch dem Ertragen meiner häufigen Abwesenheit und gelegentlichen Frustration ihren Ausdruck fand.