



Technische Universität Braunschweig



3-dimensionale GaN-Nanostrukturen – Grundlagen neuartiger Leuchtdioden

Werner Bergbauer



Cuvillier Verlag Göttingen Internationaler wissenschaftlicher Fachverlag





3-dimensionale GaN-Nanostrukturen

- Grundlagen neuartiger Leuchtdioden -

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

zur Erlangung der Würde eines

Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)

genehmigte Dissertation

von Werner Bergbauer aus Regensburg

eingereicht am: mündliche Prüfung am: $\begin{array}{c} 04.04.2011\\ 31.05.2011 \end{array}$

Referent: Koreferent: Prof. Dr. rer. nat. Andreas Waag Prof. Dr. rer. nat. Meinhard Schilling

 ${\bf 2011}$

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

1. Aufl. - Göttingen: Cuvillier, 2011 Zugl.: (TU) Braunschweig, Univ., Diss., 2011

 $978 ext{-} 3 ext{-} 86955 ext{-} 833 ext{-} 2$

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2011 Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen Telefon: 0551-54724-0 Telefax: 0551-54724-21 www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen. 1. Auflage, 2011 Gedruckt auf säurefreiem Papier

978 - 3 - 86955 - 833 - 2

Inhaltsverzeichnis

Ab	ostrac	t	1			
Κι	ırzbe	schreibung	3			
1.	Einle	eitung und Motivation	7			
2.	Grundlagen					
	2.1.	Das Materialsystem AlInGaN	13			
		2.1.1. Materialeigenschaften	13			
		2.1.2. Das ternäre Materialsystem InGaN	16			
		2.1.3. Piezoelektrische Felder	17			
	2.2.	Licht emittierende Dioden (LED)	19			
		2.2.1. Der Schichtaufbau einer LED	20			
		2.2.2. Die Dünnfilm LED	21			
		2.2.3. Effizienz	22			
		2.2.4. Weiße LEDs	25			
	2.3.	Grundlagen der Metallorganischen Gasphasen-Epitaxie	26			
		2.3.1. Reaktoreigenschaften	26			
		2.3.2. Alkyle und Hydride	27			
		2.3.3. Substrate	29			
		2.3.4. Wachstumsprozesse	30			
		2.3.5. Dotierung	32			
		2.3.6. Wachstum von InGaN	33			
3.	GaN-Nanosäulen - Stand der Technik 35					
	3.1.	Wachstum von GaN-Nanosäulen	36			
	3.2.	Einbau von Indium	39			
	3.3.	Chiptechnologie	42			
Δ	Das	Wachstum von geordneten Nanosäulen	45			
	4 1	Positionskontrolle des Nanosäulenwachstums: Templateherstellung	46			
	1.1.	4.1.1 Verwendete Lithographieverfahren	46			
		4.1.2 Masken- und Stempeldesign	49			
	42	Prozesssteuerung [•] MOVPE-Wachstum	52			
	1.2.	4.2.1 Trägergaskomposition	53			
		4.2.2. Wachstumszeit	60			
		423 Temperatur	62			
		424 Kristallorientierung	66			
		4.2.5 Wachstumprozess	79			
		1.2.0. Walding 102000	14			

	4.3.	Evalua 4.3.1.	tion der Materialqualität	79 80
		1.0.2.	fekten	85
5.	Die	Epitaxi	e von NanoLEDs	91
	5.1.	Embau $5.1.1.$	Optische Eigenschaften	91 92
		5.1.2.	Strukturelle Eigenschaften	98
	5.2.	Dotier	ung	104
6.	Nan	oLED-I	Design und Umsetzung des Chipkonzeptes	111
	6.1.	Top-D	own Ansatz: Von der 2D-LED zur Nanosäulen-LED	112
	6.2.	Verfüll	en von Nanostrukturen	114
		6.2.1.	Eigenschaften der Füllmaterialien	115
	63	0.2.2. Kontal	Iransparenz und Alterungsstabilität	120 191
	0.3. 6.4.	Elektro	olumineszenz von NanoLEDs	121 124
7.	Zusa	ammen	fassung und Ausblick	131
7. ∆	Zusa Anh	ammen ang	fassung und Ausblick	131 137
7. A.	Zusa Anh A.1.	ammen ang Funkti	fassung und Ausblick	131137137
7. A.	Zusa Anh A.1. A.2.	ammen ang Funkti Stroma	fassung und Ausblick onsweise einer Leuchtdiode	 131 137 137 144
7. A. Ve	Zusa Anh A.1. A.2. rzeic	ammen ang Funkti Stroma hnis ve	fassung und Ausblick onsweise einer Leuchtdiode	 131 137 137 144 149
7. A. Ve	Zusa Anh A.1. A.2. rzeic Natu Form	ammen ang Funkti Stroma hnis ve urkonsta nelzeich	fassung und Ausblick onsweise einer Leuchtdiode abhängiges Verhalten einer InGaN SQW LED rwendeter Naturkonstanten, Formelzeichen und Abkürzungen anten en und Abkürzungen	 131 137 137 144 149 149 149
7. A. Ve	Zusa Anh A.1. A.2. rzeic Natu Form	ammen ang Funkti Stroma hnis ve urkonsta nelzeich	fassung und Ausblick onsweise einer Leuchtdiode abhängiges Verhalten einer InGaN SQW LED rwendeter Naturkonstanten, Formelzeichen und Abkürzungen anten en und Abkürzungen zeichnis	 131 137 137 144 149 149 149 153
7. A. Ve At	Zusa Anh A.1. A.2. rzeic Natu Form bildu belle	ammen ang Funkti Stroma hnis ve urkonsta nelzeich ungsverz nverzeie	fassung und Ausblick onsweise einer Leuchtdiode	 131 137 137 144 149 149 149 153 161
7. A. Ve At Ta Lit	Zusa Anh A.1. A.2. rzeic Natu Form bildu belle	ammen ang Funkti Stroma hnis ve urkonsta nelzeich ingsverz nverzei urverzei	fassung und Ausblick onsweise einer Leuchtdiode abhängiges Verhalten einer InGaN SQW LED rwendeter Naturkonstanten, Formelzeichen und Abkürzungen anten en und Abkürzungen zeichnis chnis	 131 137 137 144 149 149 149 153 161 163
7. A. Ve At Ta Lit	Zusa Anh A.1. A.2. rzeic Natu Form bildu belle ceratu bensl	ammen ang Funkti Stroma hnis ver urkonsta nelzeich ingsverz nverzei urverzei lauf und	fassung und Ausblick onsweise einer Leuchtdiode abhängiges Verhalten einer InGaN SQW LED rwendeter Naturkonstanten, Formelzeichen und Abkürzungen anten en und Abkürzungen zeichnis chnis d Veröffentlichungen	 131 137 137 144 149 149 149 153 161 163 173

Abstract

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

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

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

For the first time the growth of ordered GaN nanorods was achieved in a large volume production-like MOCVD tool. Nanoimprint lithography was identified to be an appropriate method for substrate patterning and therefore an exact positioning of the nanorods. Beyond the state of the art, three dimensional nanostructures with high aspect ratios were grown without the need of pulsed MOCVD or catalytic growth processes. The carrier gas composition, the distance between nanorods, the growth time, the temperature as well as the crystal orientation were determined to be the most important MOCVD parameters that influence the shape and size of the nanorods. Using these parameters, the ratio between polar, semi-and nonpolar facets and therefore the morphology could be controlled very accurately. The role of hydrogen was identified to manipulate the growth rates on distinct crystal facets. Thus, a general scientific appreciation of the nanorod growth mechanism within large volume MOCVD reactors was generated for the first time. The excellent crystal quality of both semipolar $\{10\overline{11}\}$ and $\{10\overline{12}\}$ facets was proven by transmission electron microscopy (TEM)

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

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

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

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

Kurzbeschreibung

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

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

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

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

Im Laufe dieser Dissertation ist erstmals das Wachstum von geordneten GaN-Nanosäulen in einer großvolumigen MOVPE-Produktionsanlage erreicht worden. Dabei wurde Nanoimprint-Lithographie als geeignete Methode für die Positionskontrolle der Nanosäulen identifiziert. Über den Stand der Technik hinaus wurde eine Prozessabfolge entwickelt, die dreidimensionale Nanostrukturen mit hohem Aspektverhältnis ohne die Notwendigkeit von gepulsten Gasen oder Katalysatoren ermöglicht. Als wesentliche Steuerungsparameter konnten die Trägergaskomposition, der Abstand zwischen den Nanosäulen, die Wachstumszeit, die Temperatur und die Kristallorientierung bestimmt werden. Die Morphologie, insbesondere das Oberflächenverhältnis zwischen polaren, semipolaren und unpolaren Kristallfacetten kann so gezielt beeinflusst werden. Die Verknüpfung der Ergebnisse der verschiedenen Auswertungen ergab, dass dies im Wesentlichen aus einer Manipulation der Wachstumsraten durch eine Wasserstoffpassivierung von verschiedenen Kristallfacetten resultiert. Die bei den Experimenten gewonnenen Erkenntnisse konnten dazu genutzt werden, erstmals ein grundlegendes Verständnis für die Wachstumsmechanismen von GaN-Nanosäulen in einer MOVPE-Großvolumenanlage zu generieren. Die hervorragende Materialqualität der beiden sempipolaren $\{10\overline{1}\overline{1}\}$ und $\{10\overline{1}\overline{2}\}$ Facetten konnte durch die strukturelle Transmissionselektronenmikroskop(TEM)-Analyse der Nanosäulen festgestellt werden. Dabei konnte, ebenso wie bei anderen Forschungsgruppen, eine Defektreduktion während des Nanosäulenwachstums beobachtet werden. Kathodolumineszenz(KL)-Messungen zeigten übereinstimmend mit den TEM-Analysen, dass mit Verlauf des Wachstums die bei der Nukleation entstandenen Defekte abnehmen und die Materialqualität zur Spitze der Nanosäule hin ansteigt. Allerdings treten in manchen Nanostrukturen auch Schraubenversetzungen und Nanokavitäten auf, welche die gesamte Säule vom Nukleationspunkt bis zur Spitze durchlaufen. Diese können durch eine Verbesserung der Maskenqualität und des Nukleationsprozesses deutlich reduziert werden.

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

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

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

Kapitel 1.

Einleitung und Motivation

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

Trotz der bereits erreichten hohen Ausbeuten gibt es Potential, diese noch weiter zu steigern. So zeigen heute alle auf dem Materialsystem AlInGaN¹ basierenden Leuchtdioden eine verminderte interne Quanteneffizienz bei hohen Stromdichten. Als Ursache hierfür werden Auger-artige Rekombinationsprozesse vermutet, welche bei hohen Ladungsträgerdichten einen großen Einfluss haben (siehe Kapitel A.2 und [Laubsch2009]). Um diesen nichtstrahlenden Prozessen entgegenzuwirken, muss die Ladungsträgerdichte möglichst niedrig gehalten werden. Die Vergrößerung der aktiven Fläche bietet eine Möglichkeit, dies zu realisieren. Aufgrund dessen verfügen LEDs, die dem Stand der Technik entsprechen, über eine sehr fein abgestimmte aktive Struktur mit mehreren Quantenfilmen. Die gleichmäßige Verteilung der Ladungsträger auf alle Quantenfilme gestaltet sich jedoch schwierig.

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

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

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

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



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

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

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



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

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



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

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

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

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

Das Grundlagenkapitel 2 der Dissertation gibt einen Überblick über die fundamentalen Eigenschaften des Materialsystems AlInGaN. Darauf basierend wird die Funktionsweise einer LED anhand des prinzipiellen Schichtaufbaus und dem Konzept einer Dünnfilm-LED erläutert. Kurz werden auch Themen wie die Effizienz von Leuchtdioden und die Möglichkeiten, weiße LEDs herzustellen, beleuchtet. Abschnitt 2.3 behandelt die Grundlagen zum Wachstum von GaN in einer MOVPE. Dort werden die Reaktoreigenschaften der Anlage, häufig verwendete Substrate und die in dieser Dissertation benötigten Alkyle und Hydride behandelt. Mit der Beschreibung der damit verbundenen Wachstumsprozesse, der Dotierung und dem Wachstum von InGaN wird dieser Abschnitt abgeschlossen.

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

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

Die Epitaxie von NanoLEDs wird in Kapitel 5 behandelt. Einblicke in den Einbau von Indium in die in Kapitel 4 vorgestellten Nanostrukturen können hier mit Hilfe der Evaluation von Photolumineszenz- und Kathodolumineszenzmessungen gewonnen werden. Die Auswertung der Transmissionselektronenmikroskopanalysen in Abschnitt 5.1.2 hilft dabei, die im vorangegangen Abschnitt 5.1.1 gewonnenen Erkenntnisse aus den optischen Untersuchungen richtig zu interpretieren. Die Dotierung von Nanosäulen mit Silizium und Magnesium im Gliederungspunkt 5.2 zeigt, dass sowohl die n- als auch die p-Dotierung der Nanostrukturen möglich ist. Das abschließende **Kapitel 6** beschäftigt sich mit dem Design eines möglichen **Chipkonzeptes** für Nanosäulen. Um geeignete Teststrukturen für diese Experimente zu erhalten, wird zunächst auf das Ätzen von NanoLEDs eingegangen. Die Einbettung dieser NanoLEDs in eine für Produktionsprozesse geeignete Matrix ist der wesentliche Kernpunkt von Unterkapitel 6.2, bevor im Anschluss daran in 6.3 die Kontaktierung dieser NanoLEDs vorgestellt wird. Elektrolumineszenzeigenschaften dieser kontaktierten NanoLEDs und die Möglichkeit μ -Elektrolumineszenzaufnahmen einzelner NanoLEDs zu evaluieren, bilden den letzten Abschnitt 6.4.

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