

Masterarbeit zum Thema

**Untersuchung der optischen Polarisation und internen
Quanteneffizienz von AlGaN Quantenfilmen mittels
temperatur- und leistungsabhängiger
Photolumineszenzspektroskopie**

Baran Avinc

Institut für Festkörperphysik



Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	5
2 Grundlagen	9
2.1 Bandstruktur von Gruppe-III Nitriden	9
2.2 Polarisationsfeld und QCSE in III/V Halbleitern	11
2.3 Rekombinationsmechanismen	12
2.4 Bestimmung der internen Quanteneffizienz	15
2.5 Bestimmung der IQE bei Raumtemperatur durch Fitting	16
2.6 Optische Polarisation und Valenzbandstruktur	18
3 Aufbau	19
3.1 Photolumineszenzaufbau	19
3.2 Bestimmung der Degradation des UV Quarzglases	21
3.3 Erweiterung der Filterkombinationen	23
4 Ergebnisse	25
4.1 Einfluss der Auger-Rekombination auf die IQE	25
4.2 Einfluss der Siliziumdotierung auf die IQE	27
4.3 Untersuchung optisch gepumpter Laserstrukturen auf unterschiedlichen Templates	28

Kapitel 1

Einleitung

In the spirit of Alfred Nobel the Prize rewards an invention of greatest benefit to mankind; using blue LEDs, white Light can be created in a new way.

Dieser Satz, den die Schwedische Akademie der Künste nach der Vergabe des Nobelpreises an die Entwicklung der blauen LED(kurz, light emitting diode) im Jahr 2014 an die Presse veröffentlichte, fasst treffend zusammen, wie hoch die Bedeutung der auf Halbleiterkristallen basierenden optischen Bauelemente ist. LEDs nehmen einen fundamentalen und immer bedeutender werdenden Teil unseres alltäglichen Lebens ein. Ausgezeichnet durch ihre hervorragende Effizienz, konkurrenzlosen Lebensdauer und geringen Dimension übernimmt sie durch eine immer höher werdenden Lichtausbeute zusehends neue Anwendungsbereiche. Insbesondere auf Gallium Nitrid (GaN) basierende Halbleitermaterialien haben einen bahnbrechenden Weg hingelegt, der zur Entwicklung von hoch effizienten und leuchtstarken blauen LEDs führte und ebenfalls Grundlage für die Entwicklung in andere hochenergetische Wellenlängenbereiche darstellt [11]. So ebnet GaN auch den Weg für die Erzeugung von ultraviolet emittierenden Leuchtdioden. Der ultraviolette Spektralbereich, der sich unterteilt in den UV-A (400 nm bis 320 nm), UV-B (320 nm bis 280) und UV-C Bereich (280 nm bis 200 nm) ist bedeutend für eine sehr hohe Anzahl spezieller Anwendungsbereiche. Beispielsweise bieten sich UV-LEDs an die bisher für Wasseraufbereitung genutzten Quecksilberdampflampen zu ersetzen, für deren Betrieb Hochspannungsnetzteile verwendet werden, die einen mobilen Einsatz erheblich erschweren können. Hier könnten UV-LEDs Abhilfe verschaffen, die durch ihr kleines Format und durch die niedrigen Betriebsspannungen einen Mobileneinsatz ermöglichen. Ein weiteres Anwendungsgebiet ist die industrielle Aushärtung/Aufbrechung von Lacken und die Gasdetektion.

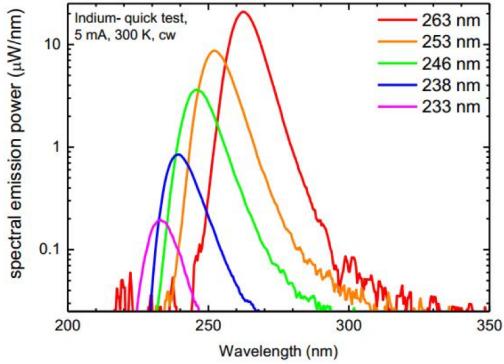


Abbildung 1.1: Spektrale Emissionsleistung für 5 verschiedene Wellenlängen von 263 nm bis 233 nm. Die Grafik zeigt, dass die spektrale Emissionsleistung mit sinkender Wellenlänge ebenfalls sinkt[10].

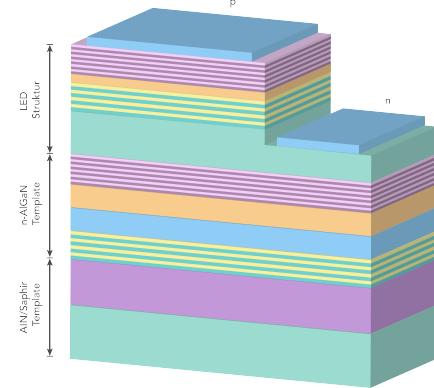


Abbildung 1.2: Aufbau einer LED-Heterostruktur mit vielen Schichten die unterschiedlichen Zwecken dienen.

Für all diese möglichen Applikation ist eine hohe Ausgangsleistung notwendig. Aber wie in Abb. [1.1] zu sehen ist, sinkt die spektrale Emissonsleistung mit kleiner werdendem Wellenlängenbereich signifikant. Der Grund dafür ist, dass UV-LEDs an einer geringen Effizienz leiden, die quantitativ ausgedrückt wird als Externe Quanteneffizienz (EQE) und sich zusammensetzt aus dem Produkt der internen Quanteneffizienz (IQE), Extraktions Effizienz (EE) und Injektionseffizienz(INJ):

$$EQE = IQE \cdot EE \cdot INJ \quad (1.1)$$

Die Gründe für die geringe Effizienz sind vielfältig. LEDs bestehen aus einer Vielzahl an Schichten (Abb. [1.2]), die unterschiedlichen Funktionen dienen. Diese Schichten werden auf Substraten aufgewachsen. Eine hohe Substratqualität ist also der Grundbaustein für die optischen Eigenschaften und damit besonders entscheidend. Denn eine geringe Defektdichte im Substrat geht einher mit einer ebenfalls geringen Defektdichte in den aufgewachsenen Schichten und damit insbesondere der aktiven Zone, in der Elektronen und Löcher rekombinieren und Licht emittiert wird. Ein weiteres Problem im Zusammenhang mit den geringen Defektdichten, ist ein Mangel an geeigneten Substratmaterialien. So wird aufgrund des Mangels an AlN-Substraten, beruhend auf den Schwierigkeiten bei der Herstellung, auf Saphir

Substrate ausgewichen. Diese sind im fernen UV transparent und zusätzlich in großen Mengen in guter Qualität herstellbar. Problematisch jedoch ist die hohe Gitterfehlanpassung durch die relativ großen Unterschiede zwischen den Gitterkonstanten von AlN/GaN und Saphir. Durch diese, sind AlN- und AlGaN-Schichten nicht vollverspannt aufwachsbar. Das führt dazu, dass die Schichten relaxieren, weil die Elastizität der Schicht nicht groß genug im Vergleich zur Verspannungsenergie ist. Die Relaxation führt zur Entstehung von Versetzungen und Rissen. Diese agieren im Kristall als sogenannte nicht-radiative Rekombinationszentren die die IQE verringern.

Die Hauptthematik dieser Arbeit liegt in der Bestimmung der IQE von AlGaN - Heterostrukturen mit Hilfe von temperaturabhängigen Photolumineszenzmessungen. So lässt sich, bei der Annahme, dass bei Tieftemperatur keine nicht-strahlende Rekombination stattfindet, die IQE als Quotient der Intensität der Photolumineszenz bei Tieftemperatur (5K) und Raumtemperatur (300K) beschreiben. Im Rahmen der Arbeit wird auch eine Methode analysiert, laut der es möglich ist, allein durch leistungsdichteabhängige Messungen bei Raumtemperatur die IQE zu bestimmen. Das ist in so fern ein Vorteil, dass ein aufwändiges Runterkühlen auf 5K nicht notwendig ist.

Kapitel 2

Grundlagen

2.1 Bandstruktur von Gruppe-III Nitriden

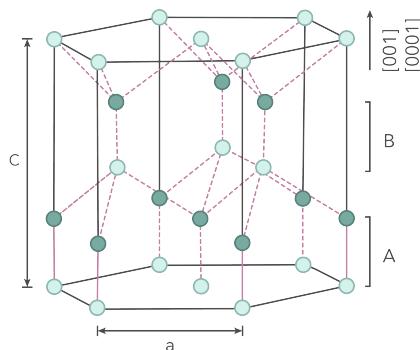


Abbildung 2.1: Einheitzelle der hexagonale Wurtzitstruktur. Die schwarzen Kreise stellen die Position der Stickstoffatome im Gitter dar. Die Gitterposition der Gruppe-III-Metallatome sind als graue Kreise dargestellt. A und B bezeichnen die Stapelebene.

Die wichtige Gruppe der III-Nitridhalbleiter setzt sich aus den Metallen der dritten Hauptgruppe Aluminium (Al), Gallium (Ga) und Indium (In) zusammen. Anschaulich bedeutet dies, dass ausgehend von der hexagonal dichtesten Kugelpackung in Doppelagen, die Gruppe-III-Metalle und Stickstoff (N) sich

entlang der c-Achse in der Abfolge A-B-A-B anordnen [3] wie in Abb. [3.1] dargestellt ist. Diese kristallisieren bevorzugt in der hexagonalen Wurtzitstruktur Abb. [3.1]. Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt auf dem AlGaN-Materialsystem mit hohen Al-Konzentration. Das Mischverhältnis bestimmt hierbei die Bandlückenergie des Verbindungshalbleiters. Durch die unterschiedlichen Bandlückenergien von Aluminium mit $6,03\text{ eV}$ [5] und GaN mit $3,4\text{ eV}$ [8] eignet sich AlGaN besonders für die Emission im Wellenlängenbereich von UV-A bis UV-C. Die Bandlückenenergie von AlGaN lässt sich durch Interpolation der binären Energien von GaN und AlN in Abhängigkeit des Kompositionsverhältnisses x berechnen, wobei ein zusätzlicher Bowing-Parameter für die nichtlineare Abweichung hinzugefügt wird.

$$E_{Al_xGa_{1-x}N} = E_{AlN} \cdot x + E_{GaN} \cdot (1 - x) - b_{AlGaN} \cdot x \cdot (1 - x) \quad (2.1)$$

Die Gruppe um Lee et al. gibt nach Auswertung der in der Literatur vorkommenden unterschiedlichen Bowing-Parameter für $Al_xGa_{1-x}N$ einen Wert von $b_{AlGaN} = 0,62 (\pm 0,45)\text{ eV}$ und geben weiter an, das hohe Wachstumstemperaturen zu großen Bowing-Parametern führen [6]. Vurgaftman et al. empfehlen unter Berücksichtigung weiterer Veröffentlichungen für $b_{AlGaN} = 0,7\text{ eV}$

2.2 Polarisationsfeld und QCSE in III/V Halbleitern

Aufgrund der fehlenden Inversionssymmetrie und stark unterschiedlichen Elektronegativitäten des Stickstoffs und der entsprechenden Gruppe III-Metalle bilden sich Polarisationsfelder aus, die entlang der auf der Basalebene stehenden c-Achse verlaufen. Hier unterscheidet man zwischen zwei Arten von Polarisationsfeldern, die spontane Polarisation \vec{P}^{sp} und die piezoelektrische Polarisation \vec{P}^{pz} .

Die spontane Polarisation entsteht durch Dipolmomente im Kristall die sich aufgrund von ungleichen Bindungslängen nicht komplett aufheben. Ursprung der Dipolmomente im AlGaN sind die unterschiedlichen Elektronegativitäten zwischen den Gruppe III-V Elementen und bedingt durch die angestrebte Minimierung der Gesamtenergie, kommt es zur Abweichung vom idealen Tetraederwinkel von $109,5^\circ$ [1].

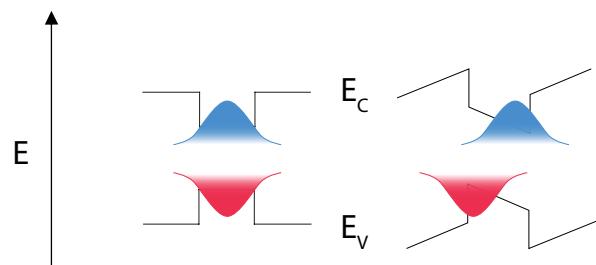


Abbildung 2.2: Einluss der spontanen und piezolektrischen Polarisation auf Valenz- und Leitungsband einer Quantenfilm-Heterostruktur. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten von Elektronen und Löchern werden verschoben.

Die Ursache für die piezoelektrische Polarisation sind die Verspannungen zwischen den in (0001)-Richtung gewachsenen Schichten welche durch die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten und die Gitterfehlanpassung beim pseudomorphen Wachstum entstehen. Sie wird berechnet nach

$$\vec{P}^{pz} = e \cdot \epsilon \quad (2.2)$$

mit Dehnung ϵ und dem piezolektrischen Tensor \vec{e} (Tensor dritter Stufe). In Heterostrukturen führt der Wechsel der Gesamtpolarisation $\vec{P}^{gesamt} = \vec{P}^{pz} + \vec{P}^{sp}$ zwischen den einzelnen Schichten zur Ansammlung von Ladungsträgern an den Grenzflächen. Dies ist insbesondere für die Effizienz von Leucht- und Laserdioden von Nachteil. Denn in diesen erzeugen die induzierten Grenzflächenladungen ein elektrisches Feld, das zur einer Bandverbiegung führt (siehe Abb.[2.2]). Mit dem Einfluss der Polarisation sammeln sich die Elektronen und Löcher im Quantenfilm somit auf gegenüberliegenden Seiten. Dies führt dazu, dass der räumliche Überlapp der Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern abnimmt. Durch das verringerte Überlappintegral der Wellenfunktionen sinkt nach Fermis Goldener Regel auch die strahlende Rekombinationsrate. Dieser Effekt wird als "Quantum Confined Stark Effekt" (QCSE) bezeichnet. Des Weiteren sinkt die effektive Bandlücke und ist im Spektrum durch eine Rotverschiebung der Emission zu erkennen. Bei hohen Ladungsträgerdichten im Quantenfilm kommt es zur Abschirmung (engl. screening) der Grenzflächenladungen die die Auswirkungen des Effektes abschwächen.

2.3 Rekombinationsmechanismen

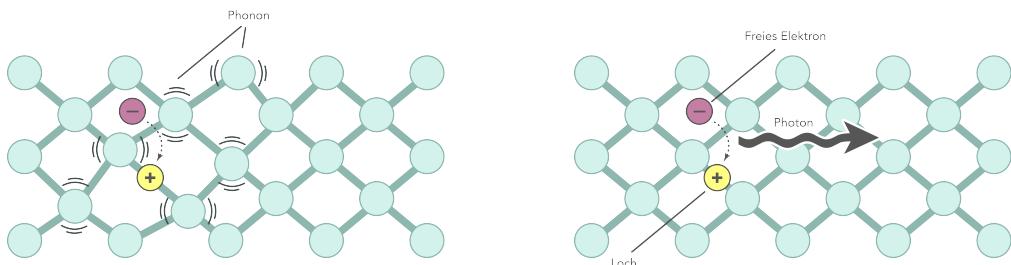


Abbildung 2.3: Rekombination von Elektron und Loch unter Teilnahme eines Phonons.

Abbildung 2.4: Radiative Rekombination von Elektron und Loch und Aussendung eines Photons

In der Photolumineszenzspektroskopie wird Licht als Anregungsquelle für die

Anregung von Halbleitermaterialien für die Erzeugung eines Elektron-Loch-Paars benutzt. Dabei wird ein Elektron aus dem Valenzband in das Leitungsband angehoben und ein Loch zurückgelassen. Die Elektronen relaxieren anschliessend sehr schnell in das Minimum des Leitungsbandes und analog die Löcher in das Minimum des Valenzbandes Abb. . Leitung- und Valenzband befinden sich im Fall von AlGaN am gleichen \vec{k} Vektor im reziproken Raum, dem sog. Γ -Punkt. Das macht das Materialsystem AlGaN zu einem direkten Halbleiter, was von besonderem Vorteil ist. Denn ein direkter Bandübergang, ist die wichtigste Grundlage für eine effiziente halbleiterbasierte Lichtquelle. Denn die Wahrscheinlichkeit einer Anregung und daraufhin folgender Rekombination unter Aussendung eines Photons ist deutlich höher, da kein Phonon am Prozess beteiligt sein muss. Die Rekombination kann dennoch auch nicht-strahlend erfolgen, weil epitaktisch gewachsene Halbleitersstrukturen herstellungsbedingt beispielsweise nicht ohne ungewollte Dotierung durch Fremdatome, Versetzungen oder Fehlstellen an Atomgitterplätzen (Vakanzien) gewachsen werden können. Diese als sogenannten Störstellen fungieren und diskrete Energieniveaus haben, Dazu werden drei Prozesse betrachtet: Zuallerst die nichtstrahlende

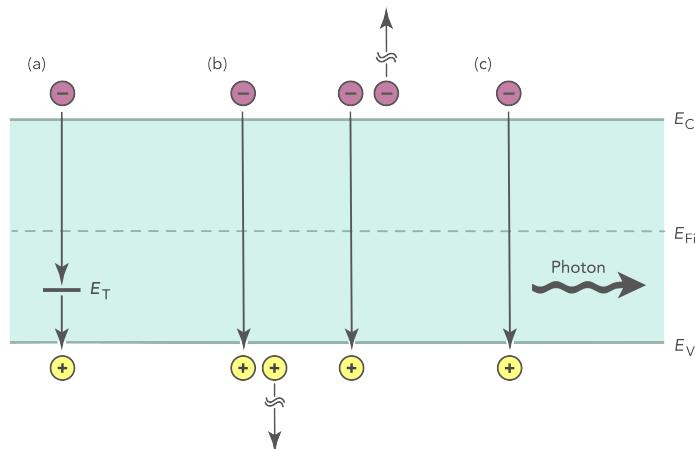


Abbildung 2.5

Rekombination, die durch die Shockley-Read-Hall- (SRH-) Rekombination an Defekten beschrieben und durch den Parameter A berücksichtigt wird ($R_{nonrad} = A \cdot \text{nicht}$). Sie ist linear abhängig von der Ladungsträgerdichte n . Sie findet statt unter der Beteiligung eines Defektniveaus und eines Phonons. Der strahlende Prozess der spontanen Rekombination ist für niedrige Ladungsträgerdichten quadratisch in n und findet statt als Zwei-Teilchen Prozess bei dem Loch und Elektron beteiligt sind ($R_{rad} = B \cdot n^2$). Dieser wird

beschrieben mit dem Koeffizienten B. Der letzte Prozess ist die Auger-Rekombination der speziell für sehr hohe Anregungsleistungsdichten relevant ist und dann durch die kubische Abhängigkeit stark dominiert ($R_{auger} = C \cdot n^3$). Dabei gibt ein bereits in das Leitungsband angeregtes Elektron seine Energie an ein weiteres Elektron im Leitungsband ab. Dieses relaxiert dann entweder wieder zum Leitungsbandminimum unter Mitwirkung von Phononen oder verlässt bei Oberflächennähe den Kristall. Der letzte Fall bildet die Grundlage für die Auger-Elektronen-Spektroskopie. Die effektive Rekombination ist somit die Summe aus der radiativen Rekombination, der nicht-radiativen Rekombination und der Auger-Rekombination.

$$R_{eff} = R_{rad} + R_{nonrad} + R_{auger} \quad (2.3)$$

Der allgemein verwendete Ansatz zur Beschreibung der effektiven Rekombinationsrate R_{eff} (oder auch Generationsrate G) wird mit Hilfe der genannten Koeffizienten beschrieben und beruht auf der Abhängigkeit der beteiligten Prozesse von der Ladungsträgerdichte n und wird daher auch ABC-Modell genannt.

$$R_{eff}(G) = A \cdot n + B \cdot n^2 + C \cdot n^3 \quad (2.4)$$

Weiter wird angenommen, dass die Anregungsleistungsdichte des Lasers P proportional zu der Ladungsträger-Generationsrate G ist. Die radiative Rekombination R_{rad} wird hauptsächlich beeinflusst durch den Überlapp der Wellenfunktionen von Elektronen und Loch im Leitungsband und Valenzband des QW. Dieser wiederum ist stark beeinflusst vom QCSE (Abb. [2.2]) und besonders bedeutend bei heteroepitaktisch gewachsenen Halbleiterstrukturen.

2.4 Bestimmung der internen Quanteneffizienz

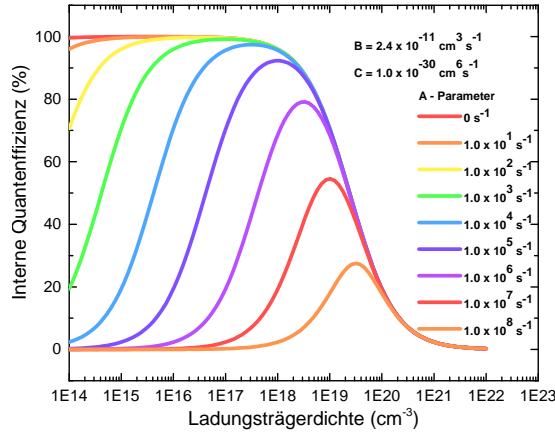


Abbildung 2.6: Die Grafik zeigt die Abhängigkeit der internen Quanteneffizienz von der Ladungsträgerdichte für feste Parameter B und C. Der Parameter wird A variiert mit 9 verschiedenen Werten von 0s^{-1} bis 10^9s^{-1} [10].

Die aktive Region einer idealen LED würde für jedes injizierte Elektron jeweils ein Photon aussenden. Das bedeutet, die IQE die nach [12] wie folgt definiert ist

$$IQE = \frac{\text{Anzahl der Photonen die von der aktiven Zone emittiert werden pro Sekunde}}{\text{Anzahl der Elektronen die in die LED injiziert werden pro Sekunde}} \quad (2.5)$$

müsste den Wert 1 annehmen. Die IQE kann somit analog beschrieben werden als Verhältnis von radiativer Rekombination und der effektiven Rekombination. Beschrieben mit Ratengleichungen und mit 2.3 ist die IQE in ihrer einfachsten Form somit

$$IQE = \frac{B \cdot n^2}{A \cdot n + B \cdot n^2 + C \cdot n^3} = \frac{R_{rad}}{R_{eff}} \quad (2.6)$$

Die IQE kann mit Hilfe der Photolumineszenzspektroskopie bestimmt werden, in dem angenommen wird, dass keine thermisch aktivierten Defekte bei Raumtemperatur vorhanden sind

$$A \propto e^{\frac{-E_{activation}}{kT}} \quad (2.7)$$

Mit dieser und der Annahme das keine Auger Rekombination ($C \cdot n^3$) auftritt, ist die IQE bei Tieftemperatur ($\propto 5K$) gleich 1. Somit kann die IQE beschrieben werden

$$IQE = \frac{\text{Integrierte PL Intensität (T)}}{\text{Integrierte PL Intensität (}T \rightarrow 0K\text{)}} \quad (2.8)$$

Als Quotient der integrierten PL Intensität bei Temperatur T und integrierter PL Intensität bei Tieftemperatur (5K). Die IQE ist folglich abhängig von der Temperatur, da der Parameter A für die SRH-Rekombination temperaturabhängig ist [Abb. 2.6]. Um also die IQE bei Raumtemperatur zu bestimmen, wird das Spektrum einer Probe bei 5K und 300K bei ansonsten möglichst gleichen Bedingungen aufgenommen. Die Intensität in Abhängigkeit der Wellenlänge wird interpoliert, dann integriert und dann das Verhältnis berechnet.

2.5 Bestimmung der IQE bei Raumtemperatur durch Fitting

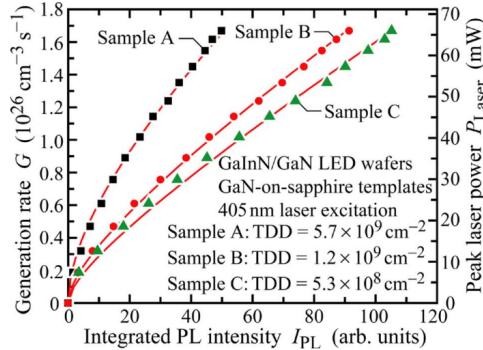


Abbildung 2.7: Fit für die Generationsrate in Abhängigkeit der integrierten PL-Intensität für drei InGaN/GaN MQW Proben mit einer unterschiedlichen Versetzungsichten aus [4].

In diesem Kapitel soll nun eine in [4] und [2] gezeigte Methode zur Bestimmung der IQE durch ein Fitting-Modell für die integrierte Intensität in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte vorgestellt werden. Das ist insbesondere von Vorteil, da so ein aufwändiges runterkühlen nicht mehr notwendig wäre, da die Spektren allein bei Raumtemperatur aufgenommen werden könnten.

Angefangen mit der Rekombinationsrate, geht das Modell davon aus, dass bei

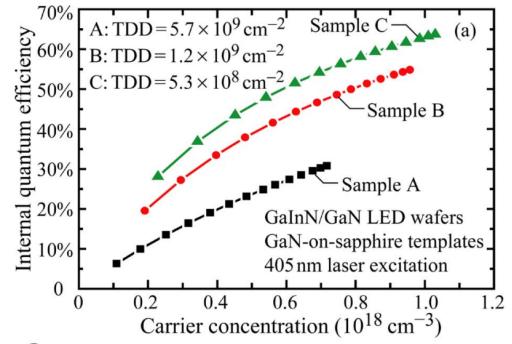


Abbildung 2.8: Ergebnisse für die IQE in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte aus den durch die Fits extrahierten Werten ([4]).

Raumtemperatur Auger-Rekombination nur bei sehr hohen Anregungsleistungsdichten relevant ist, wegen der kubischen Abhängigkeit der Auger-Rekombination von der Ladungsträgerdichte n . Die Generationrate G und die IQE bei Gleichgewichtsbedingungen ist somit:

$$G = R_{eff} = A \cdot n + B \cdot n^2 \quad (2.9)$$

$$IQE = \frac{B \cdot n^2}{A \cdot n + B \cdot n^2} = \frac{B \cdot n^2}{G} \quad (2.10)$$

G beschreibt namentlich die Rate der Ladungsträger die durch Bestrahlung mit dem Laser erzeugt werden und entspricht hierbei der effektiven Rekombinationsrate R_{eff} . Die integrierte PL-Intensität kann beschrieben werden als:

$$I_{PL} = \eta \cdot B \cdot n^2 \quad (2.11)$$

η ist eine konstante die durch das Volumen der angeregten aktiven Region und der Kollektionseffizienz bestimmt wird. Durch Eliminierung von n in den Gleichungen 2.9 und 2.11 kann die Generationsrate durch die integrierte PL Intensität beschrieben werden

$$G = \frac{A}{\sqrt{B \cdot n}} \sqrt{I_{PL}} + \frac{1}{\eta} I_{PL} \quad (2.12)$$

Um dies in Zusammenhang mit dem Experiment zu bringen, kann die Generationsrate getrennt berechnet werden mit Nutzung experimenteller Werte durch

$$G = \frac{P_{laser}(1 - R)\alpha l}{A_{spot}h\nu} = \frac{P_{laser}(1 - R)\alpha}{(A_{spot}h\nu)} \quad (2.13)$$

Dabei ist P_{laser} die optische Leistung die auf der Probe landet, R ist die Fresnel Reflektion auf der Probenoberfläche, A_{spot} ist die Fläche des Laserspots auf der Probe, $h\nu$ ist die Energie eines Photons mit $193nm$ und α ist der Absorptionskoeffizient. Damit ist es möglich, die Generationsrate zu bestimmen und in Abhängigkeit der integrierten PL-Intensität darzustellen. Und indem die Koeffizienten $c_1 = A\sqrt{B\eta}$ und $c_2 = 1/\eta$ durch einen Fit der Generationsrate in Abhängigkeit der integrierten Intensität extrahiert werden, kann die IQE bestimmt werden. Dazu wird c_1 nach A umgestellt ($A = \sqrt{B\eta} \cdot c_1$) und in 2.9 eingesetzt

$$G = \sqrt{B\eta} \cdot c_1 \cdot n + (\sqrt{B} \cdot n)^2 \quad (2.14)$$

Durch lösen von Gleichung 2.14, für $(\sqrt{B} \cdot n)$ und einsetzen in Gleichung 2.10 ist es so möglich die IQE basierend auf einem Fit durch Raumtemperaturmessung in Abhängigkeit der Anregungsleistungsdichten zu bestimmen (Abb. [2.8]).
hallo

2.6 Optische Polarisation und Valenzbandstruktur

Durch die Prozessierung und die Flip-Chip-Montage kann Licht nur durch die untere, unbewachsene Seite des Saphir-Substrates ausgekoppelt werden. Die Art und Weise der Lichtauskopplung hat einen bedeutenden Einfluss auf die Extraktionseffizienz und damit auf die externe Quantenffizienz(EQE). Durch die Geometrie bestimmt, hängt die Extraktionseffizienz maßgeblich vom Emissionsprofil ab, so dass Licht welches senkrecht zur Quantenfilmoberfläche abgestrahlt wird, die höchste Extraktionseffizienz aufweist. Die Valenzbandstrukturen von AlN und GaN unterscheiden sich hauptsächlich durch die unterschiedlich starke Kristallfeldaufspaltung [15]. Das Valenzband der Gruppe-III Nitride wird in drei Subbänder aufgespalten. Das Schwerlochband (engl. heavy hole, HH), das Leichtlochband (engl. light hole, LH) und das Kristallfeldaufspaltungsband (engl. split off, SO). In AlN hat die Kristallfeldenergie einen Wert von -217meV , so ist das SO-Band das oberste Valenzband und das HH- und LH-Band befinden sich etwa 220meV unterhalb des SO-Bandes [13]. Bei Raumtemperatur wird, nach der Fermi-Dirac-Verteilung, das oberste Band, das SO-Band, besetzt. Und das SO-Band, aus Zuständen des p_z bestehend, emittiert Licht, das transversal magnetisch (TM) polarisiert ist. Die strahlende Rekombination findet demnach überwiegend mit Elektronen und Löchern aus dem SO-Band statt und entsprechend ist das emittierte Licht TM polarisiert. In GaN ist das HH-Band das oberste Valenzband am γ -Punkt. Das SO-Band liegt mit 48meV unterhalb der Valenzbandkante und ist das tiefste Valenzband. Damit ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des HH- und LH-Bandes bei Raumtemperatur am größten. Das elektrische Feld des Lichtes ist senkrecht zur c-Kristallachse und wird durch Übergänge ins HH- oder LH-Band erzeugt [14], die aus Zuständen des p_x -und p_y -Orbitals bestehen. Bei strahlender Rekombination von Elektronen mit den Löchern im HH- und LH-Valenzband entsteht also überwiegend TE-polarisiertes Licht [14]. TM polarisiertes Licht kann nicht ausgekoppelt werden, da es nur in der x-y- Ebene (parallel zur Quantenfilmoberfläche) emittiert. Daraus resultierend sinkt die Extraktionseffizienz und damit die EQE. Bei $Al_xGa_{1-x}N$ kommt es mit steigendem Aluminiumgehalt zu einer kontinuierlichen Verschiebung der Valenzbänder, sodass die Lichtheission von hauptsächlich TE-polarisiertem Licht zu TM-polarisiertem Licht ändert. Der Wechsel findet theoretisch bei ca. 10% statt [7].

Kapitel 3

Aufbau

3.1 Photolumineszenzaufbau

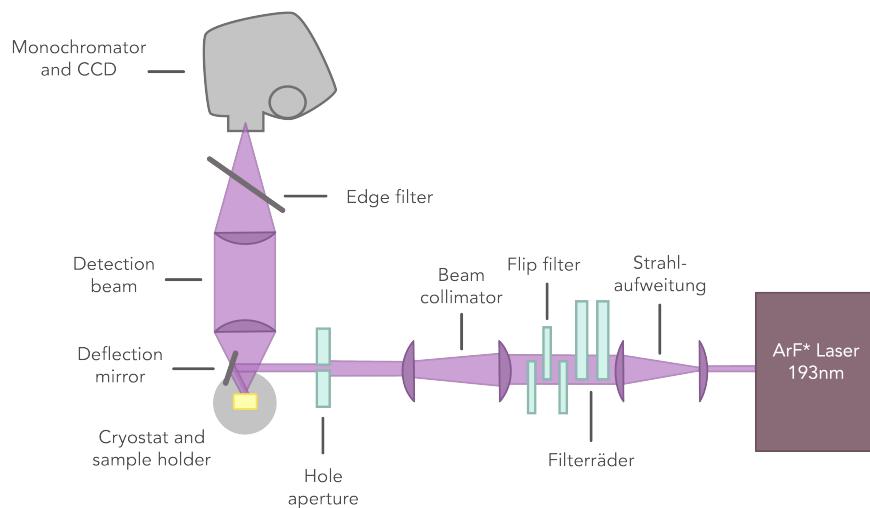


Abbildung 3.1

Für die experimentelle Untersuchung der UV-Photolumineszenz wurde der PL-Aufbau der AG-Kneissl verwendet, den Christoph Reich in der Zeit seiner Masterarbeit aufgebaut und während seiner Promotion erweitert hat [9]. Als

Anregungsquelle für die Photolumineszenz dient ein ArF-Excimerlaser mit einer Wellenlänge von 193 nm ($6,4\text{ eV}$). Mit dieser Wellenlänge ist er bestens geeignet für die Überbandanregung von Nitridhalbleitern. Des Weiteren bietet der Aufbau die Möglichkeit von temperaturabhängigen Untersuchungen von 5 K bis 300 K . Dies ist auch die Grundlage für die Bestimmung der Internen Quanteneffizienz (kurz IQE), die den Großteil der Thematik dieser Arbeit ausmachen wird.

Der Laser mit dem Modellnamen "Xantos" von der Firma Coherent bietet eine maximale Emissionsenergie von 5 mJ und die Frequenz ist bis zu 500 Hz einstellbar bei einer Pulsdauer von 5 ns . Durch interne Rückkopplung ist eine Energiestabilisierung möglich, die die Schwankung der Anregungsleistung auf 3 Prozent minimiert.

Die Ansteuerung des kompletten Messvorgangs erfolgt durch die Messsoftware von Christoph Reich, entwickelt in der grafischen Programmiersprache "LabView" von Texas Instruments. Mit dieser ist es möglich alle nötigen Einstellungen an Pumpen, Heizern, Laser, Filtern und Spektrometer vorzunehmen, um einen komplett automatisierten Messvorgang zu starten, der nur noch aus Sicherheitsbedingungen überwacht werden muss. Spektren können so mit verschiedenen Parametern wie Position, Anregungsleistungsdichte, Temperatur, Energiebereich und Integrationszeit aufgenommen werden und auch ein Gaswechsel ist möglich.

Beginnend vom Laser wird im ersten Schritt der Laserstrahl durch ein Linsensystem bestehend aus einer Zerstreuungs- und Sammellinse aufgeweitet. Dieser Schritt ermöglicht es, die Anregungsleistungsdichte zu verringern, um die am Aufbau beteiligten Gerätschaften nicht mit zu hohen Leistungen zu beschädigen. Damit sind insbesondere die Filterräder gemeint. Mit Hilfe der Filterräder ist es möglich, die Anregungsleistungsdichte 61 stufig zu variieren und somit leistungsdichteabhängige IQE Messungen zu machen. Als nächstes passiert der Strahl ein Linsensystem aus zwei Sammellinsen für eine Strahlverkleinerung. Vor dem Auftreffen des Strahles am Probenhalter im Kryostaten passiert der Strahl noch eine Lochblende. Sie dient der Entfernung achsennaher Strahlen und um bei Bedarf den Strahldurchmesser noch weiter zu verringern. Um den Strahl in Richtung des Probenhalters durch das Fenster im Kryostaten zu lenken, wird ein Spiegel mit einer dielektrischen Beschichtung benutzt. Der Laserstrahl durchdringt die Fenster des Kryostaten, diese sind speziell für eine hohe Transmission in diesem Wellenlängenbereich ausgelegt. Der Kryostat selbst ist horizontal und vertikal verfahrbar um die Messung mehrerer Proben im Probenhalter in einem Vorgang zu ermöglichen. Die Proben werden mit einem Kleber auf dem Probenhalter selbst befestigt, bevor dieser in den Kryostaten geschoben wird. Die Anregung der Proben mit dem Laserstrahl führt zur Proben spezifischen Emission von Licht. Diese wird von einer Linse im Strahlengang vor

dem Detektor eingefangen und von einer zweiten Linse eingefangen die auf den Monochromatorspalt fokussiert ist.

3.2 Bestimmung der Degradation des UV Quarzglases

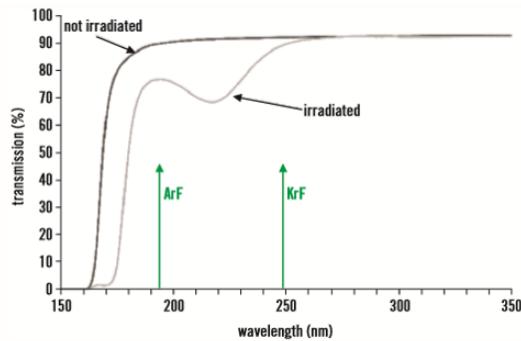


Abbildung 3.2: Vom Hersteller angegebene wellenlängenabhängige Transmission vor und nach Degradation durch Bestrahlung.

Da die Messung der Anregungsleistungsdichte erfolgt, bevor das Laserlicht die Probe durch das UV-Quarzglas im Kryostaten trifft, ist es wichtig den Transmissionsverlust zu bestimmen, um die realen Werte für die Anregungsleistungsdichte zu kennen (Die Anregungsleistungsdichte die bei der Probe ankommt). Der Kryostat besitzt vier Fenster, bestehend aus UV-Quarzglas, das besonders transparent im UV-Wellenlängen bereich ist. Durch diese Fenster dringt das Laserlicht in den Probenhalter ein. Von diesen Fenstern war und ist eines in dauerhaftem Gebrauch. Wie in Abb. 3.2 zu sehen ist, weisen die Fenster aber mit der fortlaufender Bestrahlung Degradation auf, so nimmt laut Hersteller durch Degradation die Transmission von 90 Prozent bis auf ca. 75 Prozent ab für eine Wellenlänge von 193 nm. Um nun den Transmissongrad zu bestimmen, wurde der Probenhalter aus dem Kryostat entfernt, damit das Laserlicht ungehindert durch zwei parallel liegende Fenster durchdringen kann, um so auch die Anregungsleistungsdichte des Laserlichtes nach durchdringen des letzten Fenster messen zu können. So konnte die Anregungsleistungsdichte vor dem Eintreten und nach dem Austreten in den Kryostaten bestimmt werden.

Dies wurde einmal bei den parallel liegenden unbenutzten Fenstern gemacht. Davon ausgehend, dass beide Fenster, da unbenutzt, den gleichen Transmissionsgrad haben, kann darauf zurückgeschlossen werden, dass ein unbenutztes Fenster einen Transmissionsgrad von 59 Prozent aufweist, was um ca. 10 Prozent von der Herstellerangabe abweicht, die aber nicht die Reflektion im Kryostaten mitberechnet. Um den Transmissionsgrad des benutzten Fensters

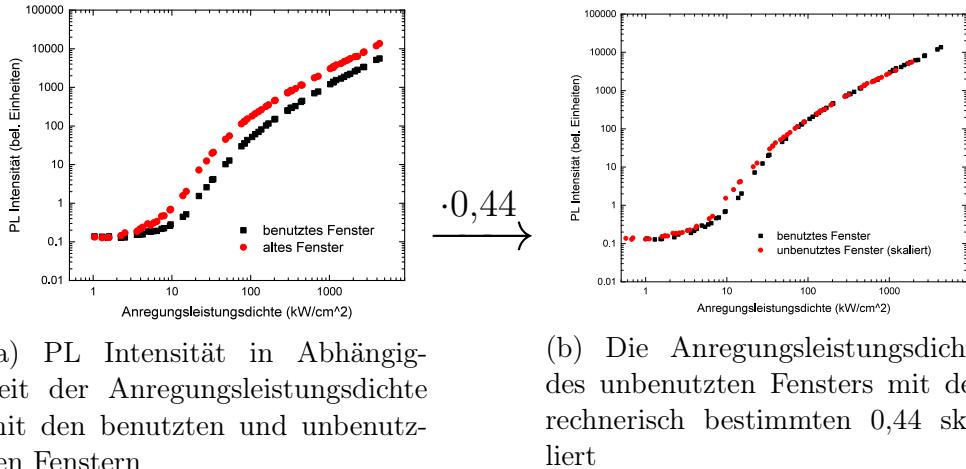


Abbildung 3.3

zu bestimmen, wurde die Transmission durch das benutzte Fenster und dem parallel liegenden unbenutzten Fenster gemessen. Mit dem Wissen, dass der Transmissionsgrad durch das unbenutzte Fenster bei 59 Prozent ($T_{unb} = 0,59$), kann die Transmission durch das benutzte Fenster auf 26 Prozent ($T_{ben} = 0,26$) runtergerechnet werden. Davon ausgehend, dass die Transmission bei höheren Wellenlängen (Emission) gleich und bei beiden Fenstern ähnlich ist,

$$F_{skal} = \frac{T_{ben}}{T_{unb}} = 0,44 \quad (3.1)$$

kann der Skalierungsfaktor mit für die Anregungsleistungsdichte auf 0,44 bestimmt werden. Was bedeutet, dass durch Degradation die Transmission auf 44 Prozent der ursprünglichen Transmission gesunken ist. Dies bestätigt sich auch durch die Gegenüberstellung in Abb. 3.3. Dies bedeutet, dass durch die zeitliche Degradation die Transmission auf 44 Prozent der ursprünglichen gesunken ist. Im Umkehrschluss bedeutet dies, dass von der Anregungsleistungsdichte durch die geringe Transmission der Fenster und Reflektion im und außerhalb des Kryostaten nur ca. 26 Prozent bei der Probe ankommen.

3.3 Erweiterung der Filterkombinationen

Im Zuge dieser Arbeit wurden für eine Erhöhung der Messpunkte und Verringerung von Rauschen bei der leistungsdichteabhängigen Messung der IQE die Anzahl der Filterkombination erhöht. Dafür wurden die alten zwei Filterräder durch drei neue ersetzt.

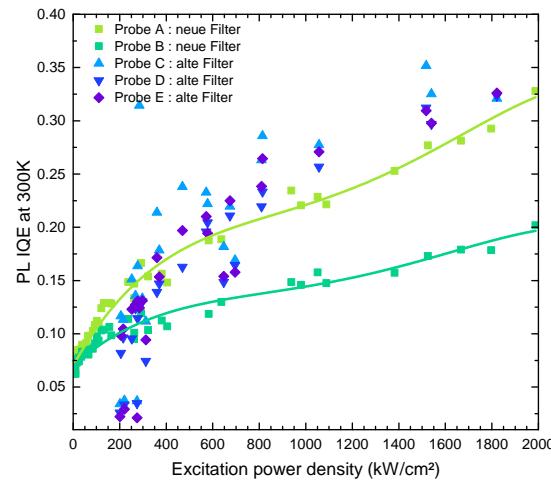


Abbildung 3.4: Vergleich der Messung von insgesamt 5 ähnlichen Proben. 3 Proben (blau) wurden mit dem alten Setup gemessen. 2 Proben (grün, durchgezogene Linie) wurden mit dem neuen Setup gemessen.

Durch die erhöhte Anzahl möglicher Filterkombinationen ist es möglich, statt nur 27 verschiedene Messpunkte 61 zu messen. Es ist deutlich sichtbar, dass speziell der Bereich der geringen Anregungsleistungsdichten viel besser aufgelöst werden kann (Abb: [3.4]). Und wie zu erwarten, sinkt die Intensität nicht mehr plötzlich ab einer Anregungsleistungsdichte von $200 \frac{kW}{cm^2}$ auf 0, sondern weist stattdessen eine Ordinate größer Null auf. Wie laut Gleichung 4.9 zu erwarten wäre. Somit hat die Erweiterung und Verbesserung der Filterräder, nicht nur mehr Präzision und weniger Rauschen als Ergebnis, sondern liefert nun auch physikalisch verwertbarere Werte.

Kapitel 4

Ergebnisse

4.1 Einfluss der Auger-Rekombination auf die IQE

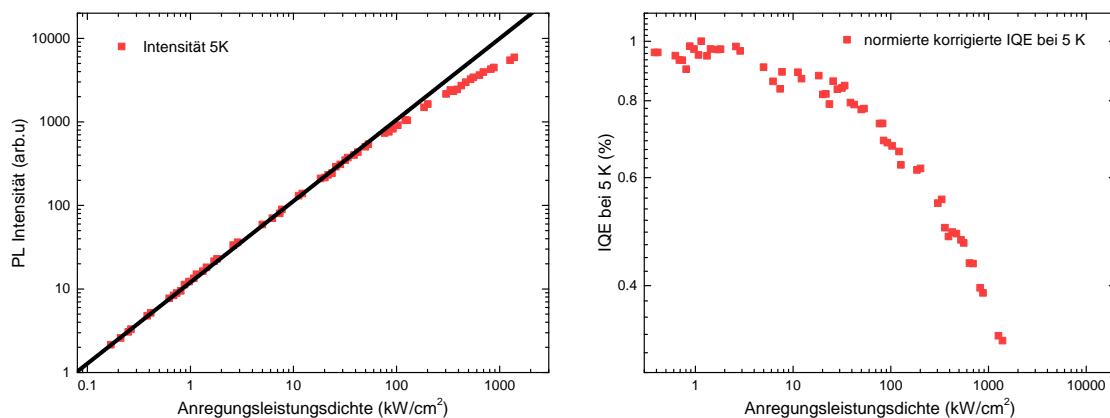


Abbildung 4.1: Die Grafik zeigt die integrierte Intensität bei Tieftemperatur (5K) in Abhängigkeit der Anregungsleistungsdichte. In doppeltlogarithmischer Darstellung müsste die integrierte Intensität wegen $R = B \cdot n^2$ linear steigen (schwarze Linie).

Abbildung 4.2: Die Grafik zeigt die normierte korrigierte IQE bei 5K nach Gleichung [4.1]

Das bisher benutzte Modell zur Bestimmung der PL-IQE ging davon aus, dass bei Tieftemperatur keine Auger-Rekombination (Gleichung) vorkommt, aber wie in Abb. [4.1] deutlich zu erkennen, nimmt der Verlauf der PL-Intensität in doppeltlogarithmischer Darstellung gegenüber der Anregungsleistungsdichte (die

direkt proportional zur Ladungsträgerdichte ist), im Bereich höherer Anregungsleistungen (entsprechend höheren Ladungsträgerdichten) deutlich ab und weist keinen linearen Verlauf mehr auf, den er aber durch eine allein quadratische Abhängigkeit (in doppeltlogarithmischer Darstellung linear) haben sollte. Dies zeigt, dass die IQE nicht, wie bisher angenommen, immer bei 100 Prozent liegt, sondern auch bei Tieftemperatur Anregungsleistungsdichte abhängig ist. Um dies zu berücksichtigen, wird nun die IQE bei 5K definiert als:

$$IQE_{corr}(T = 5K, P_{exc}) = \frac{\frac{I_{pl}(T, P_{exc})}{P_{exc}}}{I_{norm}} \quad (4.1)$$

mit dem Maximum der Verhältnisse von integrierter PL-Intensität zu Anregungsleistungsdichte als Normierungsfaktor über alle n Anregungsleistungsdichten

$$I_{norm} = \left\| \sum_{i=1}^n \frac{I_{pl}(T, P_{exc,i})}{P_{exc,i}} \right\|_{max} \quad (4.2)$$

Wobei $I_{pl}(P_{exc})$ die von der Anregungsleistungsdichte P_{exc} und Temperatur

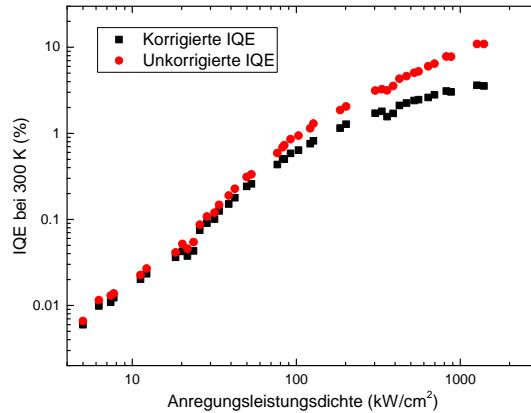


Abbildung 4.3: Die Grafik zeigt die korrigierte IQE bei 300K nach Gleichung [4.3]

$T = 5K$ abhängige integrierte PL-Intensität ist. Die integrierte PL-Intensität wird durch die Anregungsleistungsdichte dividiert und auf das Maximum normiert, so dass das Maximum der IQE bei 5K bei der geringsten Anregungsleistungsdichte mit der geringsten Auger-Rekombination liegen sollte. Um nun die IQE bei Raumtemperatur zu bestimmen, wird die nach dem alten Verfahren ermittelte IQE multipliziert mit den neu ermittelten Werten passend

zur Anregungsleistungsdichte.

$$IQE_{corr}(T, A_{exc}) = \frac{IQE(T, A_{exc})}{IQE(5K, A_{exc})} \cdot IQE_{corr}(5K, A_{exc}) \quad (4.3)$$

Die IQE bei $5K$ dient hierbei also als Skalierungsfaktor, der den Einfluss der Auger-Rekombination bei Raumtemperatur korrigiert. Somit fällt im Vergleich insbesondere auf, dass die Skalierung bei den kleinsten Anregungsleistungsdichten am geringsten Einfluss hat und mit steigender Anregungsleistungsdichte kubisch steigt, so dass die nach dem alten Verfahren ermittelten IQE-Werte bei höheren Anregungsleistungsdichten deutlich nach unten korrigiert werden müssen.
fssfsdf

4.2 Einfluss der Siliziumdotierung auf die IQE

Das ABC-Modell stellt aber nur eine Vereinfachung dar und berücksichtigt nicht alle vorkommenden Effekte wie beispielsweise Lokalisierung, Screening durch Ladungsträger und Dotierung. Der Effekt der Dotierung spielt dabei eine besonders wichtige Rolle, da eine Siliziumdotierung üblich in UV-Leds ist und einen großen Einfluss hat. Nach [12] kann gezeigt werden, dass die Ratengleichungen, mit der Annahme einer Dotierung für die die Radiative Rekombination sich ändert und soll nun hergeleitet werden:
newline Jeder dotierte oder undotierte Halbleiter hat zwei Arten von Ladungsträgern, Elektronen und Löcher. Im Gleichgewicht, bedeutet ohne externe Anregung durch Absorption von Licht oder Injektion von Elektronen, ist das Produkt von Elektronen- und Lochkonzentration eine konstante Größe.

$$n_0 \cdot p_0 = n_i^2 \quad (4.4)$$

Hierbei sind n_0 und p_0 die Elektron- und Lochkonzentration unter Gleichgewichtsbedingung und n_i damit die intrinsische Ladungsträgerkonzentration. Werden zusätzlich die durch Anregung erzeugten Ladungsträger betrachtet, so ist die Gesamtladungsträgerkonzentration gegeben als Summe der Anregungs- und Gleichgewichtsladungsträger.

$$n_{ges} = n_0 + n \text{ und } p_{ges} = p_0 + n \quad (4.5)$$

Hierbei sind n und p die Anregungsladungsträger. Die Anzahl der stattfindenden Rekombination zwischen Elektronen und Löchern sind direkt proportional zur Elektronen- und Ladungsträgerkonzentration, so gilt, $R \propto n \cdot p$. Mit einer Proportionalitätskonstante, wird Rekombinationrate pro Zeit und Volumen definiert als

$$R = -\frac{dn_{ges}}{dt} = -\frac{dp_{ges}}{dt} = B \cdot n_{ges} \cdot p_{ges} \quad (4.6)$$

Weil Elektronen und Löcher bei Anregung paarweise erzeugt werden und verschwinden (durch Rekombination), gilt

$$n(t) = p(t) \quad (4.7)$$

Die radiative Rekombinationrate wird dann mit $p_0 = 0$ und Gleichung [4.7] zu

$$\begin{aligned} R_{rad} &= B \cdot (n_0 + n) \cdot (p_0 + p), \\ R_{rad} &= B \cdot (n_0 + n) \cdot (n), \\ R_{rad} &= B \cdot n^2 \cdot n \cdot n_0 \end{aligned} \quad (4.8)$$

Dabei beschreibt n_0 die Ladungsträgerkonzentration durch die Siliziumdotierung. Somit wird die IQE zu:

$$IQE = \frac{B \cdot n^2 + B \cdot n \cdot n_0}{A \cdot n + B \cdot n^2 + B \cdot n \cdot n_0 + C \cdot n^3} \quad (4.9)$$

Und hat einen enormen Einfluss auf die Ordinate, wie in Abb. [??] zu sehen ist.

4.3 Untersuchung optisch gepumpter Laserstrukturen auf unterschiedlichen Templates

Dieses Kapitel widmet sich der Untersuchung zweier Probenreihen von optisch gepumpten Laserstrukturen, die aus Rezepten aus zwei unterschiedlichen Serien stammen. Die beiden Serien unterscheiden sich im wesentlichen dadurch, dass sie mit(Serie 2) und ohne Übergitter(Serie 1) gewachsen wurden. Die beiden Serien zeichnen sich durch eine dreifach Heterostruktur aus[1]. Diese setzt sich zusammen aus zwei 5nm dicken und siliziumdotierten $Al_{0.8}Ga_{0.3}N$ -Barrieren und drei 2.2nm dicken $Al_{0.56}Ga_{0.44}N$ QWs zusammen mit Die Proben weisen noch Unterschiede in ihren Substraten auf, so sind zwei Proben der Serie 1 auf AlN-Bulk zweier unterschiedlicher Hersteller (HexaTech, IKZ) gewachsen und alle anderen Proben auf ELO AlN/Sapphire mit jeweils 3 unterschiedlichen OffcutWinkeln.

Tabellarisch sieht die Zusammenstellung wie folgt aus:

Serie 1			Serie 2		
Name	offcut	Template	Name	offcut	Template
A	0.1°m	Bulk(IKZ)	A	0.2°m	ELO
B	0.1°m	ELO	B	0.1°m	ELO
C	0.1°m*	ELO	C	0.1°m*	ELO
D	0.2°m	ELO			
E	0.1°m	Bulk(Hexatech)			

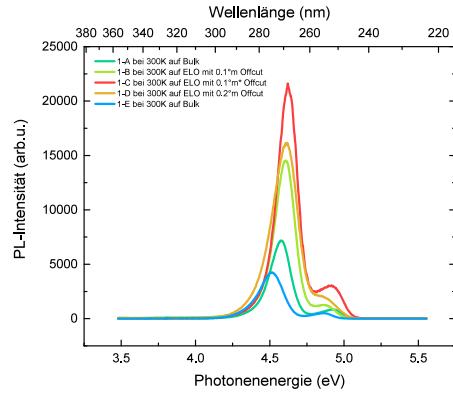


Abbildung 4.4: PL-Spekturen der Proben ohne Übergitter

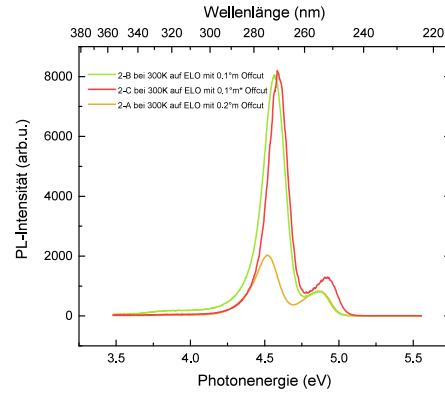


Abbildung 4.5: PL-Spekturen der Proben mit Übergitter

Anhand der unterschiedlichen Intensitäten der Proben bei Raumtemperatur sind keine Rückschlüsse zur Effizienz möglich. Das liegt zum einen daran, dass die Proben nicht alle auf einen Schlag bei gleichen Bedingungen untersucht wurden und an der Art des Messaufbaus an sich.

Literaturverzeichnis

- [1] O. Ambacher, J. Majewski, C. Miskys, M. H. A. Link, M. Eickhoff, M. Stutzmann, F. B. Matthias, V. Fiorentini, V. Tilak, B. Schaff, and L. Eastmann. Pyroelectric properties of al(in)gan/gan hetero- and quantum well structures. *Journal of Physics: Condensed Mater*, 82:075208(14:3399), 2002.
- [2] Z. Bryan, I. Bryan, J. Xie, S. Mita, Z. Sitar, and R. Collazo. High internal quantum efficiency in algan multiple quantum wells grown on bulk aln substrates. *Applied Physics Letters*, 106(14):142107, 2015.
- [3] C. Buchheim. *Dielektrische Funktion und elektrooptische Eigenschaften von (Al,Ga)N/GaN - Heterostrukturen*. PhD thesis, Technische Universität Ilmenau, 2010.
- [4] Q. Dai, M. F. Schubert, M. H. Kim, J. K. Kim, E. F. Schubert, D. D. Koleske, M. H. Crawford, S. R. Lee, A. J. Fischer, G. Thaler, and M. A. Banas. Internal quantum efficiency and nonradiative recombination coefficient of gainn/gan multiple quantum wells with different dislocation densities. *Applied Physics Letters*, 94(11):111109, 2009.
- [5] M. Feneberg, R. A. R. Leute, B. Neuschl, K. Thonke, and M. Bickermann. High-excitation and high-resolution photoluminescence spectra of bulk aln. *Phys. Rev. B*, 82:075208(2), 2000.
- [6] S. R. Lee, A. F. Wright, M. H. Crawford, G. A. Petersen, J. Han, and R. M. Biefeld. The band-gap bowing of algan alloys. *Applied Physics Letters*, 74(22):3344–3346, 1999.
- [7] J. E. Northrup, C. L. Chua, Z. Yang, T. Wunderer, M. Kneissl, N. M. Johnson, and T. Kolbe. Effect of strain and barrier composition on the polarization of light emission from algan/aln quantum wells. *Applied Physics Letters*, 100(2):021101, 2012.

- [8] J. Piprek. *Nitride semiconductor devices: principles and simulation*. John Wiley & Sons, 2007.
- [9] C. Reich. *Photolumineszenzspektroskopie an (In)AlGaN-Heterostrukturen für UV-Emitter*. PhD thesis, Technische Universität Berlin, 2011.
- [10] C. Reich. Iqe quantification of nitride semiconductors:influence of the qw thickness on the optical properties of deep uv light emitters. Seminar, 2017.
- [11] W. Risk, T. Gosnell, and A. Nurmikko. *Compact Blue-Green Lasers*. Cambridge studies in modern optics. Cambridge University Press, 2003.
- [12] E. F. Schubert. *Light Emitting Diodes, Second Edition*. Cambridge University Press, 2006.
- [13] A. Sedhain, J. Y. Lin, and H. X. Jiang. Valence band structure of aln probed by photoluminescence. *Applied Physics Letters*, 92(4):041114, 2008.
- [14] Y. Taniyasu and M. Kasu. Origin of exciton emissions from an aln p-n junction light-emitting diode. *Applied Physics Letters*, 98(13):131910, 2011.
- [15] S. Wei and A. Zunger. Valence band splittings and band offsets of aln, gan, and inn. *Applied Physics Letters*, 69(18):2719–2721, 1996.