

Nanocharakterisierung optischer und struktureller Eigenschaften von GaN-basierten Nano- und Mikrosäulen

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)

genehmigt durch die Fakultät für Naturwissenschaften
der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

von: Dipl.-Phys. Marcus Müller
geb. am: 05.05.1985 in Magdeburg

Gutachter: Prof. Dr. Jürgen Christen
Prof. Dr. Janina Maultzsch

eingereicht am: 24.10.2017
verteidigt am: 31.08.2018

Dipl.-Phys. Marcus Müller:

*Nanocharakterisierung optischer und struktureller Eigenschaften
von GaN-basierten Nano- und Mikrosäulen*

Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

Abstract

Semiconductor nanorods are promising candidates to achieve highly efficient optoelectronic devices due to a high crystal quality and the unique three-dimensional geometry, which e. g. increases the effective light emitting area of the device up to an order of magnitude in comparison to conventional planar heterostructures.

This thesis represents a systematic investigation of the optical, structural and compositional properties of GaN based nano- and microrods by cathodoluminescence (CL) spectroscopy directly performed in a scanning transmission electron microscope (STEM) at liquid helium temperature. The conducted experiments establish a unique basis to correlate luminescence imaging with structural and chemical mapping of three-dimensional structures with nanometer-scale resolution. In this context, the optical and crystal properties of growth domains, the formation of defects, the charge carrier transport as well as alloy fluctuations inside the active zone have been investigated.

In the first part, a comparative optical-structural nano-characterization of GaN nanorods grown by molecular beam epitaxy in a selective area approach is presented. To probe selected nanorods in cross-section, an optimized nano-preparation method is applied by a focused ion beam preparation for the first time, which preserves the optical properties. The STEM-CL analysis reveals a high crystal quality for most of the nanorods, resulting in an intense excitonic emission. The influence of non-radiative surface recombination and Fermi-level pinning on the spatial luminescence distribution is discussed. Furthermore, proof is given that the formation of isolated basal plane stacking faults (BSF) within the nanorods leads to an effective capture process of the excess carriers by these defects. Addressing individual defects, the emission lines of the intrinsic BSF type I_1 and I_2 as well as the extrinsic BSF are identified.

In contrast, the growth of Si-doped GaN microrods by metal organic chemical vapor phase epitaxy yields a high density of point defects, shown by a generally low quantum efficiency as well as the occurrence of yellow luminescence. Performing STEM-CL on an InGaN/GaN core-shell microrod LED, the local recombination mechanisms of the different growth domains are directly visualized in cross-section. It is evidenced, that the coaxial shell layers possess an increased crystal and optical quality in comparison to the highly Si-doped GaN core. However, different growth rates and indium concentration on the non- and semi-polar facets lead to strong wavelength shift of the quantum well. The charge carrier transport inside the coaxial double heterostructure is quantitatively determined by evaluating the CL intensity distribution. Here, a longer capture length of the generated excess carriers into the quantum well is found in the Si-doped GaN layer in comparison to the Mg-doped GaN shell, indicating a poor crystal quality of the p-GaN. These findings are confirmed by the presence of defect related blue luminescence in the p-GaN layer.

Finally, the reason for the inhomogeneous emission of InGaN quantum wells grown coaxially on microrods with high aspect-ratios is investigated. It is proved that an increased quantum well thickness and indium concentration yields to a strong wavelength shift along single side facets. The effect is attributed to a reduced gas-diffusion vertical along the microrod. Additionally, analytical Z-contrast imaging evidences the formation of Indium-rich regions with a size of several nanometers within the quantum well. These short range indium variations result in strong potential fluctuations of the InGaN quantum well as directly visualized by nanometer-scale resolved CL mappings.

Kurzfassung

Die dreidimensionale Geometrie und die hohe Kristallqualität von Halbleiter-Nanosäulen ermöglichen die Entwicklung neuartiger, effizienter optoelektronischer Bauelemente mit einer bis zu einer Größenordnung gesteigerten aktiven Leuchtfläche gegenüber zweidimensionalen Heterostrukturen.

In der vorliegenden Arbeit wurden die optischen, strukturellen und chemischen Eigenschaften von GaN-basierten Nano- und Mikrosäulen durch das Verfahren der Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop (STEM-CL) bei Flüssig-Helium-Temperatur charakterisiert. Unter Verwendung dieser hochauflösenden Methodik wurde eine direkte Korrelation der Lumineszenzeigenschaften mit der kristallinen Realstruktur dieser dreidimensionalen Halbleiterbauelemente auf nanoskopischer Skala herausgearbeitet. Bedeutende Erkenntnisse wurden über die semi- und non-polaren Wachstumsdomänen, die Bildung von Defekten sowie den Ladungsträgertransport und Kompositionsfluktuationen innerhalb der aktiven Zone erlangt.

Im ersten Teil der Arbeit wird gezielt auf die Nanocharakterisierung von orts-selektiv, molekularstrahl-epitaktisch gewachsenen GaN-Nanosäulen eingegangen. Für die Analyse einzelner Nanosäulen wurde eine optimierte Anwendung einer Ionenfeinstrahlanlage durch die Verringerung der Oberflächenschädigung zur Nanopräparation erfolgreich etabliert. Die Ergebnisse der STEM-CL-Mikroskopie zeigen, dass die hohe Kristallqualität der GaN-Nanosäulen in einer intensiven, exzitonischen Emission resultiert. Die Auswirkung von nicht-strahlender Oberflächenrekombination und Fermi-Level-Pinning auf die lokale Lumineszenzverteilung wird im Querschnitt der Nanosäulen visualisiert. Darüber hinaus belegen die hochauflösenden Lumineszenz-Untersuchungen, dass einzelne Basalflächenstapelfehler (BSF) in den Nanosäulen als effektive Rekombinationszentren dienen. Die charakteristische Emission vom BSF Typ I_1 , I_2 und vom extrinsischen BSF wird eindeutig identifiziert und lokal den Defekten zugeordnet.

Im zweiten Abschnitt wird gezeigt, dass das Wachstum von Si-dotierten GaN-Mikrosäulen mittels metallorganischer Gasphasenepitaxie hingegen zu einer hohen Dichte an Punktdefekten führt. Tieftemperatur STEM-CL-Untersuchungen am Querschnitt von InGaN/GaN-Mikrosäulen belegen eine verbesserte kristalline und optische Qualität der Mantel-Schichten gegenüber dem n-dotierten GaN-Kern. Jedoch führen verschiedene Wachstumsraten und Indiumkonzentrationen der aktiven Zone auf den semi- und non-polaren Oberflächen lokal zu einer spektralen Verschiebung der Quantenfilm-Emission. Die Einfanglänge der generierten Überschussladungsträger zum koaxialen InGaN-Quantenfilm einer Mikrosäulen-LED wird durch die Analyse der CL-Intensitätsverteilung quantitativ bestimmt. Als Folge einer schlechteren Materialqualität tritt eine niedrigere Einfanglänge der Ladungsträger in der Mg-dotierten GaN-Schicht im Vergleich zur Si-dotierten GaN-Schicht auf.

Im Weiteren wird die spektral und örtlich inhomogene Emission von koaxialen InGaN-Quantenfilmen auf Mikrosäulen mit hohem Aspekt-Verhältnis analysiert. Hier wird nachgewiesen, dass eine Zunahme der Quantenfilmdicke und Indiumkonzentration zu einer spektralen Rotverschiebung der Quantenfilm-Lumineszenz entlang der non-polaren Mikrosäulen-Facette führt. Wesentliche Ursache hierfür ist eine reduzierte Gasphasen-Diffusion vertikal entlang der Mikrosäulen in Richtung des Substrats. Mittels analytischer Z-Kontrastabbildung werden Kompositionsvariationen in der aktiven Zone quantifiziert. Die lokalen Potentialfluktuationen werden durch STEM-CL-Mikroskopie auf Nanometer-Skala direkt visualisiert.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all jenen danken, die mich bei meiner Forschung durch größere oder kleinere Hilfestellungen unterstützt und so zum Entstehen der vorliegenden Arbeit beigetragen haben. Die große Anzahl von Kolleginnen und Kollegen sowie Freunden, die durch ihre Arbeit und Diskussionen wertvolle Beiträge geleistet haben, macht es unmöglich, jeden Einzelnen namentlich zu erwähnen. Mein ehrlicher Dank ist ihnen allen jedoch gewiss.

Allen voran danke ich Herrn Prof. Dr. J. Christen für die Möglichkeit an einer einzigartigen STEM-CL-Messapparatur an der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg forschen zu können. Seine ausgezeichnete Betreuung und die wissenschaftlichen Diskussionen haben stets neue Impulse für meine Forschungsaktivitäten gesetzt. Nicht zuletzt möchte ich Ihm dafür danken, dass er zahlreiche Konferenzbesuche und Forschungsaufenthalte ermöglicht und unterstützt hat.

Bei Herrn Dr. F. Bertram möchte ich mich ebenfalls für seine fachliche Betreuung und Unterstützung im Bereich Kathodolumineszenz-Spektroskopie bedanken. Er stand mir jederzeit mit Rat und Tat zur Verfügung und hat mit seinem Engagement zur Fertigstellung dieser Arbeit beigetragen.

Ein besonderer Dank gilt Herrn Dr. P. Veit für die Einweisung und Anleitung am Transmissions-elektronenmikroskop sowie für seine beständige Unterstützung und Motivation. Vor allem seine langjährige Erfahrung auf dem Gebiet der Elektronenmikroskopie war die Grundlage für die erzielten Messergebnisse.

Für das angenehme Arbeitsklima und die ständige Hilfsbereitschaft sei der gesamten Arbeitsgruppe für Festkörperphysik gedankt. Mein Dank gilt insbesondere meinem langjährigen STEM-CL-Kollegen G. Schmidt und meinem Diplomanden B. Max für die gemeinsamen Experimente, die konstruktiven, fachlichen Diskussionen und kritischen Fragestellungen. Herrn S. Metzner und Herrn M. Müller möchte ich für die Unterstützung bei so vielen SEM-CL-Untersuchungen danken. Für die zahllosen FE-REM-Aufnahmen der Mikrosäulenwälder bedanke ich mich bei Herrn Dr. T. Hempel.

Ohne die hervorragende Probenpräparation von Frau S. Petzold und Frau P. Kremz wären die STEM-CL-Experimente gar nicht erst möglich gewesen, weshalb ich mich bei Ihnen für Ihren mühevollen Einsatz bedanken möchte. Außerdem danke ich Frau O. August, Frau A. Dempewolf und Herrn S. Sterling für die praktische und organisatorische Unterstützung bei zahlreichen Experimenten.

Herrn Prof. Dr. A. Strittmatter, Herrn Prof. Dr. A. Dadgar und der gesamten Arbeitsgruppe Halbleiterepitaxie möchte ich für die vielseitige wissenschaftliche Zusammenarbeit und den fachlichen Austausch danken. Beides verhalf mir zu einem tiefergehenden physikalischen Verständnis.

Die unvergesslichen Kaffeepausen, die Kameradschaft, die gemeinsamen Forschungsreisen und so manches Feierabendbier mit den Kollegen G. Schmidt, J. Hennig, C. Berger, M. Müller, S. Neuge-

bauer und C. Karbaum haben immer geholfen physikalische Probleme aus einem neuen Blickwinkel zu betrachten und neue Ideen zu entwickeln, wofür ich mich herzlich bedanken möchte.

Zu der Bearbeitung des Themas gehören natürlich auch hochwertige und interessante Probenmaterialien, die zur Charakterisierung lohnen. In diesem Zusammenhang bedanke ich mich bei Frau Prof. Dr. A. Rizzi von der Georg-August-Universität Göttingen und Ihren Mitarbeitern Dr. A. Urban und Dr. J. Malindretos für die Bereitstellung von dreidimensionalen GaN-Nanosäulen-Proben. Für die systemischen Probenserien von InGaN/GaN-Mikrosäulen-LEDs und eine hervorragende wissenschaftliche Kooperation bin ich besonders Herrn Dr. M. Strassburg und seinen Mitarbeitern Dr. A. Avramescu, Dr. T. Schimpke und Dr. M. Mandl von OSRAM Opto Semiconductors verbunden. Jedoch haben auch eine Vielzahl von Untersuchungen an all jenen Proben zum Gesamtverständnis beigetragen, die nicht in dieser Arbeit dargestellt werden konnten, aber trotzdem nicht unerwähnt bleiben sollen. Besonders bedanken möchte ich mich hier bei den Gruppen von Prof. Dr. H. Morkoc (Virginia Commonwealth University), Prof. Dr. F. Scholz (Universität Ulm), Prof. Dr. E. Calleja, Prof. Dr. N. Grandjean (École polytechnique fédérale de Lausanne) und Dr. G. Koblmüller (Walter Schottky Institut).

Herrn Prof. Rosenauer und seine Arbeitsgruppe von der Universität Bremen haben durch ihre analytischen HAADF-Untersuchungen großen Anteil an den Ergebnissen dieser Arbeit. Vor allem Herrn Dr. F. Krause sei für die vielen wissenschaftlichen Gespräche gedankt.

Ich danke der Arbeitsgruppe von Herrn Dr. A. Davydov vom National Institute of Standards and Technology, die mich während meines Forschungsaufenthalts herzlich aufnahm und mir ermöglichte, meinen Horizont auf vielfältige Weise zu erweitern.

Außerdem möchte ich C. Karbaum, E. Bauske, C. Seidel und M. Steinhorst für das Korrekturlesen der Arbeit danken.

Zum Schluss geht ein ganz großer Dank an meine Familie, im Besonderen an meine Eltern, meine Großeltern und meinem Bruder, für die Unterstützung, Aufmunterung und Motivation während der gesamten Promotionszeit. Der größte Dank gilt meiner Verlobten für ihren unendlich großen Rückhalt und einem erfüllten Leben abseits der Arbeit.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen: Kristallstruktur, Lumineszenz, Wachstum	5
2.1	Kristallographische Struktur der Gruppe-III-Nitrid-Halbleiter	5
2.2	Polarisationsfelder in nitridischen Halbleitern	7
2.2.1	Spontane Polarisation	8
2.2.2	Piezoelektrische Polarisation	10
2.2.3	Quantum Confined Stark Effekt	11
2.3	Lumineszenzprozesse in III-N-Halbleitern	12
2.4	Wachstum von GaN-basierten Nano- und Mikrosäulen	16
2.4.1	Wachstumsmodi von Nano- und Mikrosäulen	16
2.4.2	InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED	19
2.4.3	Epitaxieverfahren für GaN-basierte Nano- und Mikrosäulen	21
3	Experimentelle Methodik zur hochortsaufgelösten Lumineszenz-Spektroskopie	23
3.1	Nanostrukturen: Neue Herausforderungen an die Ortsauflösung der Kathodolumineszenz-Spektroskopie	23
3.2	Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rasterelektronenmikroskop	26
3.3	Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop	30
3.3.1	Aufbau und Funktionsweise des Transmissionselektronenmikroskops	32
3.3.2	Abbildungsmodi im STEM	35
3.3.3	In-situ Kathodolumineszenz-Spektroskopie im STEM	38
3.3.4	Dünnschicht-Präparation von Nanostrukturen für die STEM-CL	46
4	Korrelation der optischen und strukturellen Eigenschaften von GaN-Nanosäulen	53
4.1	Selektives Zonenwachstum und Morphologie von GaN-Nanosäulen	53
4.2	Rekombinationsprozesse in dreidimensionalen GaN-Nanosäulen	56
4.3	Hochortsaufgelöste Charakterisierung einzelner GaN-Nanosäulen mittels STEM-CL	63
4.3.1	Direkte Korrelation der optischen und strukturellen Eigenschaften im Querschnitt	63
4.3.2	Exzitronische Rekombination in defektfreien Nanosäulen - Einfluss von freien Oberflächen	68
4.3.3	Untersuchung der Lumineszenzeigenschaften von einzelnen Basalflächenstapel- fehlern	74
4.4	Rekombinationskinetik von GaN-Nanosäulen	84
4.5	Zusammenfassung	87

5	Mikroskopische Lumineszenzuntersuchungen an InGaN/GaN-Mikrosäulen-LEDs	89
5.1	Si-dotierte GaN-Mikrosäulen	89
5.1.1	Selektives MOVPE-Wachstum und strukturelle Charakterisierung	89
5.1.2	Mikroskopische Lumineszenzverteilung	92
5.2	Koaxiale InGaN/GaN Mikrosäulen	98
5.2.1	Mikroskopische Analyse der morphologischen und optischen Eigenschaften	98
5.2.2	Einfluss der Facetten-Orientierung auf die InGaN-Quantenfilm-Lumineszenz	101
5.3	InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED	108
5.3.1	Elektronenmikroskopische Untersuchungen der koaxialen Mikrosäulen-LED	108
5.3.2	Mikroskopische Korrelation der Lumineszenzeigenschaften mit der kristallinen Realstruktur	112
5.3.3	Auswirkung der Wachstumsdomänen auf die LED	115
5.3.4	Ladungssträgertransport in den Mantel-Schichten	123
5.4	Zusammenfassung	126
6	Analyse von Lumineszenz- und Kompositionsinhomogenitäten in koaxialen InGaN/GaN-Mikrosäulen	129
6.1	Auswirkung von Schichtdicken- und Kompositionsgradienten auf die Quantenfilm-Lumineszenz	131
6.1.1	Ortsaufgelöste Charakterisierung der optischen Eigenschaften	131
6.1.2	Mikroskopische Korrelation der Komposition, Schichtdicke und Lumineszenz des Quantenfilms	135
6.2	Analyse von Potentialfluktuationen im InGaN-Quantenfilm	142
6.2.1	Z-Kontrastabbildung des InGaN-Quantenfilms	145
6.2.2	Visualisierung von nanoskopischen Potentialfluktuationen mittels STEM-CL	147
6.3	Zusammenfassung	154
7	Zusammenfassung und Ausblick	157
	Literaturverzeichnis	178
	Abkürzungsverzeichnis	179

1 Einleitung

Die Entwicklung der ersten blauen Leuchtdiode (engl. *light emitting diode* — LED) auf Basis des Verbindungshalbleiters Galliumnitrid (GaN) im Jahr 1989 [1] hat die Beleuchtungstechnologie grundlegend revolutioniert und neue, weitreichende Anwendungen in der Unterhaltungselektronik, optischen Datenspeicherung, Sensorik sowie für die Datenübertragung ermöglicht. Diese herausragende Pionierarbeit von Isamu Akasaki, Hiroshi Amano und Shuji Nakamura wurde 2014 mit dem Physik-Nobelpreis geehrt [2]. Aufbauend auf diesen Forschungsergebnissen hat eine sukzessive Weiterentwicklung auf dem Gebiet der Optoelektronik stattgefunden, sodass intelligente und stromsparende Beleuchtungssysteme auf Basis von Halbleitern den weltweiten Energieverbrauch bis zum Jahr 2020 um 10% – 15% reduzieren können [3]. Moderne leuchtstarke LEDs erreichen heutzutage interne Wirkungsgrade von bis zu 80% [4] und Lichtausbeuten von bis zu 300 lm/W [5]. Gleichzeitig ist es möglich, mit den ternären Verbindungshalbleitern InGaN und AlGaN einen weiten Spektralbereich vom Sichtbaren bis zum Ultravioletten Licht abzudecken [6–11].

Grundlage für konventionelle LEDs bildet eine planare Folge funktioneller Schichten von n-dotiertem GaN, einer aktiven Zone aus Quantenfilmen und p-dotiertem GaN. Trotz der großen technischen Fortschritte in der Herstellung dieser Heterostrukturen limitieren intrinsische Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride die Effizienz optoelektronischer Bauelemente. So führen spontane und piezoelektrische Polarisationsfelder entlang der *c*-Richtung zu einer Verringerung der effektiven Bandlücke und zu einer reduzierten Effizienz für strahlende Ladungsträgerrekombination [12, 13]. Hohe Versetzungsdichten ($> 10^9 \text{ cm}^{-2}$), bedingt durch die Heteroepitaxie auf Fremdsubstrate, beeinflussen die Ladungsträgerbeweglichkeiten, Lebensdauern und elektrische Leitfähigkeit negativ [14, 15].

Das bedeutsamste Problem für planare LED-Strukturen bildet der sogenannte „Efficiency-Droop“, der eine Abnahme der Quanteneffizienz mit zunehmender Stromdichte bewirkt [16–18]. Die dominante Ursache für den „Efficiency-Droop“ ist ein Dreiteilchen-Prozess über die nicht-strahlende Auger-Rekombination [19].

Ein alternatives Konzept zu den planaren LEDs bieten dreidimensionale Leuchtdioden auf Grundlage von Halbleiternanotechnologie [20–27]. Basis für diese Nanobauelemente ist das vertikale Wachstum von dreidimensionalen Säulen auf maskierten Oberflächen mit einem Durchmesser von wenigen Nanometern bis zu einigen Mikrometern. In diesem „Core-Shell“-Konzept umgeben die aktive Zone und das p-dotierte GaN die n-dotierte Säule als Mantel-Schichten. Die schematischen Aufbauten einer planaren und einer dreidimensionalen LED sind in Abb. 1.1 vergleichend gegenübergestellt. Durch das Wachstum von Säulen mit hohem Aspekt-Verhältnis (Verhältnis von Höhe zu Durchmesser) kann die optisch aktive Leuchtfläche im Vergleich zur planaren Struktur um ein Vielfaches gesteigert werden.

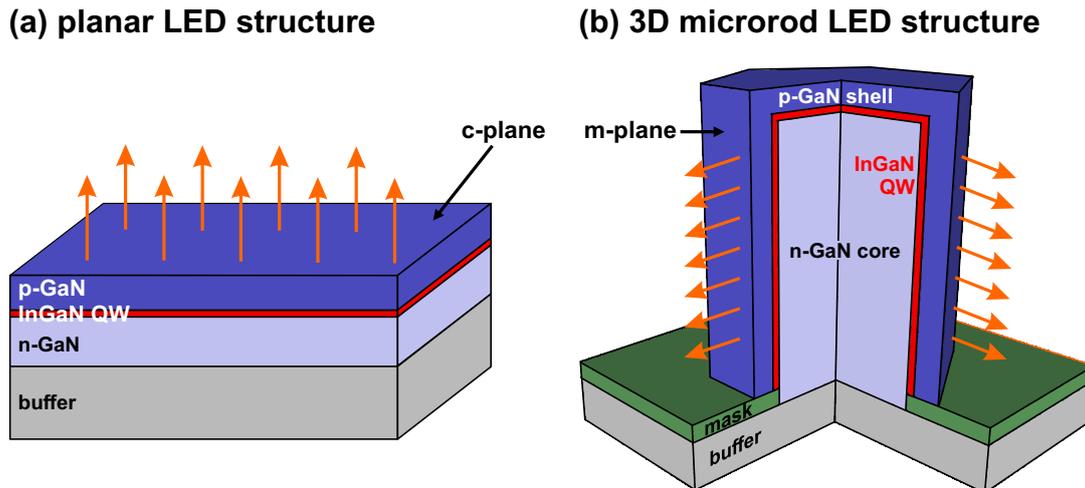


Abbildung 1.1: Schematischer Aufbau einer (a) konventionellen c-planaren LED gegenüber einer (b) dreidimensionalen Nanosäulen-LED mit non-polaren Seitenfacetten.

Demzufolge ist bei gleichem Gesamtstrom die Stromdichte in der aktiven Zone der 3D-LED deutlich niedriger als in konventionellen LEDs, sodass der negative Einfluss der Auger-Rekombination und dem damit verbundenen „Efficiency-Droop“ verringert werden kann. Neben der vergrößerten Leuchtfläche weisen Nano- und Mikrosäulen-LEDs noch weitere Vorteile auf: Die dreidimensionalen Nanostrukturen besitzen nur eine kleine Kontaktfläche zum unterliegenden Puffer, wodurch nur vereinzelt Versetzungen in die Strukturen propagieren. Diese Versetzungen wiederum knicken aus energetischen Gründen im untersten Bereich der Säule zu den Oberflächen ab [28], sodass die Defektdichte erheblich verringert wird. Das Wachstum der aktiven Zone auf den non- und semi-polaren Seitenflächen der Säulen reduziert zudem die Auswirkung von Polarisationsfeldern, sodass das Überlappintegral der Elektron- und Lochwellenfunktion zunimmt und die strahlende Lebensdauer kürzer wird.

Nanosäulen-basierte Heterostrukturen ermöglichen darüber hinaus auch neue Funktionalitäten, wie zum Beispiel die Anwendung für dreidimensionale Feldeffekttransistoren [29–31], die direkte Positionierung einzelner Quantenpunkte für die Quanteninformationsübertragung [32–34] oder die Herstellung von Lasern auf Submikrometer-Skala [35–37].

Voraussetzung für eine hohe Effizienz von Nanosäulen-basierten Bauelementen sind vor allem mikroskopische Aspekte, wie die Homogenität im selektiven Wachstumsprozess, eine hohe Kristallqualität der Säulen, gute elektrische Leitfähigkeit durch n- und p-Dotierung der einzelnen coaxialen Schichten, eine hohe Grenzflächengüte, sowie die Vermeidung von lokalen Kompositionsinhomogenitäten. So ist eine systematische Nanocharakterisierung von einzelnen Nano- und Mikrosäulen entscheidend für das Verständnis des zugrundeliegenden Wachstumsmechanismus und der fundamentalen physikalischen Eigenschaften dieser Strukturen.

Die Größendimension dieser neuen Nanobauelemente stellt konsequenterweise Herausforderungen an die entsprechende Charakterisierung der optischen, elektronischen, chemischen und strukturellen Eigenschaften dar. Etablierte Halbleiter-Analysemethoden wie Photolumineszenz-Spektroskopie, Hall-Messungen und Röntgendiffraktion sind auf Grund der geringen örtlichen Auflösung nicht geeignet, um einzelne Nano- und Mikrosäulen zu untersuchen.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Kombination von Rastertransmissionselektronenmikroskopie mit gleichzeitiger Kathodolumineszenzdetektion (engl. *scanning transmission electron microscopy cathodoluminescence* — STEM-CL) bei Tieftemperatur zur systematischen Untersuchung der Materialeigenschaften von dreidimensionalen Nanostrukturen einzusetzen und das zukünftige Potential des Verfahrens für die Nanotechnologie aufzuzeigen. Diese Messmethodik erlaubt einen direkten Zusammenhang zwischen lokalen Lumineszenzprozessen, der kristallinen Realstruktur und der chemischen Zusammensetzung auf Nanometer-Skala herzustellen [38–43]. Die spektroskopische Analyse liefert hierbei Informationen über lokale Variationen der Bandlückenenergie, Fluktuationen des elektrostatischen Potentials sowie über Energieniveaus von Störstellen, Eigenzustände von Exzitonen und optischen Eigenschaften von strukturellen Defekten innerhalb der Nanostrukturen. Dazu bietet das Abbildungsverfahren im Rastertransmissionselektronenmikroskopie die Möglichkeit, simultan die Kristallstruktur, Schichtdicken, Grenzflächenrauigkeiten und Komposition der Halbleiter zu bestimmen. Die Ortsauflösung in der STEM-CL wird nur noch von der Strahlaufweitung des einfallenden Elektronenstrahls durch Streuprozesse in der dünn-präparierten Lamelle (Schichtdicke < 300 nm) begrenzt. Somit wird eine einzigartige Ortsauflösung von bis zu 5 nm erreicht, was der Größenordnung des Bohr'schen Radius der freien Exzitonen im GaN entspricht und gleichzeitig eine untere physikalische Grenze für die örtliche Auflösung darstellt [43].

Der Aufbau der Dissertation gliedert sich wie folgt: Im folgenden Kapitel 2 werden die fundamentalen physikalischen Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride, sowie die Charakteristika und Auswirkungen von Polarisationsfeldern erläutert. Weiterhin werden die grundlegenden Wachstumsverfahren von GaN-basierten Nano- und Mikrosäulen diskutiert. Anschließend führt Kapitel 3 in die experimentellen Grundlagen zur Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop ein. Im Fokus stehen insbesondere die Funktionsprinzipien und Abbildungsmodi dieses hochortsaufgelösten Messverfahrens, sowie die optimierte Nanopräparation von Halbleitern für die STEM-CL-Untersuchung.

In Kapitel 4 wird eine direkte nanoskopische Korrelation zwischen den optischen und strukturellen Eigenschaften an ortsselektiv gewachsenen GaN-Nanosäulen hergestellt. Erstmals wurde eine optimierte Dünnschichtpräparation von Nanosäulen mittels eines fokussierten Ionenstrahls für die Kathodolumineszenz-Mikroskopie vorgenommen. Die spektrale Emissionscharakteristik wird im Querschnitt der Nanosäulen detailliert analysiert. Darüber hinaus wird die Bildung von einzelnen Basalflächenstapeldefekten vom Typ I_1 , I_2 und E in den Säulen nachgewiesen und der Ladungsträgertransport zu den Defekten untersucht.

Zur Charakterisierung der optischen und morphologischen Eigenschaften von dreidimensionalen Mikrosäulen LEDs werden in Kapitel 5 hochortsaufgelöste Kathodolumineszenz-Messungen vorgestellt. Durch STEM-CL-Messungen am Querschnitt der coaxialen Mikrosäulenheterostruktur wird ein direkter Einblick in das lokale Emissionsverhalten der einzelnen Kern-Mantel-Schichten gegeben. Schwerpunkt ist die Charakterisierung der mikroskopischen Domänenstrukturen durch das Überwachsen der n-dotierten GaN-Säulen mit InGaN-Quantenfilmen und p-dotierten GaN-Mantel-Schichten. Aufbauend darauf wird in Kapitel 6 ein direkter Zusammenhang zwischen der chemischen Komposition und den lokalen Lumineszenzeigenschaften von InGaN-Quantenfilmen durch die Verbindung von analy-

tischer Ordnungszahlkontrastabbildung und Kathodolumineszenz-Spektroskopie hergestellt. Entlang der Mikrosäulen werden ein Kompositions- und ein Schichtdickengradient des Quantenfilms quantitativ bestimmt, die direkt zu einer Rotverschiebung der InGaN-Emission führen. Im Weiteren werden Kompositionsfluktuationen des non-polaren InGaN-Quantenfilms auf Nanometerskala nachgewiesen und die Auswirkung lokaler Variationen in der Potentiallandschaft auf Lokalisierungseffekte analysiert.

2 Grundlagen: Kristallstruktur, Lumineszenz, Wachstum

Die chemischen Elemente Gallium (Ga), Aluminium (Al), Indium (In) und Stickstoff (N) bilden die Grundlage der Gruppe-III-Nitrid-Halbleiter. Auf Grund besonderer intrinsischer Eigenschaften, wie zum Beispiel einer großen direkten Bandlücke, hohen Exzitonenbindungsenergien, geringer effektiver Massen der Ladungsträger und hoher thermischer Leitfähigkeiten nehmen die Gruppe-III-Nitride unter den Halbleitern eine besondere Stellung ein.

Dieses einführende Kapitel behandelt zunächst die grundlegenden strukturellen Eigenschaften sowie die optischen Rekombinationsmechanismen der Gruppe-III-Nitride. Anschließend werden die wesentlichen Wachstumsprozesse und Eigenschaften von GaN-basierten Nano- und Mikrosäulen erläutert.

2.1 Kristallographische Struktur der Gruppe-III-Nitrid-Halbleiter

Die nitridischen III-V-Halbleiter GaN, AlN und InN können in der Wurtzit-, der kubischen Zinkblende, sowie der Steinsalzstruktur kristallisieren, wobei die Wurtzitstruktur die energetisch favorisierte Kristallmodifikation darstellt und bevorzugt auftritt [44]. Die Wurtzitphase wird aus jeweils zwei hexagonalen, am dichtesten gepackten Gittern (engl. hexagonal closepacked — hcp) gebildet, bei der das eine die Metall-Atome (Al, Ga, In) und das andere den Stickstoff enthält. Beide Packungen sind um $3/8c$ entlang der $\langle 0001 \rangle$ -Richtung gegeneinander verschoben.

Im Fall von GaN ist jedes Ga-Atom des einen hcp-Gitters jeweils tetraedisch mit vier Stickstoff-Atomen des anderen hcp-Gitters über eine sp^3 -Hybridisierung gebunden. Die Stapelfolge der Wurtzitstruktur von GaN entlang der $\langle 0001 \rangle$ -Richtung lautet $Ga^A N^A Ga^B N^B Ga^A N^A Ga^B N^B$ (2-H Typ). Die Lage der Stickstoff-Gallium-Paare wechselt damit entlang der Basalebene zwischen zwei Positionen. Vereinfachend kann je eine Gallium- und Stickstofflage zu einer Doppelschicht zusammengefasst werden, so dass sich die Stapelfolge $ABABABABABAB$ ergibt. Abbildung 2.1(a) zeigt die schematische Darstellung der hexagonalen Kristallstruktur vom GaN.

Der Wurtzit-Kristall wird im Allgemeinen durch die Gitterparameter a und c charakterisiert, wobei a von der Mitte des Grund-Hexagons zu einem Endpunkt gemessen wird und c das Maß entlang der $\langle 0001 \rangle$ -Richtung der Einheitszelle ist. Eine weitere wichtige Eigenschaft der Kristallstruktur ist das Verhältnis der c -Gitterkonstante in $\langle 0001 \rangle$ -Kristallrichtung und der a -Gitterkonstante in der basalen Ebene. In der idealen Wurtzitstruktur beträgt das Verhältnis $c/a = \sqrt{8/3} = 1,633$ [45]. Die realen Gitterparameter für GaN, AlN und InN sind in Tabelle 2.1 angegeben. Die Abweichungen der realen hexagonalen Kristallstruktur von der Idealstruktur und die daraus resultierende Anisotropie führen zu starken Polarisierungseffekten, auf die anschließend in Kapitel 2.2 eingegangen werden soll.

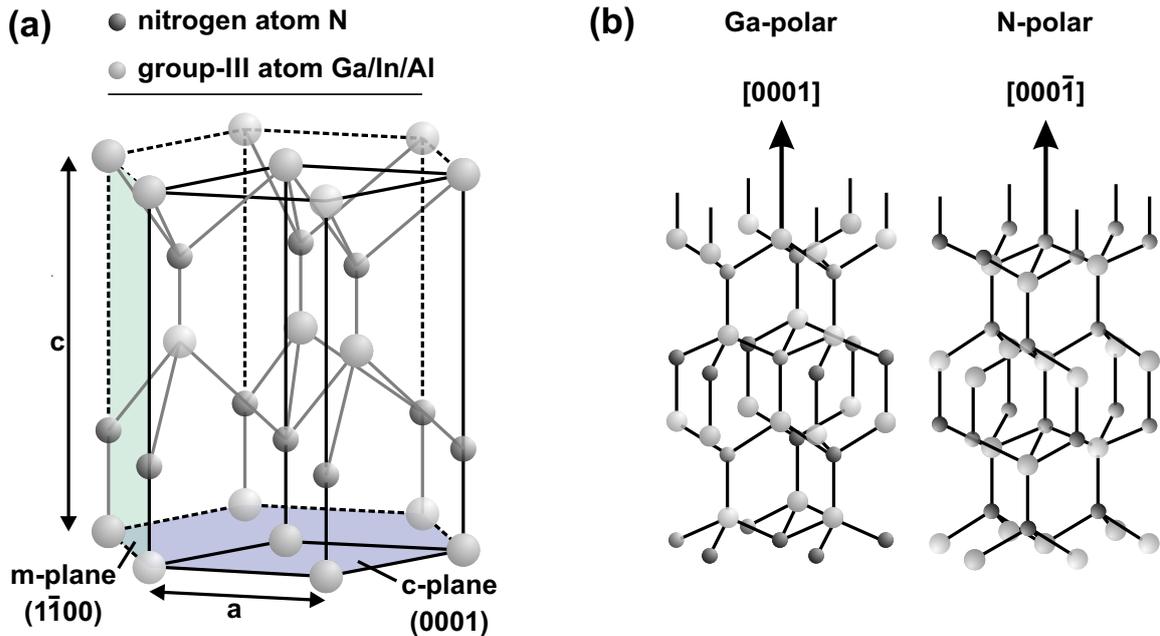


Abbildung 2.1: (a) Schematische Darstellung der Wurtzit-Kristallstruktur des GaN [44]. Die primitive Einheitszelle des Kristalls sowie zwei ausgezeichnete Ebenen ($\{0001\}$ c-Ebene und $\{1\bar{1}00\}$ m-Ebene) sind im Bild hervorgehoben; (b) Ga- und N-polare Oberflächenterminierung des Kristalls.

Tabelle 2.1: Gitterparameter a und c für GaN, AlN und InN sowie für Saphir bei $T = 300$ K. Das reale c/a -Verhältnis für die Wurtzit-Kristalle ist vergleichend zum Idealwert angegeben. Der thermische Ausdehnungskoeffizient α ist für die c -Richtung (α_{\parallel}) und die a -Richtung (α_{\perp}) angegeben [46–48].

Parameter (300 K)	GaN	InN	AlN	c-Al ₂ O ₃
a (Å)	3,189	3,545	3,112	4,758
c (Å)	5,185	5,703	4,982	12,991
c/a (ideal: 1,633)	1,6259	1,6087	1,6009	
α_{\parallel} (K ⁻¹)	$3,17 \cdot 10^{-6}$	$2,9 \cdot 10^{-6}$	$4,15 \cdot 10^{-6}$	$7,5 \cdot 10^{-6}$
α_{\perp} (K ⁻¹)	$5,57 \cdot 10^{-6}$	$3,8 \cdot 10^{-6}$	$5,27 \cdot 10^{-6}$	$8,5 \cdot 10^{-6}$

Für ternäre Verbindungen $A_xB_{1-x}N$ können die relaxierten Gitterparameter nach dem Gesetz von Vegard linear für jede Materialkomposition x interpoliert werden [49]:

$$a_{ABN} = a_{AN} \cdot x + a_{BN} \cdot (1 - x) \quad (2.1)$$

$$c_{ABN} = c_{AN} \cdot x + c_{BN} \cdot (1 - x) \quad (2.2)$$

Eine weitere wichtige Eigenschaft der Gruppe-III-Nitride bildet die Oberflächenterminierung des Kristalls, welcher entweder durch Metall-Atome oder Stickstoff-Atome abgeschlossen wird. Wird im Fall des GaN die kristallographische Oberfläche von Gallium-Atomen besetzt, spricht man von einer Ga-polaren Konfiguration (Ga-face), wohingegen eine Besetzung der Oberfläche mit Stickstoff-Atomen zu N-polaren Strukturen (N-face) führt. In Abbildung 2.1(b) sind beide Fälle, Ga-polare und N-polare Konfiguration, schematisch dargestellt. Die Oberflächenterminierung ist insbesondere abhängig von

den Wachstumsparametern und kann zum Beispiel durch Ätztechniken oder konvergente Elektronenbeugung im Transmissionselektronenmikroskop bestimmt werden.

Heteroepitaxie von GaN auf Fremdsubstrate

Auf Grund des Fehlens von großen, kostengünstigen GaN-Substraten hat sich die Heteroepitaxie von GaN auf Fremdsubstrate etabliert. Gegenwärtig werden für die industrielle Großproduktion vor allem Saphir (Al_2O_3), Silizium (Si) oder Siliziumcarbid (SiC) als Substrate verwendet. Insbesondere Saphir findet eine starke Anwendung für die Epitaxie der Nitride, da es in sehr hoher Materialqualität hergestellt werden kann und vergleichsweise günstig verfügbar ist. Außerdem ist es chemisch sehr beständig, vergleichsweise hart und optisch transparent. Zusammen mit dem niedrigen Brechungsindex von 1,76 ist es als Substrat für optoelektronische Bauelemente auf GaN-Basis geeignet. Nachteilig ist hierbei die schlechte elektrische Leitfähigkeit, sodass die elektrische Kontaktierungen auf der Vorderseite des Bauelements aufgebracht werden müssen.

Die Wurtzit-Einheitszelle vom GaN wächst in $[0001]$ -Richtung um 30° rotiert gegenüber dem Saphirgitter auf, wodurch sich die Gitterfehlpassung auf ca. 14% reduziert, was für die Heteroepitaxie ausreichend ist. Auf Grund dieser Fehlanpassung kommt es jedoch zur Ausbildung hoher Versetzungsdichten. Diese liegen im Bereich von ca. 10^9 cm^{-2} - 10^{10} cm^{-2} [14], falls keine defektreduzierenden Epitaxie-Zwischenschritte angewendet werden. Versetzungen wirken im GaN als nicht-strahlende Rekombinationszentren und reduzieren die Effizienz optoelektronischer Bauelemente [50]. Zusätzlich führen Versetzungen zu einer Reduktion der Ladungsträgerbeweglichkeiten sowie zu einer Verringerung der elektrischen Leitfähigkeit [14]. Eine Möglichkeit zur Reduktion der Defektdichte ist das selektive Wachstum von Nano- und Mikrosäulen [28]. Beim selektiven Wachstum setzt das Wachstum nicht auf der gesamten Oberfläche des Substrates gleichzeitig ein, sondern beginnt in definierten Nukleationsbereichen. In Kapitel 2.4 soll auf das epitaktische Wachstum dieser Strukturen detailliert eingegangen werden.

Bei typischen Wachstumstemperaturen von 1000°C wächst Galliumnitrid tensil verspannt auf Saphir auf, beim Abkühlen auf Raumtemperatur tritt jedoch auf Grund des größeren thermischen Ausdehnungskoeffizienten eine biaxiale kompressive Verspannung des Galliumnitridkristalls auf [51].

2.2 Polarisationsfelder in nitridischen Halbleitern

Die Gruppe-III-Nitride bilden pyroelektrische Kristalle mit einer makroskopischen Polarisation [52]. Die durch eine reduzierte Kristallsymmetrie der Wurtzitstruktur und durch Verspannungen des Kristallgitters hervorgerufenen Polarisationsfelder führen zu elektrischen Feldern mit hohen Feldstärken im Kristall sowie zur Erzeugung von Grenzflächenladungen innerhalb von Heterostrukturen. Die Gesamtpolarisation \vec{P}_{tot} setzt sich aus zwei Anteilen zusammen, einem intrinsischen Anteil, der spontanen Polarisation \vec{P}_{sp} und der piezoelektrischen Polarisation \vec{P}_{pz} :

$$\vec{P}_{tot} = \vec{P}_{sp} + \vec{P}_{pz} \quad . \quad (2.3)$$

Die resultierende Gesamtpolarisation entlang der $[000\bar{1}]$ -Richtung für einen Ga-polaren unverspannten und einen biaxial verspannten Kristall ist schematisch in Darstellung 2.2 abgebildet.

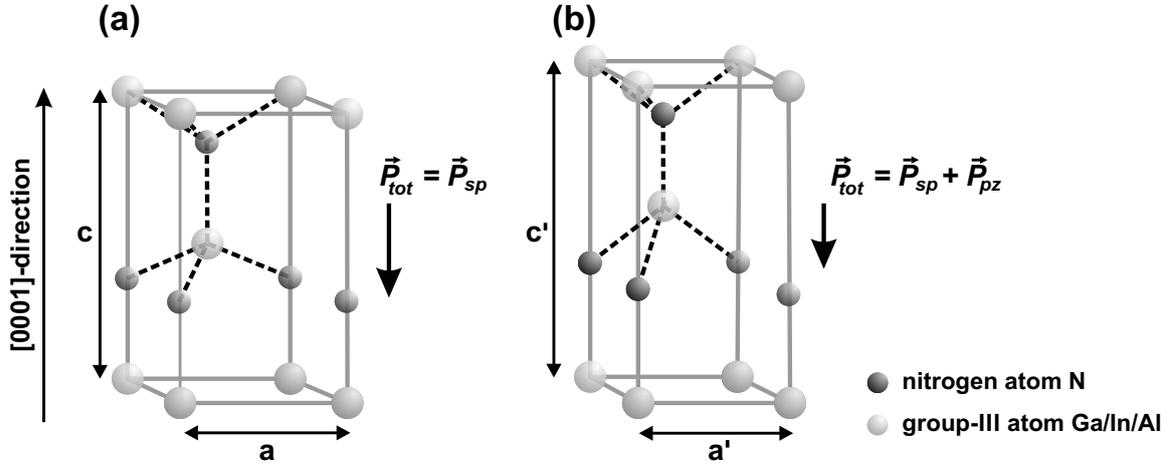


Abbildung 2.2: Primitive Elementarzelle des binären Wurtzit-Kristall für den (a) relaxierten Fall und (b) biaxial verspannten Fall. Im unverspannten Kristall trägt nur die spontane Polarisation \vec{P}_{sp} zur Gesamtpolarisation \vec{P}_{tot} bei. Eine Verspannung des hexagonalen Kristalls führt zu einem zusätzlichen Beitrag infolge von verzerrungsabhängigen piezoelektrischen Feldern \vec{P}_{pz} .

Eine direkte Folge der Gesamtpolarisation ist ein elektrostatisches Feld \vec{E} innerhalb des Halbleiters, welche von der elektrischen Feldkonstante ϵ_0 und der materialabhängigen Dielektrizitätszahl ϵ abhängt:

$$\vec{E} = \frac{\vec{P}_{tot}}{\epsilon_0 \cdot \epsilon} \quad (2.4)$$

Das resultierende Feld hat einen Einfluss auf die optischen und elektrischen Eigenschaften des Halbleiters. Die zwei Anteile der Gesamtpolarisation werden im folgenden näher erläutert.

2.2.1 Spontane Polarisation

Die Ursachen für die spontane Polarisation in den Gruppe-III-Nitrid-Halbleitern bilden die reduzierte Symmetrie des idealen Wurtzit-Kristalls, welche zusätzlich durch die bereits diskutierte Abweichung des realen Kristalls von den idealen Gitterparametern verstärkt wird (siehe Tabelle 2.1). Zudem führen die unterschiedlichen Elektronegativitätswerte für das Metall- und das Stickstoffatom zu einem stark ionischen Charakter der Bindung.

Für das Verständnis der spontanen Polarisation ist eine genaue geometrische Betrachtung der Abstände der Atome im idealen Wurtzit-Kristall notwendig. Berechnet man in erster Näherung die Bindungslängen der nächsten Nachbarn für einen unverspannten GaN-Kristall mit den realen Gitterparametern ergibt sich nur eine kleine Abweichung von ca. 1% gegenüber der idealen Konfiguration [52]. Einen weitaus stärkeren Einfluss auf die spontane Polarisation im Wurtzit-Kristall liefern die Abstände zu den übernächsten Nachbarn. Die Abstände zu den übernächsten Nachbarn lassen sich zu

$$L_{III-N_{2a}} = (1 - u) \cdot c \quad (\text{ein übernächster Nachbar}) \quad (2.5)$$

$$L_{III-N_{2b}} = \sqrt{a^2 + (u \cdot c)^2} \quad (\text{sechs übernächste Nachbarn}) \quad (2.6)$$

$$L_{III-N_{2b}'} = \sqrt{\frac{4}{3}a^2 + \left(\frac{1}{2} - u\right)^2 \cdot c^2} \quad (\text{drei übernächste Nachbarn}) \quad (2.7)$$

berechnen [52, 53]. Hier soll $L_{III-N_{2a}}$ der Abstand zum übernächsten Nachbarn entlang der $[000\bar{1}]$ -Richtung sein, während $L_{III-N_{2b}}$ die Bindungslänge entlang der (0001)-Ebene in Höhe des Gruppe-III-Atoms beschreibt und $L_{III-N_{2b}'}$ den Abstand entlang der (0001)-Ebene angibt. Wird nun wieder ein idealer Wurtzit-Kristall mit $u = 3/8$ und $c/a = \sqrt{3/8}$ angenommen, ergibt sich demnach:

$$L_{III-N_{2a}} = \frac{5}{2\sqrt{6}}a \quad (2.8)$$

und

$$L_{III-N_{2b}} = L_{III-N_{2b}'} = \frac{11}{2\sqrt{2}}a. \quad (2.9)$$

Für GaN tritt nun eine deutliche Differenz von 13% der Abstände entlang der $[000\bar{1}]$ -Richtung ($L_{III-N_{2a}}$) gegenüber den übernächsten Nachbarn senkrecht dazu ($L_{III-N_{2a}}$ und $L_{III-N_{2b}}$) auf. Gleichzeitig führen die unterschiedlichen Elektronegativitätswerte für das Metall- und das Stickstoffatom (Al: 1,61, Ga: 1,81, In: 1,78, N: 3,04) zu einer starken anisotropen Verschiebung der Ladungsschwerpunkte. Somit hat jede einzelne Bindung im Kristall ein Dipolmoment. In Folge der unterschiedlichen Bindungslängen zu den übernächsten Nachbarn führt die Summation über alle Dipolmomente zu einer nicht-verschwindenden, makroskopischen Polarisation entlang der c-Richtung. Diese spontane Polarisation ist bereits ohne äußere Einflüsse vorhanden und stellt somit eine intrinsische Eigenschaft der Gruppe-III-Nitride dar. Eine detaillierte Bestimmung der spontanen Polarisation, welche nicht bei den übernächsten Nachbarn endet, wurde von Bernardini *et al.* mittels Dichtefunktionaltheorie durchgeführt [54]. Die Werte für die spontane Polarisation für die binären Verbindungen GaN, AlN und InN sind Tabelle 2.2 zu entnehmen.

Tabelle 2.2: Spontane Polarisation der binären Gruppe-III-Nitrid Verbindungen nach [54].

	GaN	InN	AlN
P_{sp} (C/m ²)	-0,032	-0,029	-0,081

Die spontane Polarisation ist bei allen Gruppe-III-Nitriden antiparallel zur c-Achse ausgerichtet. Eine thermische Veränderung der Gitterkonstanten kann zudem zu einer weiteren Veränderung der spontanen Polarisation, in Folge einer Änderung der atomaren Abstände, führen.

Betrachtet man die ternären Verbindungen $A_xB_{1-x}N$, kann die spontane Polarisation zwischen den beiden binären Verbindungshalbleitern interpoliert werden. Jedoch weist die spontane Polarisation ein nichtlineares Verhalten mit der Konzentration x der verwendeten Materialien auf, welches durch den bowing-Parameter b beschrieben werden kann [55]:

$$P_{sp}(A_xB_{1-x}N) = x \cdot P_{sp}(AN) + (1 - x) \cdot P_{sp}(BN) + b \cdot x \cdot (1 - x). \quad (2.10)$$

Die Abweichung von einem linearen Verhalten ist auf die unterschiedlichen Elektronegativitäten der Kationen und auf interne Verspannungen zurückzuführen [54].

2.2.2 Piezoelektrische Polarisation

Durch eine Verzerrung der Kristallstruktur kann gleichzeitig zur spontanen Polarisation eine piezoelektrische Polarisation induziert werden. Die Verzerrung des Kristalls bewirkt eine Veränderung der Bindungslängen und Bindungswinkel was zu einer zusätzlichen Verschiebung der Ladungsschwerpunkte führt. Die resultierende piezoelektrische Polarisation P_i^{pz} kann mit Hilfe des piezoelektrischen Tensors e_{ij} und des mechanischen Spannungstensor ϵ_j komponentenweise berechnet werden:

$$P_i^{pz} = \sum_j e_{ij} \epsilon_j \quad \text{mit} \quad i = 1, 2, 3; \quad j = 1, \dots, 6. \quad (2.11)$$

Unter Beachtung der Symmetrie des Wurtzitkristalls lässt sich die piezoelektrische Polarisation in Voigtscher Notation darstellen:

$$\begin{pmatrix} P_1 \\ P_2 \\ P_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_1 \\ \epsilon_2 \\ \epsilon_3 \\ \epsilon_4 \\ \epsilon_5 \\ \epsilon_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e_{15} \epsilon_5 \\ e_{15} \epsilon_4 \\ e_{31} (\epsilon_1 + \epsilon_2) + e_{33} \epsilon_3 \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

Die piezoelektrischen Konstanten sind nach Romanov *et al.* in Tabelle 2.3 zusammengefasst.

Tabelle 2.3: Piezoelektrische Konstanten von GaN, AlN und InN [56].

	GaN	AlN	InN
e_{31} (C/m ²)	-0,49	-0,58	-0,49
e_{33} (C/m ²)	0,73	1,55	0,73
e_{15} (C/m ²)	-0,40	-0,48	-0,40

Unter tensiler Verspannung von GaN ist die piezoelektrische Polarisation immer negativ und zeigt in $[000\bar{1}]$ -Richtung. Unter kompressiver Verspannung ist die piezoelektrische Polarisation positiv und somit entgegengesetzt zur spontanen Polarisation ausgerichtet.

Selbst bei hohen Polarisationsfeldern erhält man im Volumenkristall dennoch kein elektrisches Feld. Ursache dafür sind die thermisch generierten intrinsischen Ladungsträger, die bei einem bestehenden elektrischen Feld einen Strom bilden, der wiederum zum Abbau des Feldes führt.

Anders verhält es sich jedoch für heteroepitaktische Schichtsysteme, beispielsweise bei gitterangepassten InGaN-Quantenfilmen auf GaN. An den Grenzflächen von Barriere und Quantenfilm entsteht auf Grund von Verspannungen eine lokale Änderung des Polarisationsfeldes, welche zur Bildung von Grenzflächenladungsträgern führt, die ein elektrisches Feld induzieren. Die Größe der lokalen Änderung des Polarisationsfeldes ist jedoch abhängig von der Kristallorientierung. Abbildung 2.3 stellt den winkelabhängigen Verlauf des Polarisationsfeldunterschieds für eine pseudomorph gewachsene InGaN-Schicht auf GaN für verschiedene Indiumgehalte dar. Die Berechnungen zeigen, dass der Po-

larisationsfeldunterschied für in c-Richtung gewachsene InGaN/GaN-Heterostrukturen am größten ist. Im Gegensatz dazu ist der Polarisationsfeldunterschied auf Ebenen die senkrecht zur (0001)-Ebene stehen stark reduziert bzw. verschwunden. Dies ist zum Beispiel für das Wachstum auf der $\{1\bar{1}00\}$ -Oberfläche oder $\{11\bar{2}0\}$ -Oberfläche der Fall.

Eben diese Eigenschaft der Polarisationsfelder wird für die in dieser Arbeit untersuchten Mikrosäulen ausgenutzt. Wie in Kapitel 5 und 6 zu sehen sein wird, wird im Fall der Mikrosäulen-Heterostruktur die aktive Zone auf die $\{1\bar{1}00\}$ -Oberflächen der dreidimensionalen Strukturen abgeschieden. Der Einfluss der Polarisationsfelder auf die optischen Eigenschaften der Quantenfilme kann durch diesen Ansatz deutlich verringert werden [57, 58].

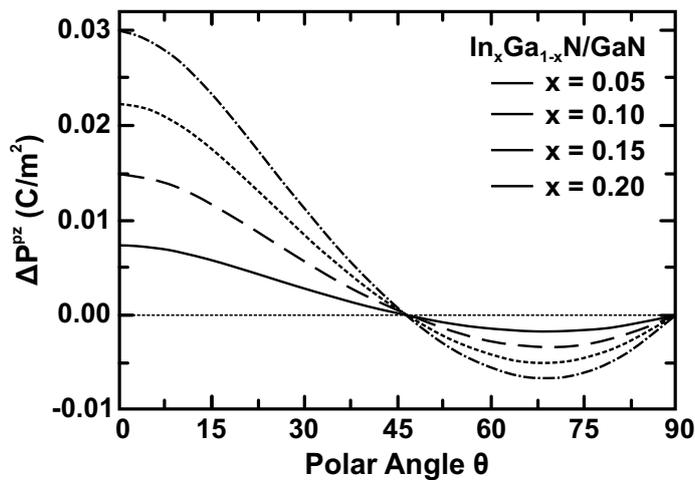


Abbildung 2.3: Polarisationsfeldunterschied ΔP^{pz} für InGaN-Schichten mit 5% - 20% Indiumgehalt als Funktion des Kristallwinkels θ nach [56].

2.2.3 Quantum Confined Stark Effekt

Die Polarisationsfelder wirken sich direkt auf die elektronische Bandstruktur niederdimensionaler Heterostrukturen, im speziellen Quantenfilmen, aus. Dieser Effekt ist als Quantum Confined Stark Effekt (QCSE) bekannt [59].

Wie eingehend erläutert, führt der Sprung der Polarisation an der Grenzfläche des InGaN-Quantenfilms und der GaN-Barriere zur Bildung von Flächenladungsträgern, die ein elektrisches Feld induzieren. Im Fall eines c-planaren $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$ -Quantenfilms mit GaN-Barrieren wurde die Feldstärke von Feneberg *et al.* experimentell zu -1,9 MV/cm bestimmt [60]. Die elektrischen Felder führen zu einer Verkipfung der Energiebänder im Ortsraum (Abbildung 2.4). Infolgedessen kommt es zu einer räumlichen Trennung der Ladungsträger im Quantenfilm, um die Grenzflächenladungsträger zu kompensieren. Die Verkipfung der Energiebänder bewirkt eine Verkleinerung des effektiven Bandabstandes, was sich in einer Rotverschiebung der strahlenden Rekombination im Spektrum äußert [61, 62].

Eine weitere Folge ist die Separation der Loch- und Elektronenwellenfunktion innerhalb der Quantenstruktur. Dies führt zu einer Verringerung des Überlapp-Integrals beider Wellenfunktionen, womit eine Abnahme der strahlenden Rekombinationsrate und ein Anstieg der Ladungsträger-Lebensdauer verbunden ist [62].

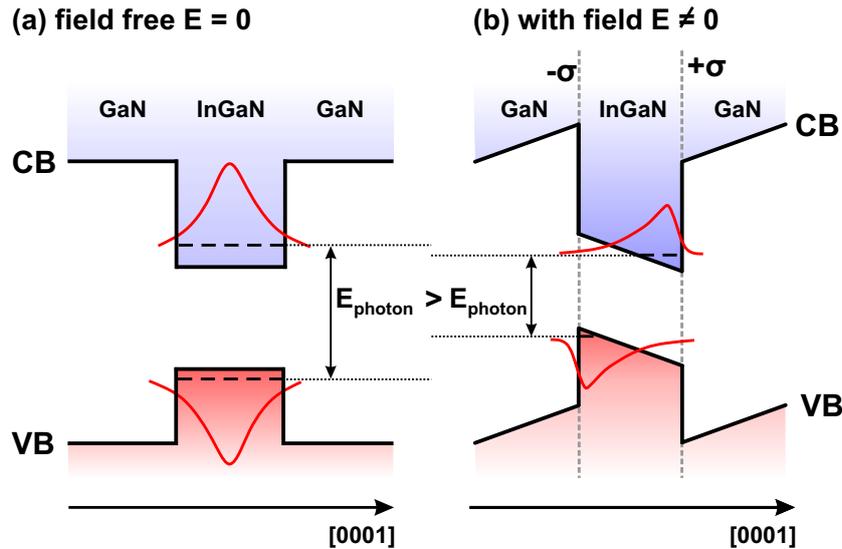


Abbildung 2.4: Vergleich der elektronischen Bandstruktur und Aufenthaltswahrscheinlichkeit (rot) innerhalb einer InGaN/GaN-Quantenfilm-Heterostruktur in (a) Abwesenheit und (b) unter Einwirkung eines internen Polarisationsfeldes in [0001]-Richtung.

Auf Grund des QCSE muss die Dicke des Quantenfilms für c-planare Heterostrukturen sehr dünn gewählt werden. Dadurch erhöht sich jedoch die Stromdichte, was zu einen zusätzlichen Abfall der Quanteneffizienz führt („Efficiency-Droop“) [16–18].

Wie in Kap. 2.2.2 erläutert, bildet das Wachstum der Quantenfilme auf non-polare Kristallorientierungen von Mikrosäulen einen Ansatz um die negativen Auswirkungen des QCSE zu reduzieren.

2.3 Lumineszenzprozesse in III-N-Halbleitern

Die binären III-N-Halbleiter und ihre ternären Verbindungen gehören zur Gruppe der direkten Halbleiter. Das Valenzbandmaximum und das Leitungsbandminimum liegen am Γ -Punkt im Zentrum der Brillouin-Zone. Das Leitungsband wird durch die s-artigen Zuständen des jeweiligen Atoms gebildet. Die p-artigen Zuständen des Stickstoffs führen zur Bildung des Valenzbandes.

In der Näherung des effektiven Massenmodells wird die Dispersion der Ladungsträger durch Energieparabeln beschrieben. Für die Energien des Leitungs- (E_{CB}) und Valenzbandes (E_{VB}) folgt in diesem Modell:

$$E_{CB} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} \quad E_{VB} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_h} \quad (2.13)$$

Da die effektiven Massen der Leitungsbandelektronen (m_e) und Valenzbandlöcher (m_h) auf Grund der Anisotropie des Wurtzitkristalls verschieden sind, folgt eine unterschiedliche Krümmung der Dispersion des Leitungsbandes und Valenzbandes [63].

In Folge der Spin-Bahn-Kopplung und des in der Wurtzitstruktur vorherrschenden Kristallfeldes kommt es zudem zu einer dreifachen Aufspaltung des Valenzbandes [63]. Die aufgespaltenen Valenzbänder werden in energetisch absteigender Reihenfolge als A-, B- und C-Band bezeichnet.

Die fundamentale Bandlückenenergie von hexagonalem GaN beträgt 3,504 eV bei $T = 2$ K [64], von AlN 6,026 eV bei $T = 10$ K [65] und von InN 0,69 eV bei $T = 2$ K [66].

Bei der Anregung des Halbleiterkristalls mit dem Elektronenstrahl (siehe Kapitel 3) werden Überschussladungsträger im Leitungs- und Valenzband des Halbleiters erzeugt. Auf Grund des Nichtgleichgewichtszustandes des Halbleiters kommt es zur Rekombination dieser Ladungsträger. Im Nachfolgenden sollen die grundlegenden Lumineszenzprozesse dargestellt werden:

Freie Exzitonen

Auf Grund der Coulombwechselwirkung besteht eine attraktive Kopplung zwischen den Leitungsbandelektronen und Löchern des Valenzbandes, die zur Bildung eines neuen Quasiteilchens, dem Exziton, führen kann. Das entstandene Exziton (FX) stellt einen energetisch niedrigeren Zustand für die Ladungsträger dar. Weiterhin weisen die Exzitonen durch die Bildung aus zwei Fermionen einen bosonischen Charakter auf. Entsprechend ihrer Bindungsenergie können Exzitonen in Wannier- und Frenkel-Exzitonen unterschieden werden.

Die nur schwach gebundenen Wannier-Exzitonen besitzen einen Bohr-Radius der größer ist als die Gitterkonstante des umgebenden Materials. Frenkel-Exzitonen sind hingegen stark gebunden und weisen einen Abstand zwischen Elektron und Loch auf, der in der Größenordnung der Gitterkonstante liegt. Die Eigenenergien des Exzitons können analog zum Wasserstoffproblem gelöst werden, woraus für die Dispersionsrelation des freien Exzitons:

$$E_{ex}^n(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2M} - E_{Ry} \frac{1}{n^2} + E_g. \quad (2.14)$$

folgt. Der erste Term repräsentiert die kinetische Energie des Exzitons, mit der sich das Quasiteilchen durch den Kristall frei bewegt. Sie zeigt eine quadratische Abhängigkeit vom Wellenvektor $\vec{k} = \vec{k}_e + \vec{k}_h$. Der zweite Term resultiert aus der Coulombwechselwirkung von Elektron und Loch und beschreibt die Bindungsenergie, wobei n die Hauptquantenzahl für das wasserstoffähnliche Problem ist. Die Rydbergenergie E_{Ry} des Exzitons ermittelt sich nach:

$$E_{Ry} = \frac{\hbar^2}{2\mu a_B^2}. \quad (2.15)$$

μ ist die reduzierte Exzitonenmasse. Folglich ist die Bindungsenergie dem Bohr-Radius des Exzitons a_B indirekt proportional, daher je geringer der Bohr-Radius des Exzitons ist desto größer ist die Bindungsenergie. Da die Impulserhaltung nicht verletzt werden darf, können freie Exzitonen nur in der Nähe des Γ -Punkt strahlend rekombinieren. Diese Bedingung wird nur von einer geringen Anzahl von freien Exzitonen erfüllt, sodass die Intensität der FX relativ zur Rekombination von gebundenen Exzitonen geringer ist.

Auf Grund der Valenzbandaufspaltung existieren 3 freien Exzitonen in GaN: FX_A , FX_B und FX_C . Die Bindungsenergien liegen im Bereich von 24 meV bis zu 27 meV [67]. Nach einer endlichen Lebensdauer folgt die spontane Rekombination von Elektron und Loch und die damit verbundene Emission eines Photons. Die drei Emissionslinien der freien Exzitonen treten bei 3,4799 eV, 3,4860 eV und 3,5025 eV auf [67].

Gebundene Exzitonen

Innerhalb ihrer Lebensdauer können die freien Exzitonen von Störstellen eingefangen werden und gebundene Exzitonen (BE) bilden. Störstellen können neutrale oder ionisierte Donatoren und Akzeptoren, wie auch isoelektronische Störstellen sein. Wird ein Exziton an einen neutralen oder ionisierten Donator $D^{0/+}$ gebunden, so lautet die gebräuchliche Notation $(D^{0/+}, X)$. Für die Bindung des Exzitons an einen neutralen oder ionisierten Akzeptor $A^{0/-}$ folgt dementsprechend $(A^{0/-}, X)$. Die Bindungsenergie des Exzitons an die Störstelle E_{BE}^b ist durch die Energiedifferenz des Bandabstandes E_g und der Grundzustandsenergie des Komplexes definiert [68]:

$$E_{BE}^b = E_g - (E_{Ry} + E_{BE}) \quad . \quad (2.16)$$

Durch die örtliche Bindung an die Störstelle kann das gebundene Exziton nach der Heisenberg'schen Unschärferelation beliebige Impulswerte annehmen. Somit ist die Forderung nach Impulserhaltung für jedes beliebige gebundene Exziton immer erfüllt und es ergeben sich spektral scharfe Lumineszenzlinien, deren Intensität von der Donator- und Akzeptorkonzentration abhängt. Übersteigt die thermische Energie die Bindungsenergie des gebundenen Exzitons kommt es zur Dissoziation des gebundenen Exzitons.

Bei der Rekombination eines Donator-gebundenen Exzitons (D^0, X) wird ein Photon emittiert, sodass nach dem Prozess wieder ein neutraler Donator vorliegt. Dieser kann sich sowohl im Grundzustand als auch in einem angeregten Zustand befinden. Letzterer Prozess wird auch als Zwei-Elektronen-Satellit bezeichnet. Die Energie des Photons ist nach der Wasserstoffnäherung von der Hauptquantenzahl des angeregten Zustands abhängig [68]:

$$h\nu = E_{D^0X} - E_{Ry} \frac{m_e}{m_0 \epsilon^2} (1 - n_D^{-2}) \quad . \quad (2.17)$$

Die (D^0, X) -Lumineszenz bildet in nominell undotierten GaN die dominante Emission bei Tieftemperatur auf Grund der für GaN typischen intrinsischen Hintergrunddotierung mit Silizium und Sauerstoffs. In Magnesium-dotierten p-GaN treten hingegen Akzeptor-gebundene Exzitonen auf.

Donator-Akzeptor-Paar Übergang

Eine weiterer Rekombinationsmechanismus, der vor allem bei tiefen Temperaturen auftritt, ist der Donator-Akzeptor-Paar Übergang (DAP). Bei $T \rightarrow 0$ K liegen im Grundzustand des Kristalls neutrale Donatoren und Akzeptoren vor. Die Überlappung der Wellenfunktionen des Donators und Akzeptors führt zu einer Kopplung zwischen beiden, wodurch es zur Bildung eines neuen Zustands (D^0A^0) kommt. Nach einer gewissen Lebensdauer rekombinieren die an das DAP gebundenen Ladungsträger unter Aussendung eines Photons, wobei der Zustand (D^+A^-) entsteht. Die Energie des emittierten Photons ergibt sich für diesen Prozess nach:

$$h\nu = E_g - E_{D^0}^b - E_{A^0}^b + \frac{e^2}{4\pi\epsilon|\mathbf{r}_{D^0} - \mathbf{r}_{A^0}|} \quad (2.18)$$

Der letzte Term der Gleichung folgt aus der Coulombwechselwirkung, der bei dem Rekombinationsmechanismus entstehenden geladenen Dotanden. Dies hat zur Folge, dass im Spektrum ein Kontinuum

von scharfen Emissionslinien auftritt, welche verschiedenen Defektzentren innerhalb der Bandlücke zugeordnet werden können. Durch die Überlagerung zahlreicher DAP-Linien ist im Spektrum ein quasi-kontinuierliches Verhalten zu finden. Die Rekombinationszeit der strahlenden Übergänge hängt von der Stärke des Überlapp-Integrals der Wellenfunktionen ab. Nahe beieinander liegende DAP zeigen eine starke Überlappung ihrer Wellenfunktionen und haben infolgedessen eine kurze Rekombinationszeit. Analog zeigen DAP mit großem Donator-Akzeptor Abstand eine längere Lebensdauer.

Band-Band-Übergang

Neben der exzitonischen Rekombination können auch freie Löcher und freie Elektronen rekombinieren. Der Band-Band-Übergang (e,h) erscheint als breite, unsymmetrische Lumineszenz, wobei die Linienform im wesentlichen die Besetzung der Bänder wiedergibt [69]. Dies geschieht zum einen bei erhöhten Temperaturen, wenn die thermische Energie die Bindungsenergie der Exzitonen übersteigt. Zudem kann der Band-Band-Übergang bei hohen Konzentrationen freier Ladungsträger durch eine starke externe Anregung oder durch eine hohe n-Dotierung des Halbleitermaterials auftreten. Auf die Auswirkung der n-Dotierung soll im folgenden Abschnitt näher eingegangen werden.

Auswirkung der n-Dotierung auf die optischen Eigenschaften

Wie im anschließenden Kap. 2.4 erläutert, werden im Wachstum von n-dotierten GaN-Mikrosäulen hohe Ladungsträgerdichten von bis zu $1 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ erreicht [70]. Mit zunehmender freier Ladungsträgerkonzentrationen führt die Elektron-Elektron und Elektron-Ion Wechselwirkung zu einer Verkleinerung des Bandabstands in der Nähe der Brillouin Zone, sodass im Spektrum eine Rotverschiebung der exzitonischen Lumineszenz beobachtet wird [69]. Dieser Effekt wird auch als Bandabstandsrenormalisierung bezeichnet (siehe blaue Kurve in Abb. 2.5).

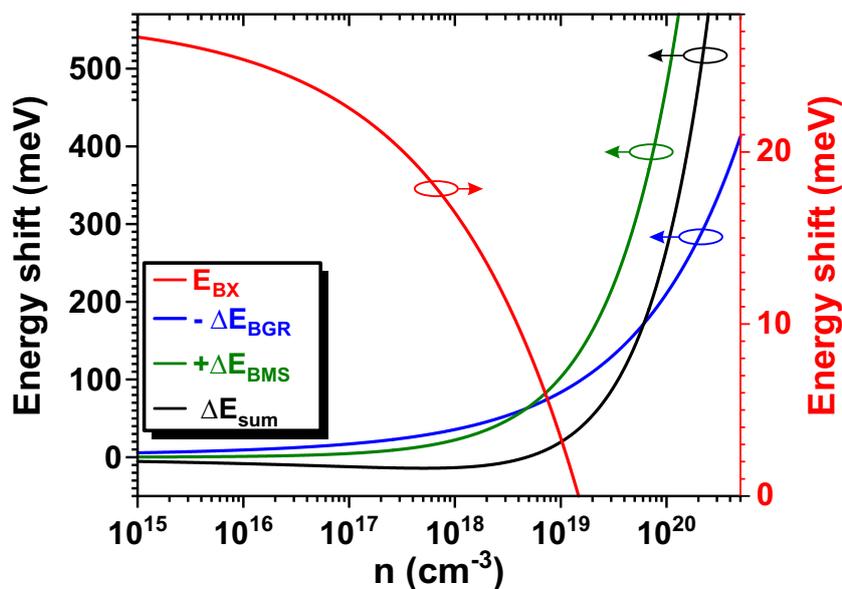


Abbildung 2.5: Abhängigkeit der Bandabstandsrenormalisierung $-\Delta E_{\text{BGR}}$ (blau), des Burstein-Moss-Effekts E_{BMS} (rot), Summe aus $-\Delta E_{\text{BGR}} + \Delta E_{\text{BMS}}$ (schwarz) und der Exzitonenbindungsenergie E_{BX} von der Ladungsträgerkonzentration n nach Feneberg *et al.* [71].

Gleichzeitig wird durch die Zunahme der Elektronenkonzentration im Halbleiter die Fermi-Energie in Richtung des Leitungsbands verschoben. Wird das Fermi-Level oberhalb des Leitungsbands verschoben, werden konsequenterweise die Zustände im Leitungsband aufgefüllt, der Halbleiter ist also entartet. Die aufgefüllten Zustände des Leitungsbands sind durch das Pauli-Prinzip blockiert, sodass mit einer weiteren Zunahme der Elektronenkonzentration eine Verschiebung der (e,h)-Rekombination zu höheren Energien einsetzt [71, 72] (siehe Abb. 2.5). Dieser der Bandabstandsrenormalisierung entgegen wirkende Effekt wird in der Literatur als Burstein-Moss-Verschiebung bezeichnet.

Zudem führt die Erhöhung der freien Ladungskonzentration zu einer Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern, sodass die Exzitonen-Bindungsenergie abnimmt (siehe Abb. 2.5). Oberhalb der Exziton-Mott-Dichte ($1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ [71]) findet ein Übergang von der exzitonischen Emission zur Band-Band-Rekombination statt.

2.4 Wachstum von GaN-basierten Nano- und Mikrosäulen

Das Wachstum von dreidimensionalen GaN-Strukturen in Form von Säulen mit einem Durchmesser von wenigen Nanometern bis zu einigen Mikrometern bietet ein alternatives Konzept gegenüber planaren Heterostrukturen. Erstmals wurde das Wachstum von GaN-Nanosäulen Ende der 90er Jahre von Yoshizawa *et al.* und Garcia *et al.* mittels Molekularstrahlepitaxie demonstriert [73, 74].

Der dreidimensionale Schichtaufbau der Nanosäulen bringt wesentliche Vorteile im Vergleich zu konventionellen zweidimensionalen Heterostrukturen. Durch den geringen Durchmesser von Nanosäulen und dem damit verbundenen geringen Wirkungsquerschnitt mit dem Substrat ist es trotz der Gitterfehlanpassung möglich auf Fremdsubstrate wie Saphir und Silizium verspannungsfrei aufzuwachsen [75, 76]. Wie von Hersee *et al.* in Ref. [77] gezeigt wurde, knicken Versetzungen aus energetischen Gründen im untersten Bereich der Säule zu den Oberflächen ab, sodass die Defektdichte in den Säulen erheblich verringert wird. Das Wachstum der aktiven Zone als Mantel-Schicht auf die non-polaren Seitenfacetten der Säulen reduziert zudem die negative Auswirkung der Polarisationsfelder (siehe Kap. 2.2). Zusätzlich wird die effektive Leuchtfläche gegenüber einer planaren Struktur um bis zu eine Größenordnung gesteigert, sodass die Stromdichte in der aktiven Zone verringert wird (siehe Kap. 2.4.2).

2.4.1 Wachstumsmodi von Nano- und Mikrosäulen

Grundsätzlich muss die Herstellung von GaN-Nanosäulen in drei verschiedene Ansatzpunkte unterschieden werden:

- (I) selbstorganisiertes Wachstum (engl.: self-assembled growth);
- (II) selektives Zonenwachstum (engl.: selective area growth);
- (III) selektives Ätzen von Nanosäulen („top-down“-Verfahren).

Das selbstorganisierte Wachstum von GaN-Nanosäulen kann sowohl durch die Katalysator-assistierte Vapor-Liquid-Solid-Synthese (VLS) wie auch über katalysatorfreie Verfahren erfolgen. In der Katalysator-assistierten VLS-Synthese werden Metalltropfen (Au, Ni, Ta) als Nukleationskeime auf

eine Pufferschicht oder direkt auf das Substrat aufgebracht [78]. Durch die Diffusion des Materials aus der Gasphase zum Nukleationskeim kommt es zu einer Übersättigung und Schmelzpunktreduktion, sodass das Kristallwachstum an der Flüssigkeits-Feststoff-Grenzfläche stattfindet [79–81]. Das katalysatorfreie Wachstum von GaN-Nanosäulen geschieht durch die gezielte Veränderung der Wachstumsparameter. Mit Hilfe sehr stickstoffreicher Wachstumsbedingungen ist beispielweise die katalysatorfreie Synthese von GaN-Nanosäulen mittels Molekularstrahlepitaxie möglich [73, 74].

Da bei beiden Prozessen die Nukleationsorte zufällig verteilt sind, ist ein wesentlicher Nachteil dieses Wachstumsmodi die daraus folgende statistische Größenverteilung der dreidimensionalen Strukturen, sowie ein nicht kontrollierbarer Abstand der Säulen (siehe Abb. 2.6(a))[82]. LED-Strukturen auf Basis von selbstorganisierten Nanosäulen zeigen auf Grund dieser Inhomogenität eine polychromatische Emission [83], wie auch eine starke Dispersion der elektrischen Eigenschaften [84].

Eine weitere Möglichkeit zur Herstellung von Nano- und Mikrosäulen bietet das sogenannte „top-down“-Verfahren durch das selektive Ätzen von dreidimensionalen GaN-Strukturen [85, 86]. Dazu wird zunächst eine planare GaN-Schicht oder Heterostruktur epitaktisch auf ein Substrat aufgewachsen. Nach der Epitaxie wird mittels Lithographieverfahren eine Ätzmaske auf die GaN-Schicht aufgebracht. Über das Layout der Ätzmaske wird bereits der Durchmesser und Abstand der Säulen definiert. Unter Verwendung von plasma-unterstützten, reaktiven Ionenätzen werden anschließend GaN-Nanosäulen trockenchemisch aus dem Kompaktmaterial frei geätzt. Der wesentliche Vorteil dieser Methodik liegt in der wohl-definierten Positionierung und Homogenität der Säulen (siehe Abb. 2.6(c)). Nachteile des Verfahrens sind jedoch Oberflächenschädigungen durch das Ätzen und raue, nicht-facettierte Oberflächen [87].

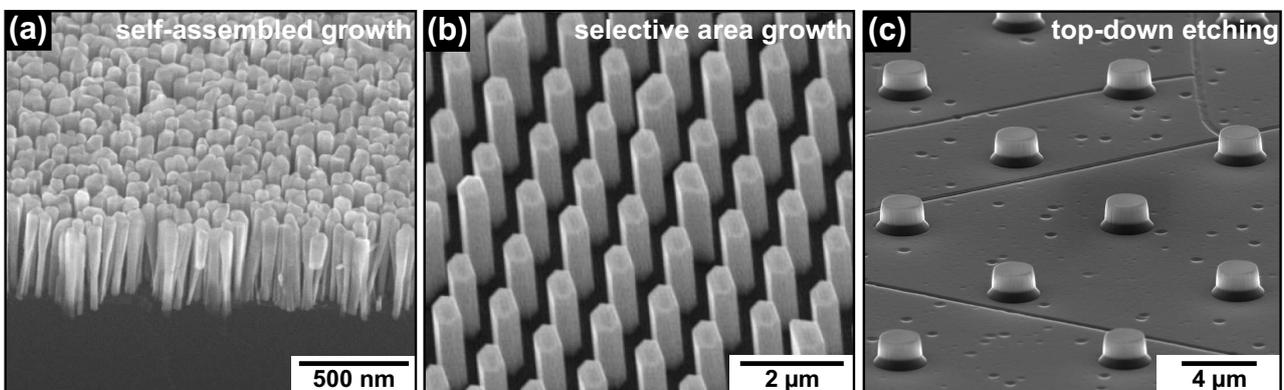


Abbildung 2.6: Morphologischer Vergleich von (a) selbstorganisiert gewachsenen GaN-Nanosäulen [32]; (b) ortsselektiv gewachsenen GaN-Nanosäulen [28] und (c) geätzten GaN-Mikrosäulen [88].

Selektives Zonenwachstum von GaN-Nanosäulen

Erstmalig wurde das ortsselektive Zonenwachstum von GaN-Nanosäulen von Hersee *et al.* mittels gepulster metallorganische Gasphasenepitaxie demonstriert [77]. Das selektive Wachstum erfolgt über eine Teilmaskierung der Oberfläche, wodurch das epitaktische Wachstum örtlich unterdrückt bzw. gefördert werden kann. Für die selektive Epitaxie von GaN-basierten Nanosäulen sind mehrere Prozessschritte notwendig (siehe Abb. 2.7): Zuerst wird eine GaN-Pufferschicht auf ein Substrat

abgeschieden und anschließend das Maskenmaterial ex-situ mittels Elektronenstrahlverdampfung oder plasma-unterstützter chemischer Gasphasenabscheidung aufgebracht (Abb. 2.7(a)). Dielektrische Schichten wie SiO_2 und SiN bzw. metallische Schichten wie Molybdän und Titan gewährleisten eine gute Selektivität, sodass die parasitäre Nukleation von GaN auf der Maskenoberfläche verhindert wird.

Im folgenden Schritt werden mittels Lithographie-Verfahren und Ätz-Techniken Öffnungen in die Maske erzeugt, wodurch die darunterliegende GaN-Oberfläche freigelegt wird (Abb. 2.7(b)). Die lithographische Strukturierung kann über optische Photolithographie [77, 89], Elektronenstrahlolithographie [90, 91] oder Nanoimprint-Lithographie [92, 93] erfolgen. Die Auflösung der optischen Lithographie wird durch die Abbe-Bedingung begrenzt, sodass minimale Strukturgrößen von bis $0,5 \mu\text{m}$ möglich sind. Im Gegensatz dazu bietet die Elektronenstrahlolithographie auf Grund der kleinen De-Broglie Wellenlängen der Elektronen eine höhere Ortsauflösung von unter 10 nm zur Nanostrukturierung der Maskenoberfläche [94, 95]. Jedoch ist ein deutlicher Nachteil der Elektronenstrahlolithographie, dass auf Grund der langen Rasterzeit des Elektronenstrahls nur kleine Flächen strukturiert werden können. Bei der Nanoimprint-Lithographie wird die Maske mittels eines strukturierten Stempels in den Photolack übertragen. Der Stempel selbst kann wiederum durch Elektronenstrahlolithographie oder Ätzen produziert werden. Mit diesem Verfahren können Maskenöffnungen bis in den Nanometerbereich prozessiert werden [96].

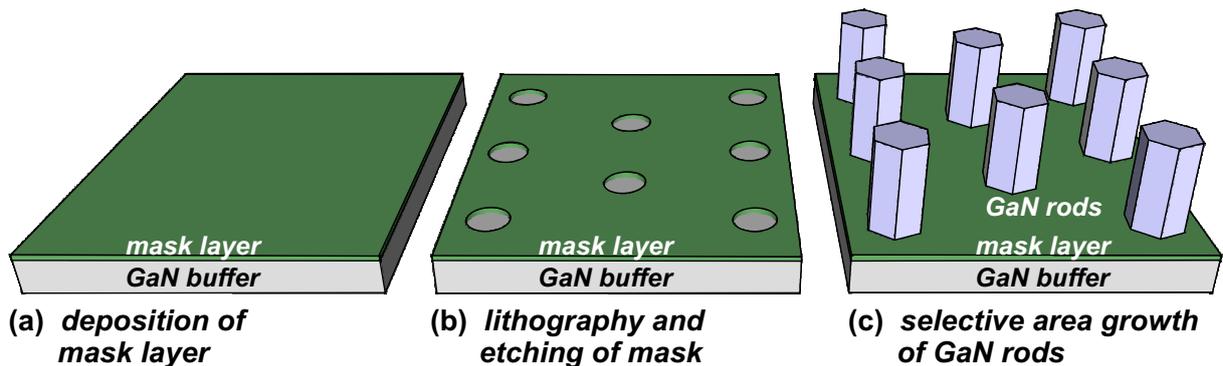


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung des selektiven Zonenwachstums von GaN Nanosäulen.

Nach der Entwicklung des Photolacks wird durch plasma-unterstütztes Ätzen die Wachstumsmaske an der gewünschten Position geöffnet. Die Anordnung und der Durchmesser der Nano- und Mikrosäulen wird bereits durch das Layout der Maske gesteuert.

Im eigentlichen Epitaxieprozess erfolgt die Nukleation auf Grund der Selektivität des GaN-Wachstums in den unmaskierten Löchern auf der Pufferschicht (siehe Abb. 2.7(c)). Die Oberflächenterminierung der GaN-Pufferschicht hat einen wesentlichen Einfluss auf die Morphologie der Säulen. Beim Wachstum entlang der $[000\bar{1}]$ -Richtung bilden sich hexagonale Säulen mit stabilen (0001) - und $\{1\bar{1}00\}$ -Oberflächen. Das Wachstum entlang der $[0001]$ -Richtung führt hingegen zu hexagonalen Säulen mit $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten und semi-polaren-Facetten an der Spitze. Die Wachstumsparameter, wie Temperatur, Druck, Trägergas und V/III-Verhältnis werden so gewählt, dass das vertikale Wachstum verstärkt und das laterale Wachstum unterdrückt wird [22, 24, 97]. Die verschiedenen Epitaxieverfahren und Parameter für das Wachstum werden im folgenden Kapitel 2.4.3 näher erläutert.

2.4.2 InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED

Im Allgemeinen bestehen Leuchtdioden aus einem pn-Übergang, der durch die gezielte Dotierung des Basismaterials mit unterschiedlichen Fremdatomen erreicht wird. Das Konzept der planaren LED-Schichten lässt sich auf Grund der dreidimensionalen Geometrie jedoch nicht ohne weiteres auf Nano- und Mikrosäulen übertragen. Generell lassen sich hier zwei verschiedene Ansätze für Nano- und Mikrosäulen basierte LEDs unterscheiden. Im axialen Ansatz werden die LED-Schichten epitaktisch auf die Spitze der Säulen abgeschieden. Durch die Koaleszenz der p-GaN-Schicht ist, wie von Kikuchi *et al.* in Ref. [21] vorgestellt, eine einfache Kontaktierung der Struktur möglich.

Im Gegensatz dazu umgibt die LED-Schicht den GaN-Kern als Mantel komplett im sogenannten „Core-Shell“-Ansatz. Der schematische Aufbau einer solchen coaxialen InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED ist schematisch in Abbildung 2.8 dargestellt. Im Falle der Mikrosäulen-LED wird der innere GaN-Kern mit Silizium n-dotiert. Auf Grund der geringen Aktivierungsenergie von Si in GaN von ca. 12 - 17 meV können hohe freie Ladungsträgerkonzentrationen erreicht werden [98]. Die Dotierung mit Silizium ist für das Wachstum von GaN-Mikrosäulen relativ unkritisch, da durch den Silan-Fluss gleichzeitig das vertikale Wachstum der Säulen unterstützt wird (siehe Kap. 2.4.3) [70]. Freie Ladungsträgerkonzentrationen von bis zu $1 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ des GaN-Kerns können erzielt werden um eine hohe Leitfähigkeit und hohen Stromtransport in die aktive Zone zu gewährleisten [99].

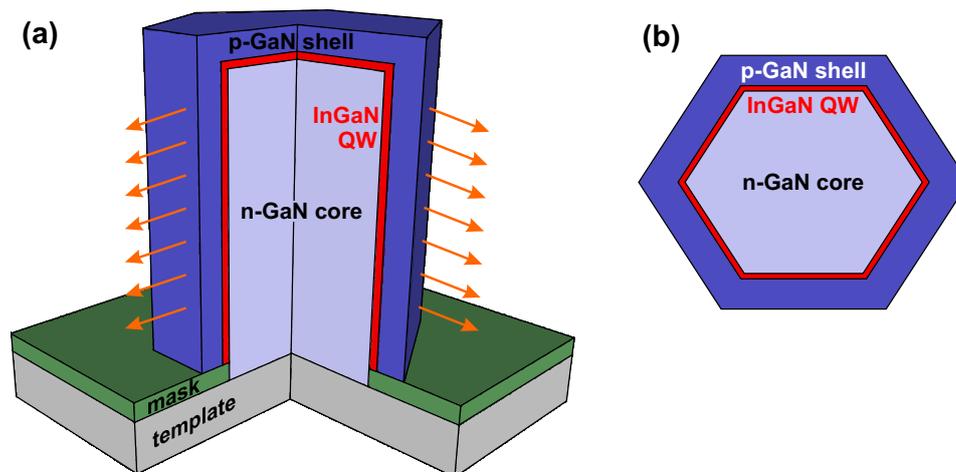


Abbildung 2.8: (a) Schematischer Aufbau einer dreidimensionalen InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED mit n-dotierten GaN-Kern, InGaN-Quantenfilm und äußerer p-dotierter GaN-Mantelschicht. Die axiale Querschnitt der Kern-Mantel-Struktur ist in (b) abgebildet.

Die aktive Zone, bestehend aus einem oder mehreren InGaN-Quantenfilmen, wird als Mantel-Schicht um den kompletten n-dotierten GaN-Kern epitaktisch abgeschieden. Das Wachstum des Quantenfilms auf die non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Oberflächen der Mikrosäulen reduziert den Einfluss der Polarisationsfelder bzw. des Quantum Confined Stark Effekt. Dies ermöglicht das Wachstum dickerer Quantenfilme ohne eine Verringerung des Überlapp-Integrals zwischen der Elektronen- und Loch-Wellenfunktion im Gegensatz zu c-planar orientierten Strukturen (siehe Kap. 2.2).

Als äußerste Mantel-Schicht schließt eine Magnesium-dotierte p-GaN-Schicht die Mikrosäulen-LED ab. Die hohe Aktivierungsenergie von Magnesium in GaN von ca. 170 - 190 meV erschwert jedoch die

p-Dotierung, sodass bei Raumtemperatur weniger als 10% der Mg-Akzeptoren ionisiert sind [100, 101]. Zusätzlich führt die Selbstkompensation ab einer Magnesium-Dotierkonzentration von $2 \cdot 10^{19} \text{cm}^{-3}$ zu einer Abnahme der Löcherkonzentration [102, 103].

Vergrößerung der optisch aktiven Leuchtfläche

Im Gegensatz zu konventionellen planaren LED-Strukturen, bei denen die effektive Leuchtfläche durch die Größe des Substrats begrenzt ist, skaliert die aktive Fläche von LEDs auf Basis von koaxialen InGaN/GaN-Mikrosäulen direkt mit der Mantelfläche der dreidimensionalen Strukturen [104, 105]. Eine effektive Erhöhung der Leuchtfläche wird durch die Vergrößerung des Aspekt-Verhältnisses der Säulenstruktur ermöglicht. Der zusätzliche Gewinn an aktiver Fläche berechnet sich nach [105] zu:

$$F = \frac{A_{3D}}{A_{2D}} = \frac{8\pi}{\sqrt{3}} \cdot \left(\frac{r}{a}\right)^2 \cdot \left(\frac{h}{2r}\right) \cdot \left(\frac{k}{r}\right) \quad (2.19)$$

Dabei entspricht r dem Radius der kompletten Mikrosäulen, h der Höhe und a dem Abstand der Säulen zueinander. Der letzte Term der Gleichung gibt das Verhältnis des Kernradius k zum Durchmesser der Säulen an. Den bestimmenden Faktor zur Vergrößerung der Leuchtfläche bildet das Aspekt-Verhältnis der Mikrosäulen ($h/2r$).

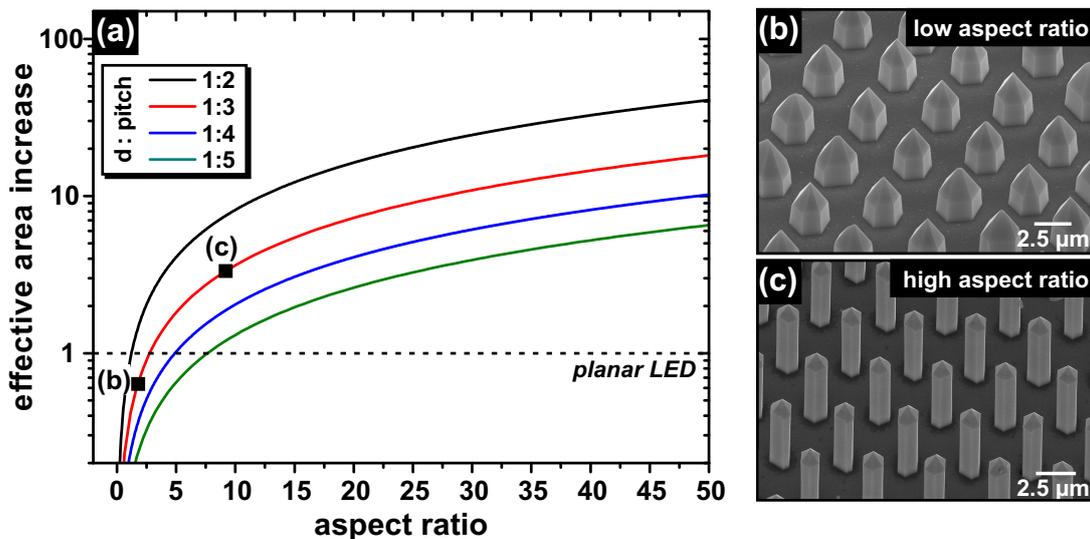


Abbildung 2.9: (a) Erhöhung der aktiven Leuchtfläche in Abhängigkeit vom Aspekt-Verhältnis der Mikrosäulen für verschiedene Säulendichten. Beispiele für Mikrosäulen mit (b) niedrigem und (c) hohem Aspekt-Verhältnis; die effektive Vergrößerung der Leuchtfläche ist für beide Fälle in (a) markiert.

In Abb. 2.9 ist die Erhöhung der aktiven Leuchtfläche in Abhängigkeit des Aspekt-Verhältnisses für verschiedene Mikrosäulendichten dargestellt. Das Verhältnis k/r wurde in diesem Fall als 0,9 festgelegt. Unter der Annahme, dass die Mikrosäulen 25% der Oberfläche auf dem Substrat einnehmen und ein Aspekt-Verhältnis von $h/2r = 10$ aufweisen, ist die effektiv leuchtende Fläche nach Gleichung 2.19 gegenüber einer planaren LED um den Faktor 10 erhöht. Zwei reale Beispiele für Mikrosäulen

mit einem niedrigem bzw. einem hohem Aspektverhältnis sind in den SEM-Aufnahmen in Bild 2.9(b) und (c) gezeigt.

Die vergrößerte aktive Leuchtfläche der Mikrosäulen-LED kann dazu dienen die Stromdichte in der aktiven Zone bei gleichbleibenden Gesamtstrom zu reduzieren, sodass der negative Einfluss der Auger-Rekombination und dem damit verbundenen „Efficiency-Droop“ verringert werden kann. Der „Efficiency-Droop“ bewirkt eine Abnahme der Quanteneffizienz mit zunehmender Stromdichte [16–18]. Die dominante Ursache für den „Efficiency-Droop“ ist ein Dreiteilchen-Prozess über die nicht-strahlende Auger-Rekombination [19]. In diesem Prozess rekombiniert ein Elektron-Loch-Paar unter der Abgabe von Energie und Impuls an einen weiteren Ladungsträger, der in ein erhöhtes Niveau in der Energiedispersion gehoben wird.

2.4.3 Epitaxieverfahren für GaN-basierte Nano- und Mikrosäulen

Das selektive Zonenwachstum von GaN-basierten Nano- und Mikrosäulen kann über unterschiedliche Epitaxieverfahren erfolgen. Dazu zählen die Molekularstrahlepitaxie (engl. *molecular beam epitaxy* — MBE) [90, 106, 107], die metallorganische Gasphasenepitaxie (engl. *metal organic vapor phase epitaxy* — MOVPE) [24–26] und die Hydridgasphasenepitaxie (engl. *hydride vapor phase epitaxy* — HVPE) [85, 108, 109]. Nachfolgend sollen die wichtigsten Eigenschaften der MBE und MOVPE erwähnt werden, für eine detaillierte Beschreibung sei auf Fremdliteratur verwiesen.

Molekularstrahlepitaxie

Das Kristallwachstum mittels MBE erfolgt im Ultrahochvakuum durch die Evaporation der hochreinen Ausgangsmaterialien aus Effusionszellen und durch die anschließende Deposition mittels gerichteten Molekularstrahl auf das geheizte Substrat [110]. Während des MBE-Prozesses werden die Effusionszellen, welche die metallischen Ausgangsstoffe (Ga, In, Al) beinhalten, erhitzt. Die geringen Schließzeiten der Shutter für die Effusionszellen ermöglichen sehr niedrige und kontrollierbare Wachstumsraten. Stickstoff kann durch einen Gasinjektor als NH_3 dem Wachstumsprozess zugeführt werden oder in der plasma-unterstützten MBE durch eine Plasmaquelle direkt als atomarer Stickstoff bereitgestellt werden.

Auf Grund der Abscheidung im Ultrahochvakuum, findet das Wachstum weit entfernt vom thermodynamischen Gleichgewicht statt und wird hauptsächlich durch die Kinetik der Oberflächenprozesse bestimmt [111]. Die Erhitzung des Substrats gewährleistet während des Prozesses zudem eine hohe Oberflächendiffusion der Atome. Im Vergleich zu anderen epiktaktischen Methoden wird jedoch eine deutliche niedrigere Wachstumstemperatur zwischen $750^\circ\text{C} < T < 900^\circ\text{C}$ zur Deposition von GaN-Nanosäulen verwendet [74, 97].

Die Vorteile der MBE liegen in der niedrigen Verunreinigungskonzentrationen der Schichten von unter 1 ppm und den abrupten Hetero- und Dotierübergängen im Schichtdickenbereich von Monolagen [111]. Für das Wachstum von Mikrosäulen mit Kern-Mantel-Geometrie ist das MBE-Verfahren auf Grund der niedrigen Wachstumsrate weniger gut geeignet [97]. Gute Resultate sind dagegen für die Deposition von Quantendisks [21, 112, 113] und Quantenpunkten [32–34] auf GaN-Nanosäulen mittels MBE erreicht wurden.

Metallorganische Gasphasenepitaxie

Im MOVPE-Verfahren erfolgt das kristalline Wachstum von GaN-Schichten direkt aus der Gasphase. Als Ausgangsstoffe dienen die hochreinen metallorganischen Verbindungen (z.B. Trimethylgallium (TMGa), Trimethylindium (TMIn), Trimethylaluminum (TMAI)), welche während des Wachstums durch ein Trägergas (H_2 , N_2) in den Reaktor geleitet werden [114, 115]. Gleichzeitig wird NH_3 als Stickstoffquelle in die Reaktionszone geführt. Oberhalb des geheizten Substrats erfolgt die Pyrolyse der Metallorganika in die metallischen Bestandteile und ihre organischen Komponenten sowie des Ammoniaks. Die organischen Reste werden mit dem Trägergas abtransportiert. Die Reaktanden diffundieren aus der Reaktionszone zum Substrat, wo das Schichtwachstum erfolgt.

Die typischen Wachstumstemperaturen zur Epitaxie von GaN-Mikrosäulen mittels MOVPE liegen im Bereich $1000^\circ C < T < 1100^\circ C$ [24, 26, 77]. Anders als zur Abscheidung planarer-Schichten erfolgt das Wachstum von Mikrosäulen bei niedrigem V/III-Verhältnis (< 200) [24]. Einen wesentlichen Einfluss auf die Morphologie der dreidimensionalen GaN-Strukturen hat die Komposition des Trägergases. Während bei reinem N_2 ausschließlich semi-polare Facetten auftreten, bilden sich mit zunehmenden H_2 -Gehalt non-polare $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten senkrecht zum Substrat aus [116]. Hohe Aspekt-Verhältnisse von Mikrosäulen werden typischerweise bei H_2/N_2 -Quotienten von über 2 erreicht [24]. Untersuchungen von Hartmann *et al.* zeigen weiterhin, dass hohe Silan-Flüsse das vertikale Wachstum von GaN-Mikrosäulen vertikal entlang der $[0001]$ -Richtung verstärken, wohingegen das laterale Wachstum unterdrückt wird [70]. Gleichzeitig führt der hohe Silan-Fluss während des Epitaxie-Prozesses zu einer hohen freien Ladungsträgerkonzentration. Bei zu hohen Si-Konzentrationen besteht jedoch die Gefahr, dass sich eine passivierende Si_3N_4 -Schicht an der Oberfläche bildet und das Wachstum der folgenden Mantel-Schichten unterdrückt [70, 117]. Für die Abscheidung der Mantel-Schichten um den Si-dotierten GaN-Kern werden wiederum Wachstumsparameter für das zweidimensionale Schichtwachstum verwendet.

Die Wachstumsrate von einigen $\mu m/h$ ermöglicht den großtechnischen Einsatz der MOVPE. Durch das selektive Wachstum mittels MOVPE wird zudem eine hohe Uniformität der Säulen über den kompletten Wafer, wie auch eine kontrollierbare Größe, Position und Zusammensetzung ternärer Verbindungen erreicht.

Die Vergrößerung der optisch aktiven Leuchtfläche durch das Wachstum von Mikrosäulen mit einer InGaN/GaN Kern-Mantel-Geometrie wurde erstmalig mittels MOVPE von Qian *et al.* in Ref. [20] demonstriert. Die erste weiße phosphorkonvertierte LED auf Basis von koaxialen InGaN/GaN-Mikrosäulen wurde durch die Einbettung der dreidimensionalen Strukturen in Indiumzinnoxid (ITO) und feinst-körnigem Phosphor in Ref. [89] erreicht.

3 Experimentelle Methodik zur hochortsaufgelösten Lumineszenz-Spektroskopie

In diesem Kapitel werden die experimentellen Grundlagen der verwendeten Messmethoden erläutert. Die Ergebnisse dieser Arbeit wurden mit Verfahren erzielt, die auf der Kombination von Elektronenmikroskopie und gleichzeitiger Lumineszenzdetektion beruhen. Durch die Korrelation von strukturellen, chemischen und optischen Eigenschaften auf Mikrometer- bzw. Nanometer-Skala, wird ein detaillierter Einblick in die Physik komplexer, dreidimensionaler Nanostrukturen ermöglicht. Im Fokus dieses Kapitels steht vor allem die Verbindung der analytischen Rastertransmissionselektronenmikroskopie und Kathodolumineszenz-Spektroskopie.

3.1 Nanostrukturen: Neue Herausforderungen an die Ortsauflösung der Kathodolumineszenz-Spektroskopie

Dreidimensionale Halbleiternanostrukturen stellen sowohl an die Wachstumsprozesse, als auch an die analytischen Charakterisierungsmethoden der strukturellen und optischen Eigenschaften neue Herausforderungen. Wie eingehend in Kapitel 2.4 erläutert, liegt Strukturgröße dieser neuartigen Bauelemente im Bereich weniger Nanometer, sodass eine sehr hohe örtliche Auflösung notwendig ist um einzelne Objekte zu analysieren. Insbesondere in der Betrachtung der optischen Eigenschaften muss deutlich zwischen der Lumineszenz vom Nanostrukturen-Ensemble und einzelner Nanosäulen unterschieden werden.

Für zukünftige Bauelemente wird zum einen eine hohe Uniformität des Nanostrukturen-Ensembles benötigt. Weisen die einzelnen Nano- und Mikrosäulen starke Unterschiede hinsichtlich der Lumineszenzcharakteristika, wie Emissionswellenlänge und Halbwertsbreite auf, so führt dies zu einer inhomogenen Linienverbreiterung des integralen Lumineszenzspektrums. Beispielhaft ist der Fall einer solchen Verbreiterung des Spektrums in Darstellung 3.1 gezeigt. Ursache für die inhomogene Linienverbreiterung des Ensembles sind lokale Größenfluktuationen und Kompositionsveränderungen der Nanostrukturen, welche bereits im Lithographie-Verfahren und/oder im Wachstumsprozess hervorgerufen werden können.

Neben der Uniformität des Nanostrukturen-Ensembles, ist auch eine homogene Lumineszenzcharakteristik und hohe kristalline Qualität einzelner Nanostrukturen entscheidend für die Effizienz von kommerziellen Bauelementen. Für ein detailliertes Verständnis des Wachstums von koaxialen Kern-Mantel-Strukturen ist eine systematische Bestimmung und Korrelation der strukturellen, chemischen und optischen Eigenschaften auf sub-Mikrometer-Skala essentiell. Vor allem lokale Inhomogenitäten wie Schichtdicken- und Kompositionsgradienten entlang von Nano- und Mikrosäulen,

wie auch Kompositionsfluktuationen im Bereich weniger Nanometer stehen im Fokus der Untersuchung. Dementsprechend entstehen neue Anforderungen an die Ortsauflösung von Lumineszenz-Spektroskopie-Verfahren zur Analyse einzelner Nano- und Mikrosäulen.

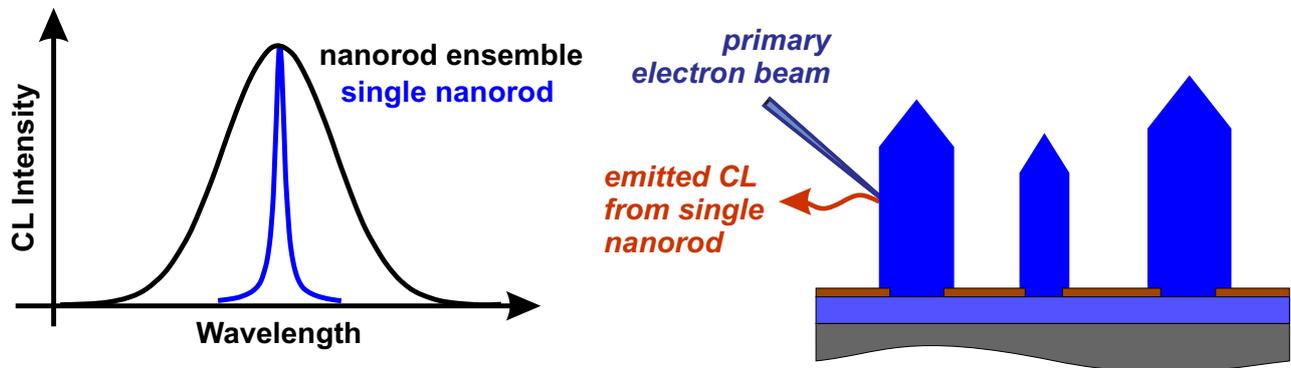


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der inhomogenen Linienverbreiterung im Spektrum als Folge von lokalen Unregelmäßigkeiten des Nanostrukturen-Ensembles.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Kombination von Rasterelektronenmikroskopie mit gleichzeitiger Lumineszenzdetektion, in diesem Falle der Kathodolumineszenz, zur Analyse dreidimensionaler Nanostrukturen angewandt. Grundlegend beruht der Prozess der Kathodolumineszenz (engl. *cathodoluminescence* — CL) auf der Erzeugung von Überschussladungsträgern durch die Wechselwirkung der Primärelektronen mit dem Festkörper. Dazu nimmt ein gebundenes Elektron aus dem Valenzband mindestens die Energie, die der charakteristischen Bandlücke des Festkörpers entspricht, von einem einfallenden Primärelektron auf. Dieses Elektron wird in das Leitungsband gehoben, wodurch ein positiv geladenes Loch im Valenzband zurück bleibt.

Durch die nicht-resonante Anregung aufgrund der höheren Primärelektronenenergie können die Elektronen über dielektrische Relaxationsprozesse zum lokalen energetischen Minimum des Leitungsbandes thermalisieren und die überschüssige Energie nichtstrahlend an Phononen abgegeben. Aufgrund des Nicht-Gleichgewichtszustandes kann es zur Rekombination von Elektron und Loch kommen. Dabei geben die Elektron-Loch-Paare die Energie in Form von Photonen wieder ab, welche dann als Kathodolumineszenz detektiert werden kann. Die spektrale Lumineszenz-Verteilung liefert materialspezifische Informationen, wie zum Beispiel die Bandlückenenergie oder die chemische Zusammensetzung.

Für die Analyse mittels ortsaufgelöster Lumineszenz-Spektroskopie wurden zwei sich ergänzende Verfahren eingesetzt:

- konventionelle Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rasterelektronenmikroskop — **SEM-CL** (engl. *scanning electron microscope cathodoluminescence spectroscopy*)
- Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop — **STEM-CL** (engl. *scanning transmission electron microscope cathodoluminescence spectroscopy*)

Der Vorteil der SEM-CL ist, dass die auf dem Wafer gewachsenen, dreidimensionalen Nanostrukturen über einen großen örtlichen Bereich (z. B. $15 \times 10 \mu\text{m}$) ohne spezielle Präparation untersucht werden

können. So können detailliert die Eigenschaften mehrerer Nano- und Mikrosäulen charakterisiert werden um statistische Analysen des Ensembles durchzuführen. Ein Nachteil dieser Methodik ist jedoch die begrenzte Ortsauflösung. In Folge von elastischen und inelastischen Streuprozessen der Primärelektronen werden diese, wie schematisch in Abb. 3.2(a) dargestellt, innerhalb der Probe gestreut bevor sie ihre kinetische Energie vollständig an den Festkörper abgegeben haben. Die Größe und Form des Anregungsvolumen haben somit einen erheblichen Einfluss auf die örtliche Auflösung der detektierten Kathodolumineszenz. Eine detaillierte Analyse der Ortsauflösung in Abhängigkeit vom untersuchten Material und Anregungsbedingung geschieht in Abschnitt 3.2.

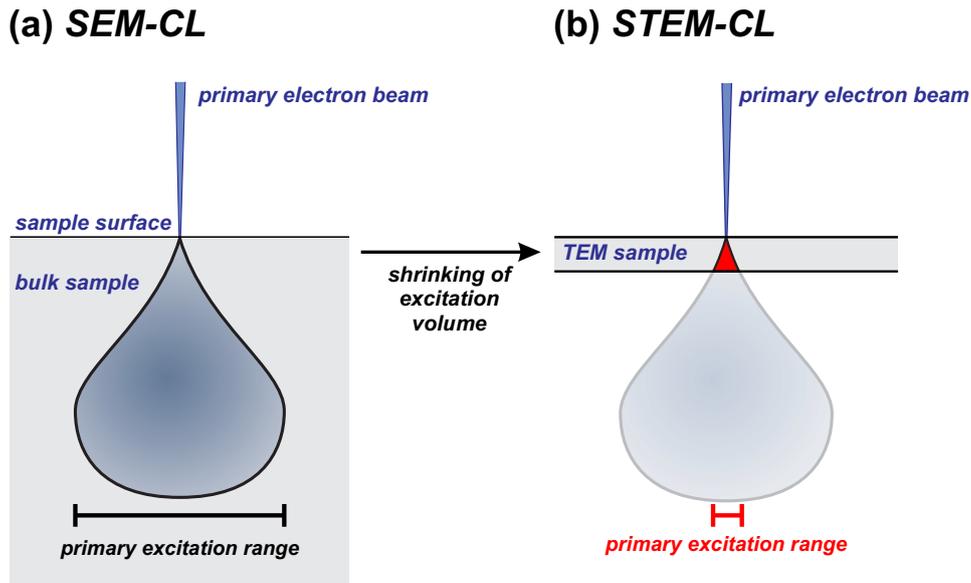


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des Anregungsvolumens für (a) SEM-CL und (b) STEM-CL. Durch den Übergang vom Volumenmaterial zu dünnen TEM-Folien wird das effektive Anregungsvolumen erheblich verkleinert, sodass die Auflösung für den Fall der STEM-CL auf wenige Nanometer vergrößert wird.

Eine Möglichkeit zur Verkleinerung des Wechselwirkungsvolumens und somit Verbesserung der örtlichen Auflösung liegt im Übergang von Volumenmaterial zu dünnen Folien im Rastertransmissionselektronenmikroskop, wie schematisch in Abb. 3.2(b) dargestellt. Durch die Anwendung der Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop kann die örtliche Auflösungsgrenze gegenüber der konventionellen SEM-CL über eine Größenordnung verbessert werden. Die Auflösungsgrenze der STEM-CL ist nur noch durch die Strahlaufweitung innerhalb der präparierten Dünnschichtprobe und der Diffusion der erzeugten Ladungsträger limitiert. So ermöglicht das STEM-CL Verfahren die Charakterisierung und Identifikation einzelner, nanometerdicker Schichten bis hin zu Quantenpunkten [43, 118–120]. Außerdem erlaubt die STEM-CL Analyse die gleichzeitige Untersuchung der elektronischen und kristallinen Struktur von einzelnen Defekten im Halbleiter, welche grundlegend für das Verständnis von zukünftigen Bauelementen sind [121, 122].

Anders als für die konventionelle SEM-CL ist für die STEM-CL Analyse jedoch eine aufwendige Dünnschicht-Präparation der Proben nötig, welche insbesondere für die Lumineszenzcharakterisierung notwendige Kriterien erfüllen muss. In Kapitel 3.3 wird der Aufbau und die Funktionsweise

der STEM-CL Apparatur detailliert erläutert, sowie auf die angewandte Dünnschicht-Präparation eingegangen.

3.2 Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rasterelektronenmikroskop

In dieser Arbeit wurden die Kathodolumineszenz-Untersuchungen an einem modifizierten Rasterelektronenmikroskop vom Typ JEOL JSM S6400 durchgeführt. Eine detaillierte Beschreibung des experimentellen Aufbaus ist in Referenz [123] erläutert, daher soll hier nur kurz auf die Messapparatur eingegangen werden.

Der schematische Aufbau der SEM-CL Apparatur ist in Abb. 3.3 dargestellt. Die Elektronenquelle besteht aus einer Lanthanhexaborid-Kathode (LaB_6), die über einen Filament-Heizstrom zur thermischen Emission von Elektronen angeregt wird. Über den Wehneltzylinder und die Anode werden die emittierten Elektronen auf die optische Achse fokussiert und beschleunigt. Die Beschleunigungsspannung kann für verschiedenste Anwendungen von $0,2 \text{ kV} \leq U_{\text{acc}} \leq 40 \text{ kV}$ variiert werden. Der Strahlstrom des Elektronenmikroskops liegt typischerweise zwischen $50 \text{ pA} \leq I_B \leq 1500 \text{ pA}$ und kann nach Einfahren eines Faraday-Cups in den Strahlengang direkt ermittelt werden.

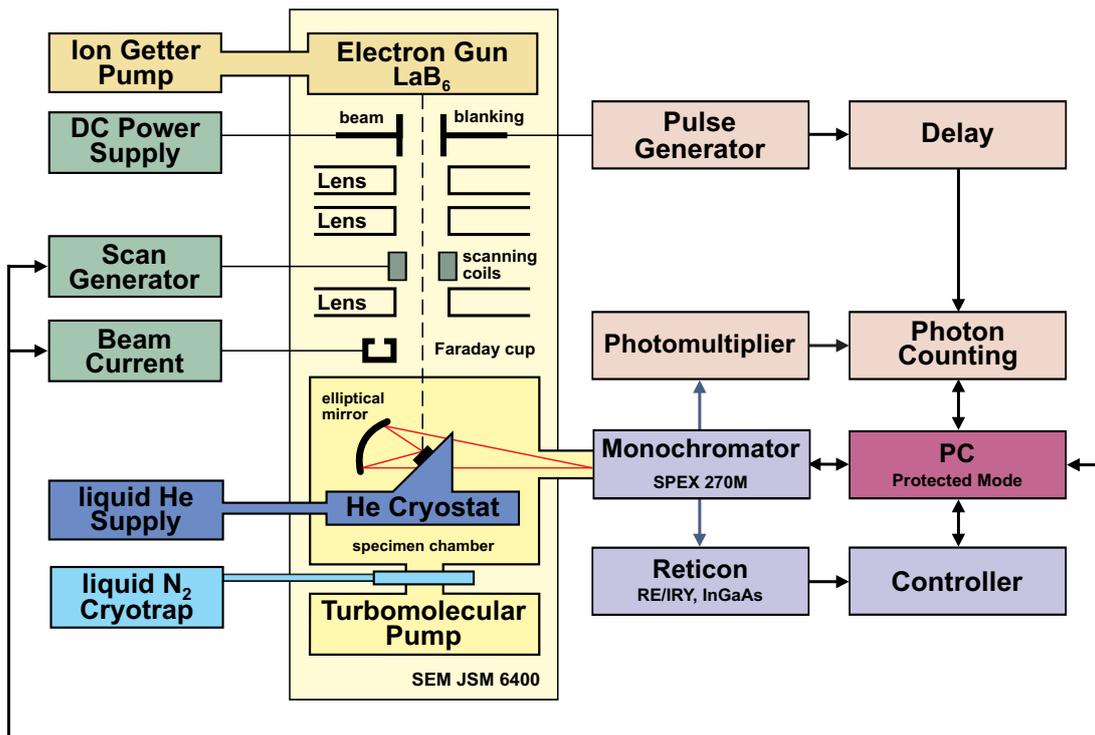


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung des Messaufbaus für Kathodolumineszenz-Messungen mit: Elektronenquelle (LaB_6 -Kathode), dem elektromagnetischen Linsensystem in der Vakuumsäule, der Probenkammer mit Durchfluss-Heliumkryostat sowie der Einkopplung über den elliptischen Spiegel in das Detektorsystem für orts- und zeitaufgelöste Experimente [123].

Das elektronenoptische Linsensystem, bestehend aus den Kondensorlinsen und der Objektivlinse, dient der Verkleinerung des „cross-overs“. Die Objektivlinse fokussiert den Elektronenstrahl schließlich auf die Probe, welche entweder plan oder im 45° Winkel auf dem Probenhalter angebracht ist.

Im Probenhalter integriert ist ein Heliumdurchflusskryostat, der Messungen zwischen 4,2 K und Raumtemperatur erlaubt. Die Wahrscheinlichkeit für Photon-Phonon-Wechselwirkungen wird durch tiefe Temperaturen reduziert, die Verringerung der thermischen Gitterschwingungen führt so zu einer Verkleinerung der Lumineszenz-Linienbreite. Außerdem kann die thermische Delokalisierung der Exzitonen unterbunden werden, wodurch die aufgenommenen Spektren ein direktes Abbild der lokal vorhandenen Materialstruktur darstellen.

Die erzeugte Kathodolumineszenz wird über einen elliptischen Glasspiegel gesammelt und auf den Eintrittsspalt eines Monochromators vom Typ SPEX 270M (Czerny-Turner Anordnung) fokussiert. Im Monochromator wird das Licht spektral zerlegt und anschließend von einem der zwei Detektoren an den beiden Ausgängen des Monochromators erfasst. Für ortsaufgelöste Messungen wird eine peltiergekühlte, intensivierete Silizium-Diodenzeile (Retikon) mit 512 Kanälen, welche im Spektralbereich zwischen $330 \text{ nm} < \lambda < 900 \text{ nm}$ empfindlich ist, verwendet. Die höchste erzielbare spektrale Auflösung der Apparatur liegt bei Verwendung eines holografischen 3600 Linien/mm Gitters bei 0,09 nm [123].

Für zeitaufgelöste Messungen wird das Signal an einen Photomultiplier mit Micro-Channel-Plate geleitet, womit der zeitliche Zerfall der Lumineszenz in Form von Transienten aufgenommen wird.

Orts- und spektral aufgelöste SEM-CL Messungen

Im ortsaufgelösten Messverfahren wird der Elektronenstrahl mittels eines Steuerrechners rasterförmig über einen gewählten Probenbereich bewegt. Die Positionierung des Elektronenstrahls erfolgt über die an die Ablenspulen im Mikroskop angelegten elektrischen Spannungen und Ströme. Die durch die inelastische Streuung an den Hüllenelektronen des Festkörper generierten Sekundärelektronen werden mittels eines Everhart-Thornley-Detektors abgesaugt und als Sekundärelektronensignal (SE) im Graustufen-Bild anschließend dargestellt. Infolge der niedrigen Energien der erzeugten Sekundärelektronen ($< 50 \text{ eV}$) können nur oberflächennahe Sekundärelektronen die Probe verlassen und zum SE-Kontrast beitragen. Wie oben erläutert wird gleichzeitig zum SE-Signal die emittierte Kathodolumineszenz detektiert und als Spektrum je Messpunkt aufgenommen.

Die Abrasterung findet entweder als Mapping mit 200×256 Punkten oder als Linescan statt. Im vierdimensionalen Datensatz liegt dann das Kathodolumineszenz-Signal in Abhängigkeit von Ort und Wellenlänge $I_{\text{CL}}(x, y, \lambda)$ sowie das SE-Signal in Abhängigkeit vom Ort $\text{SE}(x, y)$ vor. Damit ist eine direkte Korrelation von Struktur und lokalen Lumineszenzeigenschaften möglich. Die Auswertung der Datensätze erfolgt mit der eigens entwickelten Software **XKL** der Festkörperphysik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg. Weiterführende Erläuterungen zur Funktionsweise der ortsaufgelösten SEM-CL Apparatur sind in den Referenzen [124, 125] beschrieben.

Einer der wichtigsten Aspekte der Kathodolumineszenz-Spektroskopie ist das örtliche Auflösungsvermögen, welches durch das Wechselwirkungsvolumen des Primärelektronenstrahls beschränkt ist. Dieses Anregungsvolumen ist deutlich größer als die Abmessungen des Fokuspunkts des eingestrahlten Elektronenstrahls. Wie bereits in Abschnitt 3.1 erläutert, unterliegen die Primärelektronen elastischen und inelastischen Streuprozessen im Festkörper. Innerhalb dieses Wechselwirkungsvolumens werden Elektron-Loch-Paare erzeugt, welche innerhalb ihrer Lebensdauer örtlich diffundieren können und anschließend rekombinieren.

Zur Bestimmung des Anregungsvolumens wurden für einen GaN Volumenkristall mit Hilfe der Simulationssoftware **CASINO** Monte-Carlo-Berechnungen der Elektronen-Trajektorien des Primärstrahls angefertigt und in Abb. 3.4(a) dargestellt [126]. Simuliert wurden 10^3 Elektronen-Trajektorien bei einer Beschleunigungsspannung von $U_{\text{acc}} = 5$ kV. Innerhalb der GaN-Schicht erfahren die eingestrahelten Primärelektronen Mehrfachstreuung, was verbunden ist mit einer Richtungsänderung der Elektronen.

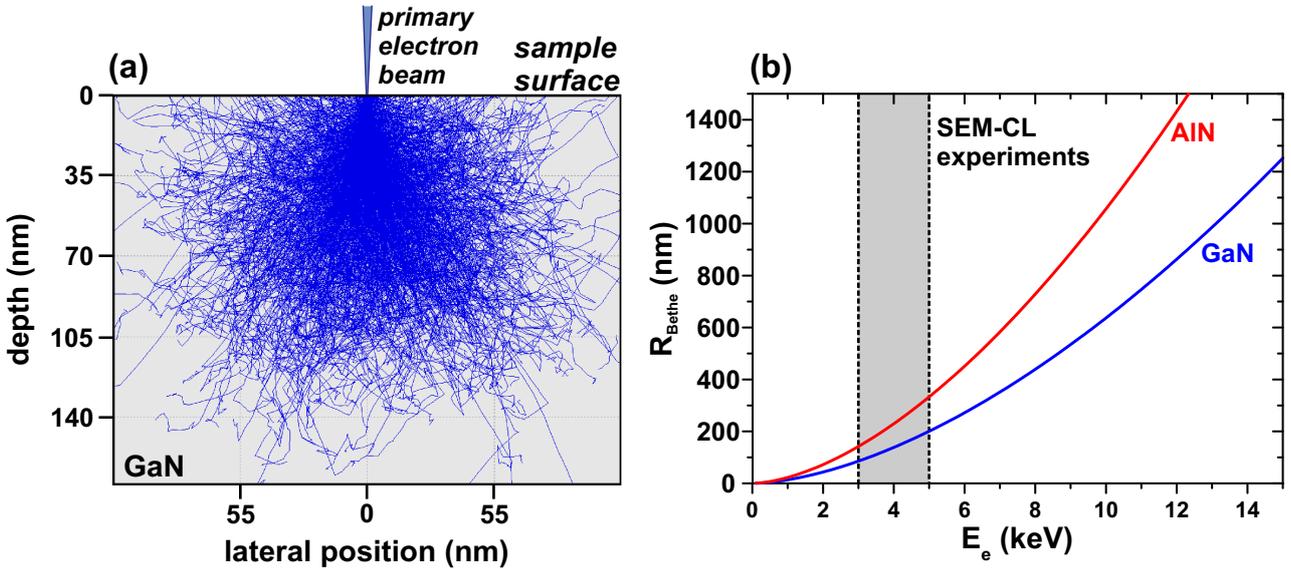


Abbildung 3.4: (a) Monte-Carlo-Simulation für 10^3 Elektronen-Trajektorien im GaN Volumenmaterial bei einer Beschleunigungsspannung von $U_{\text{acc}} = 5$ kV; (b) Abhängigkeit des Bethe-Volumens von der Beschleunigungsspannung für GaN und AlN nach Gleichung 3.1.¹

Die Analyse der Elektronen-Trajektorien zeigt deutlich, dass es zu einer starken Aufweitung des Elektronenstrahls und somit zur Ausbildung eines birnenförmigen Anregungsvolumens kommt. In diesem Anregungsvolumen kann jedes eingestrahelte Primärelektron eine Kaskade von bis zu 10^3 Sekundärelektronen erzeugen, welche wiederum Elektronen aus dem Valenzband in das Leitungsband anheben [127]. Durch die mittels Monte-Carlo-Simulation bestimmten Elektronen-Trajektorien lässt sich bestimmen, dass 95% der Elektronen innerhalb eines Radius von 60 nm um den einfallenden Elektronenstrahl wechselwirken.

Ein weiterer Ansatz zur Bestimmung des Wechselwirkungsvolumens kann in der Bethe-Theorie über die Betrachtung des Energieverlustes pro Wegstrecke geschehen. Hieraus lässt sich die Gesamtlänge des von den Primärelektronen im Festkörper zurückgelegten Weges, als sogenannte Bethe-range, bestimmen. Eine Annäherung dieser Bethe-range erfolgt nach Kanaya und Okayama mittels [128]:

$$R_{\text{Bethe}} = 0,0276 \cdot \frac{A}{\rho \cdot Z^{8/9}} \cdot E_e^{5/3} \quad [\mu\text{m}]. \quad (3.1)$$

Dabei entspricht A der relativen Atommasse (in $\frac{g}{mol}$), ρ der Dichte in $\frac{g}{cm^3}$, Z der Ordnungszahl des Materials und E_e der Energie der einfallenden Elektronen in keV . Die Abhängigkeit der Bethe-range

¹Monte-Carlo-Simulationen zur Bestimmung des Anregungsvolumens im Rasterelektronenmikroskops wurden mit der Simulationssoftware CASINO v. 2.4.8.1 (<http://www.gel.usherbrooke.ca/casino/index.html>) angefertigt.

von der Beschleunigungsspannung ist in Abb. 3.4(b) für GaN und AlN abgetragen. Mit zunehmender Beschleunigungsspannung nimmt die Bethe-range exponentiell zu. Im Fall von GaN beträgt die Bethe-range für die in der SEM-CL verwendeten Beschleunigungsspannungen zwischen $3 \text{ kV} < U_{\text{acc}} < 5 \text{ kV}$ 90 nm bis 200 nm.

Die Ausdehnung des Anregungsvolumens ist im Allgemeinen jedoch kleiner als die Bethe-range, da auf Grund von Mehrfachstreuung keine geradlinige Ausbreitung der Elektronen vorliegt, sondern, wie in der Monte-Carlo-Simulation ersichtlich, mehrere Richtungsänderungen der Elektronen-Trajektorien auftreten können. Nichtsdestotrotz liegt die Ortsauflösung der SEM-CL bereits in der Größenordnung der in dieser Arbeit untersuchten Nanosäulen, sodass eine Charakterisierung einzelner Strukturen mit der SEM-CL nur schwer möglich ist.

Zeitaufgelöste SEM-CL-Messungen

Zur Analyse der Rekombinationskinetik von Nano- und Mikrosäulen wurden zeitaufgelöste SEM-CL-Messungen durchgeführt [123, 124]. Anders als für die ortsaufgelösten Messungen erfolgt für die zeitaufgelösten CL-Messungen eine gepulste Anregung der Probe, wobei der Elektronenstrahl über eine elektrostatische „beam-blanking“ periodisch ein- und ausgetastet wird. Hierfür wird durch einen Pulsgenerator ein rechteckförmiger Puls variabler Höhe und Länge mit fester Periodizität erzeugt. Ein 1:10-Teiler erzeugt zudem zwei Rechteckpulse unterschiedlicher Pulshöhe.

Der erste Rechteckpuls dient als Trigger für die „beam-blanking“ zum Einschalten (invertierte Anordnung) des Elektronenstrahls, sodass dieser entlang der optischen Achse auf die Probenoberfläche trifft um dort für die Dauer der Pulslänge periodisch in Abhängigkeit von der Wiederholfrequenz Lumineszenz anzuregen. Die Pulslänge ist so gewählt, dass die angeregte Lumineszenz den Quasi-Gleichgewichts-Zustand zwischen der Rekombinations- und Generationsrate der Elektron-Loch-Paare erreicht.

Die entstehende Lumineszenz wird mittels des Monochromators spektral zerlegt und durch den Photomultiplier detektiert, der durch eine „microchannel plate“ (MCP) intensiviert ist. Der MCP-PMT gibt einen Spannungspuls aus, der einem „constant fraction timing discriminator“ (CFT) übergeben wird um den genauen Eintreffzeitpunkt des Photons zu bestimmen. Dieser generiert einen normierten negativen Spannungspuls, der an den Start-Eingang eines „time to amplitude converter“ (TAC) weitergegeben wird. Der zweite Rechteckpuls dient als Referenzzeitpunkt für die Koinzidenzmessung. Um den genauen Eintreffzeitpunkt mit Hilfe von Flankentriggerung zu bestimmen, wird der Puls über ein Verzögerungselement einem Flanken-Trigger zugeführt. Daraufhin erzeugt der Trigger einen negativen Spannungspuls, der wiederum an den Stop-Eingang des TAC weitergegeben wird.

In Abhängigkeit von der detektierten spektralen Intensität entsteht durch die Verteilung von Einzelphotonenereignissen mithilfe des TACs eine Pulshöhenverteilung, deren Histogramm von einem sogenannten „multichannel analyser“ (MCA) erstellt wird. Das entstehende Histogramm stellt über die Pulshöhenverteilung die zeitliche Entwicklung der Kathodolumineszenz-Intensität des ausgewählten Spektralbereiches als Transiente dar.

3.3 Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop

Für die hochauflösende Charakterisierung einzelner Nanosäulen mit Durchmessern $d < 500$ nm bzw., zur Untersuchung einzelner Schichten in coaxialen Nanosäulen, ist die Ortsauflösung der konventionellen SEM-CL nicht ausreichend. Wie eingehend erläutert, kann eine Verbesserung der Ortsauflösung bis hin zu wenigen Nanometern durch den Übergang zur CL-Spektroskopie an dünnen Schichten ($t < 200$ nm) im Rastertransmissionselektronenmikroskop erreicht werden.

Erste Versuchsdurchführungen zur Anwendung von Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop gehen auf Pennycook *et al.* und Petroff *et al.* Ende der 1970er Jahre zurück [38, 129]. Die Arbeitsgruppe von Pennycook verfolgte hierbei vor allem den Ansatz das emittierte Licht direkt über einen im TEM-Probenhalter integrierten Spiegel auszukoppeln. Anschließend wurde das Licht über eine Faseroptik in den Monochromator eingekoppelt und mittels Photomultiplier detektiert [39, 130, 131]. Ein besonderer Vorteil dieses Systems ist, dass die Probe zur Optimierung des Streukontrastes, und folglich der STEM-Bildgebung, verkippt werden kann. Jedoch erlaubt dieses System keine Tieftemperatur-Messungen, welche vor allem in der Lumineszenz-Spektroskopie von größter Wichtigkeit sind.

Anders, als die Gruppe von Pennycook implementierten Petroff *et al.* das CL-Kollektorsystem direkt innerhalb des Transmissionselektronenmikroskops. Hierfür wurde oberhalb der Probe ein elliptischer Spiegel angebracht, welcher die Lumineszenz der Probe reflektiert und durch eine Faseroptik aus dem Mikroskop auskoppelt [132–134]. Das Licht wurde anschließend in einem Monochromator spektral zerlegt und mittels Photomultiplier detektiert. Dieses System bietet den erheblichen Vorteil, dass die TEM-Probe innerhalb eines modifizierten Tieftemperatur-Probenhalters mit Kryostat heruntergekühlt werden kann. Unter Verwendung dieses Ansatzes wurden von Yamamoto *et al.*, wie auch von Albrecht *et al.*, erste Tieftemperatur STEM-CL Messungen an Versetzungen in GaN [40, 41] berichtet.

Da in der Halbleiter-Spektroskopie insbesondere Tieftemperatur-Untersuchungen eine herausragende Bedeutung haben, wird in dieser Arbeit der von Petroff *et al.* entwickelte Ansatz zur Implementierung des Spiegels direkt im Mikroskop zur STEM-CL Analyse von Nanostrukturen angewandt.

Grundlage der in dieser Arbeit verwendeten Apparatur ist ein Transmissionselektronenmikroskop der Firma FEI vom Typ Tecnai F20, das für CL-Spektroskopie modifiziert wurde. Eine schematische Darstellung der Apparatur ist in Abbildung 3.5 ersichtlich. Das System kann im Wesentlichen in vier Hauptkomponenten unterteilt werden, welche jeweils unterschiedliche Aufgaben erfüllen:

- Rastertransmissionselektronenmikroskop — Erzeugung und Rasterung des Elektronenstrahls
- Detektoren für transmittierte Elektronen — Strukturelle und chemische Abbildung
- Kathodolumineszenz-System — Detektion der emittierten Lumineszenz
- TEM-Kryo-Probenhalter — Kühlung der Probe auf $T < 20$ K

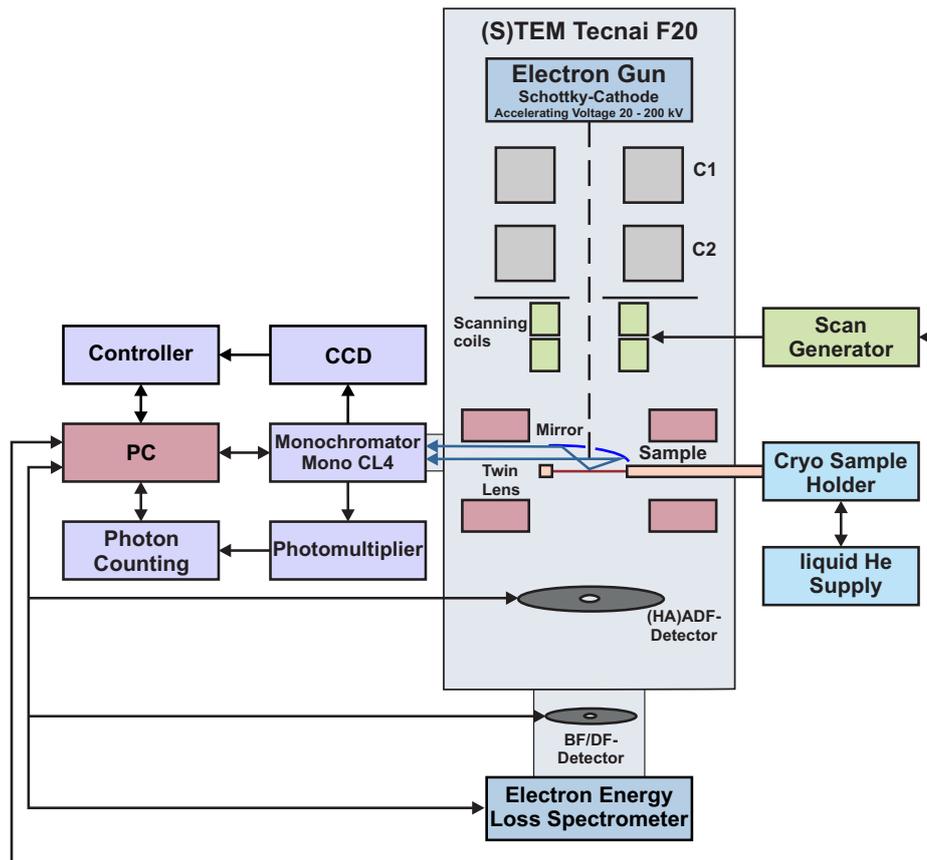


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung der STEM-CL Apparatur für hochauflösende Kathodolumineszenzuntersuchungen und Elektronenenergieverlust-Spektroskopie.

Wie auch im SEM werden die Elektronen im STEM aus einer Kathode emittiert und anschließend durch die Anode auf die gewünschte Energie beschleunigt. Über das elektronenoptische Linsensystem wird der Elektronenstrahl geformt und trifft anschließend auf die Probe. Anders als im SEM erfolgt im STEM die strukturelle Abbildung jedoch nicht durch Sekundärelektronen, sondern über transmittierte Elektronen. Zur Detektion der in der Probe wechselwirkenden Elektronen sind Hellfeld- und Dunkelfeld-Detektoren konzentrisch um die optische Achse angeordnet. Durch die gleichzeitige Aufnahme von ungebeugten und in weite Winkel gestreuten Elektronen, kann sowohl eine strukturelle, als auch eine chemische Abbildung der Realstruktur stattfinden. Darüber hinaus kann die Energieverteilung des ungebeugten Elektronenstrahls durch ein EEL-Spektrometer (engl. *electron energy loss spectroscopy*) analysiert werden.

Simultan zur Detektion der transmittierten Elektronen geschieht die Aufzeichnung der in der Probe generierten Kathodolumineszenz. Mittels eines Parabolspiegels oberhalb der Probe wird das emittierte Licht auf den Eintrittsspalt eines Monochromator fokussiert und kann spektral zerlegt werden. Zur Aufnahme und Weiterverarbeitung der Signale dient sowohl ein Paralleldetektor, wie auch ein Photomultiplier.

Die zu untersuchende TEM-Lamelle befindet sich in einem TEM-Kryo-Probenhalter, welcher speziell Tieftemperaturmessungen bei $T < 20$ K ermöglicht. Auf die einzelnen Komponenten des STEM-CL Systems soll in den folgenden Abschnitten detailliert eingegangen werden.

3.3.1 Aufbau und Funktionsweise des Transmissionselektronenmikroskops

Elektronenquelle

Die Anforderungen für hochauflösende CL-Untersuchungen im Transmissionselektronenmikroskop bestimmen die Art der genutzten Elektronenquelle, wobei wichtige Kriterien die Energieverteilung der Elektronen, die Strahlstromstabilität und die Kohärenzlänge sind [135].

Das verwendete Transmissionselektronenmikroskop Tecnai F20 nutzt für die Elektronenstrahlerzeugung eine Schottky-Feldemissionskathode (engl. *schottky field emission gun*). Diese hat zwar gegenüber der kalten Feldemissionselektronenquelle den Nachteil, dass sie eine breitere Energieverteilung, geringere Quellgröße und damit geringere Kohärenzlängen besitzt. Jedoch bietet die Schottky-FEG den Vorteil niedriger Rauschniveaus und hoher Strahlstromstabilität, welche insbesondere für CL-Untersuchungen wichtige Kriterien sind.

Die Kathode besteht aus einem heizbaren Filament und einer Wolfram-Einkristallspitze, die mit einer Zirkoniumlegierung beschichtet ist. Zwischen Schottky-Kathode und Extraktionsanode wird zur Extraktion der Elektronen eine Spannung von 4,5 kV angelegt und das Filament zusätzlich geheizt. Die Extraktionsanode ist als Wehnelt-Zylinder ausgelegt, den die Elektronen durch ein Loch in der optischen Achse verlassen können. Der auftretende Schottky-Effekt führt zu einer Verringerung der Potentialbarriere, die die Elektronen überwinden müssen. Um die verbleibende Potentialbarriere überwinden zu können, werden die Elektronen durch das Aufheizen in höhere Energieniveaus angehoben. Gleichzeitig können aufgrund der geringen Weite der Potentialbarriere auch Tunneleffekte auftreten. Die Energie der emittierten Primärelektronen wird mittels der an der Beschleunigungsanode anliegenden Spannung zwischen $20 \text{ kV} \leq U_{\text{acc}} \leq 200 \text{ kV}$ geregelt.

Vakuumsystem

Für ein stabiles Arbeiten der Feldemissionskathode sind Ultrahochvakuumbedingungen ($p < 10^{-6} \text{ Pa}$) notwendig. Der Druck im Kathodenraum wird mittels zweier Ionengetterpumpen reduziert. Die TEM-Säule wird durch ein Vakuumsystem evakuiert, welches aus einer Turbomolekularpumpe als Vorpumpe und zwei Ionengetterpumpen besteht. Im Bereich der Beobachtungskammer kommt zusätzlich eine Öldiffusionspumpe zum Einsatz. Dieser Raum ist vom Rest der Säule mittels einer differentiellen Blende abgetrennt, um eine Kontamination der Probe mit Öldämpfen zu verhindern.

Elektronenoptik im STEM- und TEM-Modus

Nachdem die Elektronen durch das Anodensystem beschleunigt wurden, geschieht die Strahlformung zur Abbildung des Elektronenstrahls auf die Probe, sowie die Auswahl der Strahlkonvergenz und -intensität durch das elektronenoptische System. Im Tecnai F20 besteht dieses Beleuchtungssystem aus dem Kondensorlinsensystem (C1, C2) und der Objektivlinse (siehe Abb. 3.5). Die Kondensorlinsen, welche konzentrisch um die optische Achse angeordnet sind, dienen zur Formung des Elektronenstrahls und beeinflussen die Strahlstromdichte bzw. Kohärenz. Nach der Elektronenextraktion sorgt die C1-Linse für einen ersten „cross-over“ oberhalb der C2-Linse. Über die Kondensorblende (C1) werden zudem die Elektronen außerhalb der optischen Achse ausselektiert. Die Beleuchtung der Probe geschieht anschließend über die obere Kondensorobjektivlinse. Das Tecnai F20 bietet durch die Verwendung einer Twin-Linse den großen Vorteil, dass ein Wechsel zwischen der parallelen Ausleuchtung

der Probe im konventionellen TEM-Modus und der Untersuchung der Probe mittels eines fokussierten Elektronenstrahls im Raster-TEM-Modus möglich ist. Hierfür kann zwischen der Kondensorobjektiv-Linse und der Kondensor-Linse C2 eine sogenannte Minikondensor-Linse aktiviert werden. Ist diese Linse aktiv, erhält man einen parallelen Strahl für Untersuchungen im TEM-Modus. Bleibt die Minikondensor-Linse inaktiv, erhält man einen konvergenten Strahl auf der Probe für den STEM-Modus. Der vereinfachte Strahlengang für beide Modi ist in Darstellung 3.6 schematisch abgebildet. Die eingezeichneten Winkel und Abstände sind der verbesserten Anschaulichkeit nicht skalenkonform.

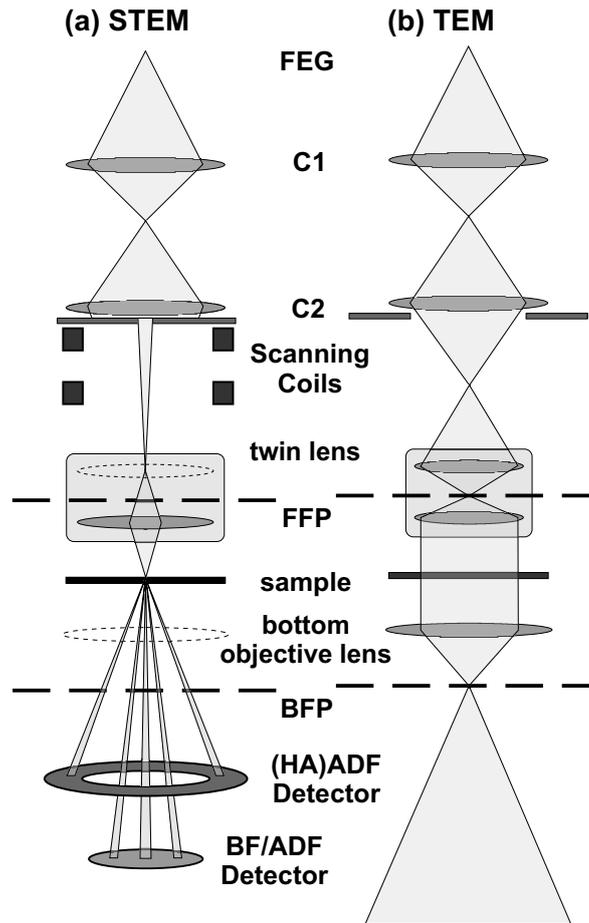


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung des Strahlengangs der Elektronen; (a) bei inaktiver Minikondensor-Linse liegt ein konvergenter Strahl vor; (b) bei aktiver Minikondensor-Linse bildet sich der „cross-over“ in der vorderen Fokalebene, sodass ein paralleler Strahl entsteht [135].

Zur analytischen Untersuchung der Kathodolumineszenz ist ein konvergenter Strahl zur Abrasterung des Probenbereichs im STEM-Modus notwendig. Dabei ist der Strahldurchmesser entscheidend für das strukturelle Auflösungsvermögen des Mikroskops. Zur Ermittlung des Strahldurchmessers wurde die Intensitätsverteilung des Elektronenstrahls auf der CCD-Kamera (Orius SC600A, GATAN) im *nano-probe*-Modus analysiert. Die Halbwertsbreite des kleinstmöglichen Durchmessers des Elektronenstrahls (Spotsize 11, Blendendurchmesser; $C1 = 2 \text{ mm}$; $C2 = 50 \text{ }\mu\text{m}$) wurde zu $d_{\text{beam}} = 0,6 \text{ nm}$ bestimmt. Grundsätzlich erhöht sich mit Vergrößerung der C2-Blende auch der Wert für die Halbwertsbreite des Elektronenstrahldurchmessers.

Wie in Abbildung 3.6(a) dargestellt, sind zwischen der C2-Linse und der Twin-Linse zwei Paar Rasterpulen (engl. *scanning coils*), sogenannte Grigson-Spulen, angeordnet mit denen der konvergente Elektronenstrahl über die Probe geführt wird. Damit die Elektronenprobe an jedem Rasterpunkt parallel zur optischen Achse auf die Probenoberfläche trifft, wird der Strahl nicht einfach verkippt, sondern oberhalb der Twin-Linse verschoben. Somit sind die Bedingungen für den geformten Strahl für alle Positionen auf der Probe gleich, ohne dass die Strahlform beeinträchtigt wird. Die Probe selbst befindet sich zwischen dem oberen und unteren Polschuh. Nach der Interaktion des Elektronenstrahls mit dem bestrahlten Probenbereich können die transmittierten Elektronen mittels mehrerer Detektoren aufgezeichnet werden. Für jeden einzelnen Bildpunkt wird der Strahl stationär gehalten und die jeweiligen Signale sequentiell detektiert.

Neben dem Sondendurchmesser ist vor allem der Strahlstrom ein wichtiger Parameter für CL-Messungen und beeinflusst maßgebend die Untersuchung. Hohe Strahlstromdichten können, wie bereits in Kapitel 2.2 erläutert, zu einer Abschirmung der im GaN vorhandenen elektrischen Felder führen. Insbesondere die Wahl der Kondensorblenden C1 und C2, wie auch die Spotsizes im STEM-Modus, haben einen relevanten Einfluss auf den Strahlstrom. In den hier durchgeführten Kathodolumineszenz-Messungen wurde der Durchmesser der Kondensorblende C1 konstant auf 2 mm gehalten. Der Durchmesser der Kondensorblende C2 wurde jeweils so gewählt, dass ein Optimum zwischen CL-Intensität und struktureller Auflösung besteht.

Zur Messung des Strahlstroms wurde ein separater Probenhalter mit integriertem Faraday-Cup verwendet. In Graph 3.7 ist die Abhängigkeit des Strahlstroms vom Durchmesser der Kondensorblende C2 und Spotsizes zusammengefasst. Eine Verringerung des Durchmessers der Kondensorblende C2, wie auch die Verkleinerung der Spotsizes, führen zu einer deutlichen Absenkung des Strahlstroms. So kann der Strahlstrom über nahezu drei Größenordnungen in den Experimenten verändert werden.

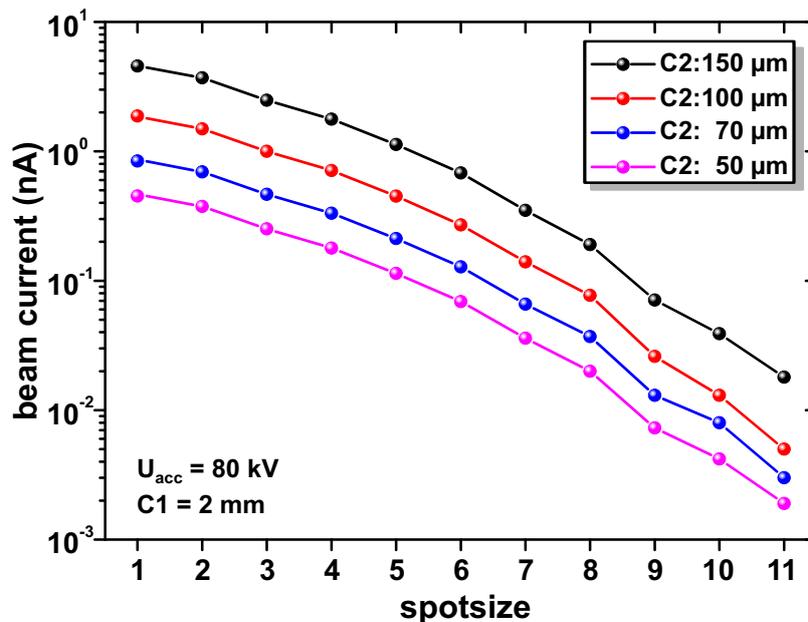


Abbildung 3.7: Abhängigkeit des Strahlstroms im STEM-Modus von der Aperturblendeneinstellung der Kondensorblende C2 und der Spotsizes bei $U_{\text{acc}} = 80 \text{ kV}$ und $C1 = 2 \text{ mm}$.

Zur strukturellen Analyse von Kristalldefekten, wie Versetzungen und Stapelfehler, wird vor allem der konventionelle TEM-Modus angewandt. Hierfür wird ein paralleler, kohärenter Elektronenstrahl wie in Abb. 3.6(b) benötigt.

Der Übergang vom STEM-Modus zum TEM-Modus kann durch das Prinzip der Reziprozität beschrieben werden. Dieses stellt eine Erweiterung der Umkehrbarkeit von Strahlengängen in der geometrischen Optik auf die Wellenoptik dar. Das Reziprozitätsprinzip besagt, dass die Amplitude einer Welle, deren Quelle im Punkt B liegt, in Punkt A gleich der Amplitude in B ist, wenn die Quelle nach A verlegt wird [136].

Wie oben erläutert ist im TEM-Modus die Minikondensor-Linse aktiv, sodass eine parallele Elektronenquelle zur Beleuchtung der Probe zur Verfügung steht. Im Fall eines parallelen Strahls werden die in der Probe gebeugten Elektronen mit Hilfe der unteren Objektivlinse wieder gesammelt. Die Qualität der Objektivlinse bestimmt maßgeblich das Auflösungsvermögen des Mikroskops. Im weiteren Strahlengang werden zwei Bilder hinter der Objektivlinse erzeugt: ein Beugungsbild, das sich in der hinteren Brennebene der Objektivlinse befindet, und ein erstes Zwischenbild der Probe in der Bildebene der Objektivlinse. Im unteren Teil des Mikroskops befindet sich das Abbildungssystem. Dieses besteht aus einer Zwischenlinse und einem Projektivlinsensystem. Mit der Änderung der Brennweite der Zwischenlinse kann ausgewählt werden, ob ein Beugungsbild oder ein Abbild der Probe in der Detektorebene erzeugt wird [137].

Werden die Elektronen von der Zwischenlinse so fokussiert, dass sich ihre Gegenstandsebene in der hinteren Brennebene der Objektivlinse befindet, erhält man ein Beugungsbild. Befindet sie sich in der ersten Zwischenbildebene der Objektivlinse, wird ein Bild der Probe in der Detektorebene erzeugt.

3.3.2 Abbildungsmodi im STEM

Physikalische Grundlage der Transmissionselektronenmikroskopie ist die Wechselwirkung der beschleunigten Primärelektronen mit dem Kristall. Generell kann die Wechselwirkung der Elektronen in der kristallinen Probe in drei Kategorien unterschieden werden:

- kohärente, elastische Streuung
- inkohärente, elastische Streuung (*thermisch diffuse Streuung*)
- inelastische Streuung.

Die elastische Streuung setzt sich aus der Überlagerung von Bragg-Streuung, also der Beugung am periodischen Kristallgitter, und der Rutherford-Streuung, welche der Streuung am Atom-Kern entspricht, zusammen. Zur Detektion der ungebeugten und gestreuten Elektronen sind, wie schematisch in Abb. 3.8(a) dargestellt, unterhalb der Probe mehrere ringförmige Detektoren konzentrisch um die optische Achse angeordnet. Die Detektoren befinden sich in einer zur hinteren Fokalebene konjugierten Brennebene, sodass für jeden Rasterpunkt die durch die Wechselwirkung entstandenen Beugungsmuster analysiert werden.

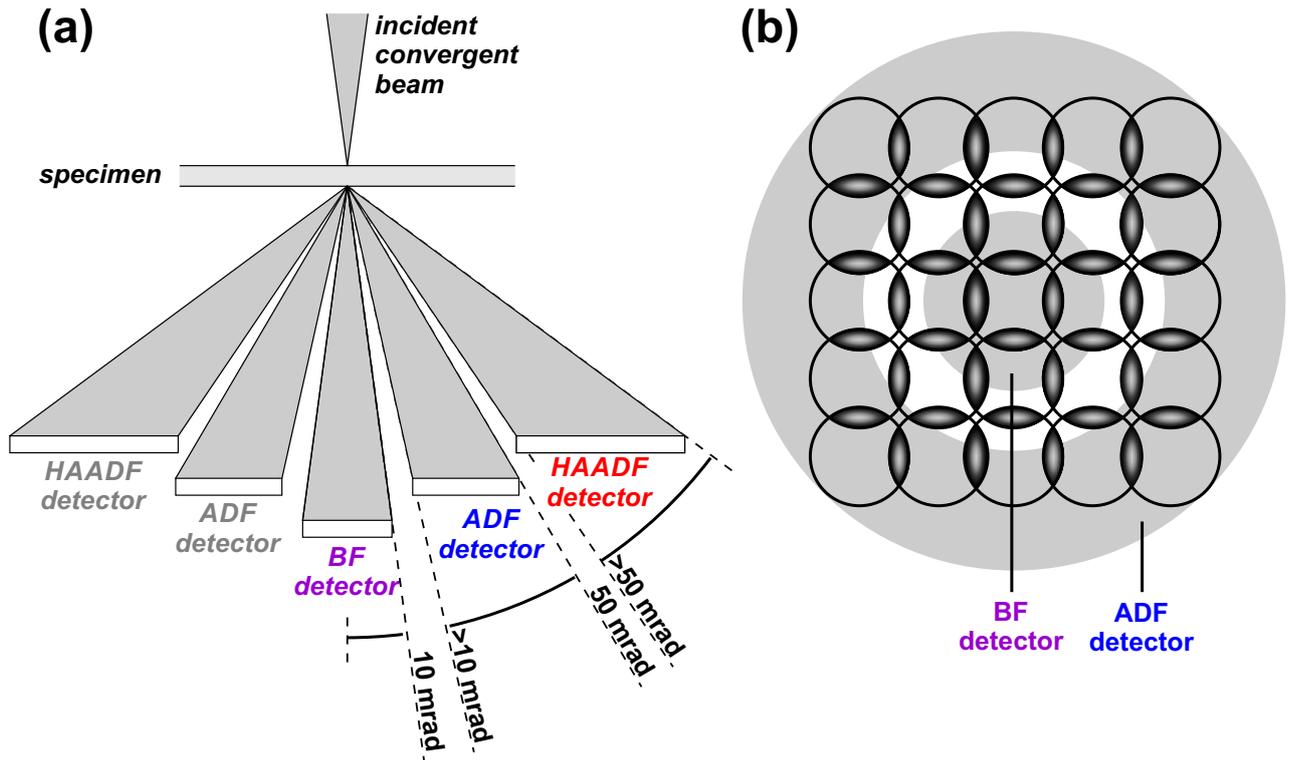


Abbildung 3.8: (a) Schematische Darstellung der ringförmigen Anordnung der STEM-Detektoren im Querschnitt; (b) Beispielhaft dargestellt die Interferenz von Beugungsscheiben im STEM-Modus und die dazugehörigen Detektionsbereiche im bright-field und annular dark-field [138].

Vergleichbar dem Fall der konvergenten Elektronenstrahl-Beugung (engl. *convergent beam electron diffraction* — CBED) sind die Beugungsreflexe im STEM-Modus nicht mehr punktförmig, sondern treten als individuelle Beugungsscheiben auf [139]. Angeregt werden Beugungsscheiben in der Laue-Zone 0'ter Ordnung, wie auch höherer Ordnung. Die Intensität in den Beugungsscheiben entsteht als Summe einzelner Beugungspunkte jedes geneigten Elektronenstrahls des konvergenten Bündels. Im STEM-Modus wird der Konvergenzwinkel des einfallenden Strahls so gewählt, dass sich die Beugungsscheiben überlagern. Beispielhaft ist der Fall von interferierenden Beugungsscheiben im STEM-Modus und die dazugehörigen Detektionsbereiche des Hellfeld- und Dunkelfeld-Detektors (in grau hinterlegt) in Abb. 3.8(b) gezeigt. Die Kontrastgebung im STEM geschieht durch die Interferenz der überlagernden Beugungsscheiben während die Probe Punkt für Punkt abgerastert wird [138]. Die Winkelbereiche, in denen Elektronen detektiert werden, können über die Kameralänge (Weg zwischen Probe und Detektor) und über den Konvergenzwinkel des einfallenden Strahls variiert werden.

Hellfeld-Abbildung (*bright-field*)

Ungebeugte und in kleine Winkelbereiche ($< 10 \text{ mrad}$) gestreute Elektronen, können durch einen Hellfeld-Detektor (engl. *bright-field*) analysiert werden. So wird, wie in Abb. 3.8(b) ersichtlich, im Hellfeld-Kontrast die Beugungsscheibe 0'ter Ordnung und die Interferenz niedrig indizierter Beugungsscheiben detektiert. Typischerweise erscheinen im Hellfeld-Bild stark beugende Bereiche dunkel bzw. nicht-beugende und schwach beugende erscheinen hell.

Dunkelfeld-Abbildung (*dark-field*)

Wie in Darstellung 3.8 sichtbar, werden stärker gestreute Elektronen durch den Dunkelfeld-Detektor (engl. *annular dark-field*) analysiert. Der Winkelbereich des annular dark-fields beträgt zwischen 10 mrad und 50 mrad [138]. Detektiert werden die Beugungsscheiben im Bereich der Laue-Zone 0'ten Ordnung, wie auch höher indizierter Ordnungen. Im annular dark-field wird der STEM-Kontrast von kohärent, elastisch gestreuten Elektronen dominiert. So erscheinen, im Gegensatz zum bright-field, stark beugende Bereiche hell und schwach beugende Regionen dunkel.

Insbesondere Kristalldefekte, wie Versetzungen oder Basalflächenstapelfehler können lokal die Beugungsbedingungen verändern und werden folglich komplementär im bright-field und annular dark-field Kontrast sichtbar.

Weitwinkelstreuung — Z-Kontrast (*high-angle annular dark-field*)

Die wichtigste Abbildungsform im STEM ist die sogenannte Weitwinkel-Streuung (engl. *high-angle annular dark-field*). Für die Abbildung der Weitwinkel-Streuung wird wiederum ein Ring-Detektor verwendet, welcher jedoch, anders als der ADF-Detektor, Elektronen detektiert, welche in große Winkelbereiche oberhalb von 50 mrad gestreut werden [135]. Die Intensität der gestreuten Elektronen besteht generell aus der Überlagerung des Beugungsmuster des ruhenden Kristalls und der thermisch diffusen Streuung [136]:

$$I(\vec{q}) = I_0(\vec{q})e^{-2M} + |f(\vec{q})|^2 (1 - e^{-2M}). \quad (3.2)$$

Daraus folgt, dass die Intensität I abhängig vom Debye-Waller-Faktor e^{-2M} und von der atomaren Streuamplitude $f(\vec{q})$ ist. Der Debye-Waller Faktor beschreibt die Temperaturabhängigkeit der Intensität der kohärent elastisch gestreuten Strahlung an einem Kristallgitter. Mit Zunahme des Streuwinkels wird die Amplitude der kohärent, Bragg-gestreuten Elektronen schwächer. Gleichzeitig wird die thermisch diffuse Streuung zum dominanten Prozess [140]. Grund für die thermisch diffuse Streuung ist thermische Bewegung der Atome um ihre Gleichgewichtsposition im Kristall (Phononen). In erster Näherung kann diese Bewegung als unkorreliert angesehen und in sogenannter Einstein-Näherung beschrieben werden. Jedes Atom wird also entsprechend einer Gaußverteilung von seinem Gitterplatz entfernt, und verursacht dadurch eine diffuse Hintergrund-Intensität, die thermisch diffuse Streuung. Die Sekundärwellen besitzen aufgrund der Abweichung der streuenden Atome von der Gitterperiodizität keine vollständige Phasenbeziehung und sind folglich inkohärent [136]. Gleichzeitig vereinfacht sich die atomare Streuamplitude für große Streuwinkel nach [136] zu:

$$f(\vec{q}) = \frac{e}{4\pi^2\epsilon_0} \frac{Z}{|\vec{q}|^2}. \quad (3.3)$$

Dementsprechend ist die Intensität der in weite Winkel gestreuten Elektronen wie bei der Rutherford-Streuung proportional zu Z^2 . Aufgrund dessen kann die Weitwinkelstreuung bzw. der HAADF-Kontrast zur direkten Abbildung der Materialkomposition verwendet werden und wird in der Literatur auch als Z-Kontrast bezeichnet. Im Festkörper kommt es infolge der Abschirmung des Coulombpotentials der Atomkerne jedoch zu Abweichungen von der Z^2 -Abhängigkeit. Im realen Fall muss für die quantitative Analyse des HAADF-Kontrasts ein $I \propto Z^\alpha$ Zusammenhang angenommen werden.

Zudem wird der HAADF-Kontrast im realen Festkörper auch von Gitterführungseffekten (engl. „channeling“) im Kristall beeinflusst. In Folge dieser „channeling“-Effekte können Elektronen, welche direkt auf die Atomsäulen fokussiert sind, also parallel zu einer Kristallachse, näher entlang der Atomkerne propagieren und so in größere Winkelbereiche gestreut werden [141].

Kommt es nun zu einer lokalen Störung der Gitterperiodizität, also Abweichungen von der atomaren Position im Kristallgitter, tritt eine Änderung des Streuwinkels auf. Dieser Effekt ist in der Literatur auch als „de-channeling“ bekannt [142–144]. Vor allem Defekte in der Kristallstruktur, wie Versetzungen oder Basalflächenstapelfehler können zu solchen „de-channeling“-Kontrasten beitragen.

Außerdem ist der HAADF-Kontrast sowohl von der Kristallorientierung, als auch von der Schichtdicke der TEM-Lamelle abhängig.

3.3.3 In-situ Kathodolumineszenz-Spektroskopie im STEM

Neben elastischen treten auch inelastische Streuprozesse der Primärelektronen in der kristallinen Probe auf. Als Folge dieser inelastischen Streuprozesse werden Überschussladungsträger erzeugt, welche anschließend wiederum strahlend bzw. nicht-strahlend rekombinieren können. Die in der Probe generierte Kathodolumineszenz wird gleichzeitig zum STEM-Signal detektiert, sodass eine direkte Eins-zu-eins Korrelation der optischen zur strukturellen Abbildung ermöglicht wird.

Spiegel und Monochromator

Die im STEM-Modus erzeugte Kathodolumineszenz wird durch einen Parabolspiegel aus Aluminium (Hersteller GATAN), welcher in seinen Maßen 2 mm hoch und 3 mm breit ist, in das Monochromatorsystem eingekoppelt (siehe Abb. 3.9). Damit der Elektronenstrahl den Spiegel ungehindert passieren und auf die Probenoberfläche treffen kann, besitzt der Spiegel ein 500 μm großes Loch. Der Spiegel kann in das Transmissionselektronenmikroskop hinein- bzw. herausgefahren werden, wobei dieser zwischen dem oberen und unteren Polschuh in der optischen Achse positioniert ist. Zur exakten Justierung des Spiegels und der Lichteinkopplung in das Monochromatorsystem wird der Fokuspunkt des Parabolspiegels auf die Oberfläche des Präparats ausgerichtet. Eine Rejustierung des Spiegels ist durch den Rückzugmechanismus notwendig und geschieht probenspezifisch durch die Ausrichtung der x-, y- und z-Position des Spiegels. Der TEM-Kryo-Probenhalter kann bei eingefahrenem Spiegel aufgrund des geringen Abstandes zwischen Parabolspiegel und Probenhalter nur in Bereichen von 5° bis -5° gekippt werden.

Die emittierte Kathodolumineszenz wird anschließend in einen Gittermonochromator vom Typ MonoCL4 der Firma GATAN eingekoppelt und kann dort in Czerny-Turner-Anordnung spektral zerlegt werden. Das Spektrometer befindet sich außerhalb des Vakuumsystems des Transmissionselektronenmikroskops. Entsprechend den unterschiedlichen Anforderungen an den Detektor bzw. an den zu detektierenden Wellenlängenbereich und die spektrale Auflösung können zwei verschiedene holographische Reflexionsgitter über eine drehbar gelagerte Achse gewählt werden. Zur Verfügung stehen ein 150 Linien/mm-Gitter mit großer Dispersion und ein 1200 Linien/mm-Gitter für spektral hochauflösende CL-Untersuchungen.

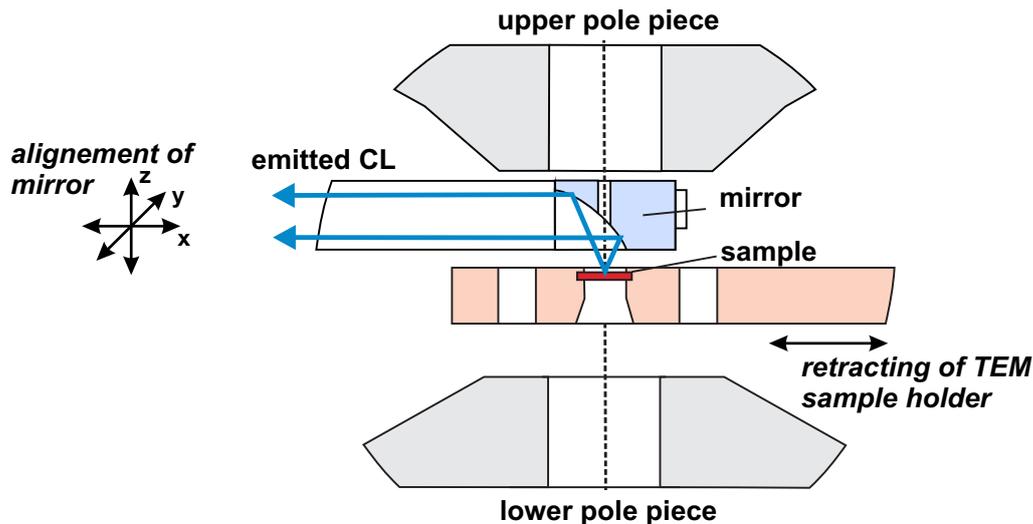


Abbildung 3.9: Schematische Darstellung des zwischen oberen Polschuh der Objektivlinse und Probenhalter justierbaren Parabolspiegels.

CL-Detektor System

Zur Analyse der entstandenen Kathodolumineszenz stehen zwei Detektoren zur Verfügung, die über einen einfahrbaren Umlenkspiegel wählbar sind. Für hochsensitive CL-Untersuchungen wird ein Photomultiplier mit cäsiumbeschichteter GaAs-Photokathode R932-02 der Firma Hamamatsu verwendet. Die spektrale Empfindlichkeit des PMT liegt im Bereich zwischen $200 \text{ nm} < \lambda < 900 \text{ nm}$. Mit Hilfe des PMT ist es möglich pan- und monochromatische Intensitätsbilder aufzunehmen. Für die panchromatische Untersuchung, wird das eingekoppelte Licht am Monochromator vorbeigeführt und direkt auf den Detektor geleitet. In diesem Fall wird die integrale Intensität innerhalb der spektralen Empfindlichkeit des PMTs detektiert. Zur Aufnahme monochromatischer Bilder wird das Licht über einen einfahrbaren Spiegel auf den Eintrittspalt des Monochromators abgebildet, dort entsprechend der gewählten Beugungsbedingung spektral zerlegt und über den Austrittsspalt auf den PMT fokussiert. In Abhängigkeit von der Weite des Ein- und Austrittsspalts kann zudem die Bandbreite des dargestellten Wellenlängenintervalls festgelegt werden. So entsteht sequentiell im monochromatischen Modus ein Intensitätssignal $I_{\text{CL}}(x, y, \lambda)$ in Abhängigkeit von der örtlichen Position und Wellenlänge. Die höchste erzielbare spektrale Auflösung zur seriellen Lumineszenzdetektion mittels Photomultiplier und 1200 Linien/mm-Gitter beträgt 0,19 nm.

Als zweiter Detektor zur Analyse der Kathodolumineszenz steht ein Paralleldetektor zur Verfügung. Ein deutlicher Vorteil der Lumineszenzdetektion mittels Paralleldetektor ist die Aufnahme eines kompletten Spektrums an jedem Rasterpunkt. Folglich entsteht ein vierdimensionaler Datensatz des Lumineszenz-Signals $I_{\text{CL}}(x, y, \lambda)$. Zur Akquirierung des emittierten Lichts mittels Paralleldetektor wird dieses wiederum spektral im Monochromator zerlegt und anschließend auf den Detektor abgebildet. Als Paralleldetektor dient ein mit flüssigem Stickstoff gekühlter, zweidimensionaler CCD-Chip (engl. *charge coupled device*) der Firma Princeton Instruments vom Typ Spec10:100B mit 100 x 1340 Kanälen. Die CCD weist eine spektrale Empfindlichkeit im Wellenlängenbereich zwischen

250 nm < λ < 900 nm auf. Die Pixelgröße des Paralleldetektors stellt ein zusätzliches begrenzendes Element für die erreichbare spektrale Auflösung dar. So wird im Vergleich zum PMT mit dem 1200 Linien/mm-Gitter eine niedrigere spektrale Auflösung von maximal 0,5 nm erreicht.

Generell ist die CCD gegenüber dem PMT durch eine niedrigere Quanteneffizienz und ein schlechteres Signal zu Rausch Verhältnis gekennzeichnet.

Zur rechnergesteuerten Aufnahme des CL- und STEM-Signals wird die Software **Digital-Micrograph** (Version 2.10) der Firma GATAN verwendet. Die gewonnenen Daten werden anschließend mittels der Software **XKL** (Version 4.71) konvertiert und können entsprechend visualisiert werden.

TEM-Kryo-Probenhalter

Für Tieftemperatur-Kathodolumineszenz-Untersuchungen steht ein Einfachkipp-Probenhalter mit Helium-Kryostat der Firma GATAN zur Verfügung. Der Kryostat kann sowohl als Durchfluss- wie auch als Badkryostat betrieben werden. Im Durchflussbetrieb verbleibt der Heliumheber im Dewargefäß, wodurch kontinuierlich Helium nachgefördert werden kann. Durch den Heliumheber können jedoch Schwingungen in den Probenhalter eingekoppelt werden. Deshalb ist es notwendig, den Kryostat für hochortsaufgelöste Untersuchungen als Badkryostat zu betreiben. Die Schwingungsamplituden können in diesem Modus auf unter 5 nm reduziert werden.

Ortsauflösung der STEM-CL — Strahlaufweitung in dünnen Schichten

Auf Grund der globalen Detektion der Kathodolumineszenz muss zur Betrachtung des örtlichen Auflösungsvermögen zwischen dem Wechselwirkungsvolumen des Primärelektronenstrahls und der Diffusion der im Kristall generierten Überschussladungsträger unterschieden werden. So tritt durch die Diffusion der Minoritätsladungsträger und Exzitonen typischerweise eine örtliche Verbreitung des Lumineszenz-Signals auf.

Als erstes soll hier eine Analyse des Wechselwirkungsvolumens des Elektronenstrahls erfolgen. Das Wechselwirkungsvolumen im STEM ist zum einen durch den Durchmesser des Primärelektronenstrahls und zum anderen durch die Strahlaufweitung entlang der Probendicke gegeben. Im hier verwendeten Elektronenmikroskop beträgt die Halbwertsbreite des kleinstmöglichen Durchmessers des Elektronenstrahls $d_{\text{beam}} = 0,6$ nm. Einen deutlich größeren, limitierenden Einfluss auf die Ortsauflösung hat die Strahlaufweitung als Folge elastischer und inelastischer Streuprozesse des Primärelektronenstrahls im Festkörper.

Zur Untersuchung der Strahlaufweitung durch Streuprozesse wurden Monte-Carlo-Simulationen der Elektronen-Trajektorien in einer GaN Dünnschicht-Probe mit der Simulationssoftware **CASINO** (Version 3.3) angefertigt (siehe Kapitel 3.2). Bild 3.11 zeigt die Elektronen-Trajektorien bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und einer GaN Lamellendicke von $t = 100$ nm. Diese Werte entsprechen typischen Messbedingungen der STEM-CL. Es zeigt sich hier, dass entlang der Lamellendicke eine deutliche Verbreiterung des Elektronenstrahls auf Grund von Streuprozessen auftritt. Daraus kann direkt geschlussfolgert werden, dass mit zunehmender Schichtdicke der TEM-Lamelle eine verschlechterte Ortsauflösung einhergeht.

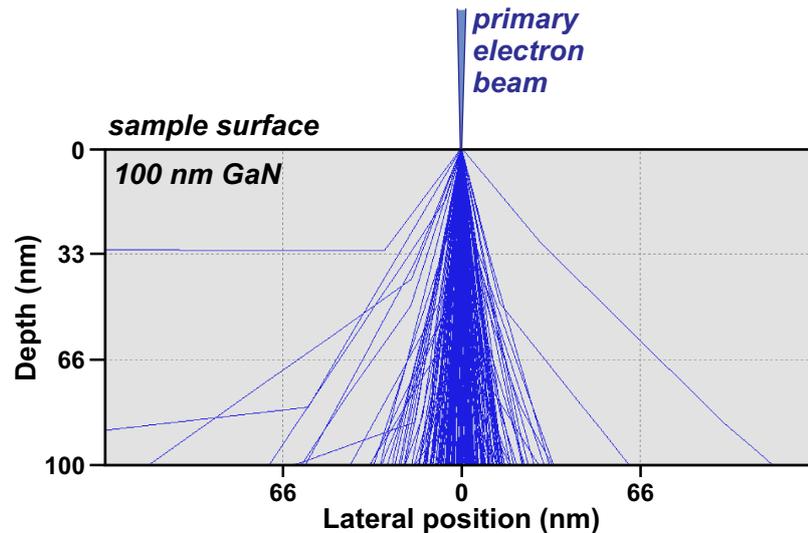


Abbildung 3.10: Monte-Carlo-Simulationen der Elektronen-Trajektorien in einer 100 nm dicken GaN-Schicht bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV. Die Simulation wurde mit CASINO angefertigt [126].

Die örtliche Verteilung der transmittierten Elektronen an der unteren Austrittsfläche der TEM-Lamelle, bei einer Schichtdicke von $t = 100$ nm, ist in Abb. 3.11(a) dargestellt. Simuliert wurden die Trajektorien von 10^5 Elektronen. Die Monte-Carlo-Simulation zeigt, dass um die Position des einfallenden Elektronenstrahls eine symmetrische Verteilung der gestreuten Elektronen auftritt. Der Großteil der Primärelektronen erfährt im Festkörper jedoch keine Streuprozesse und verlässt den Kristall an der gleichen Position wie der einfallende Strahl.

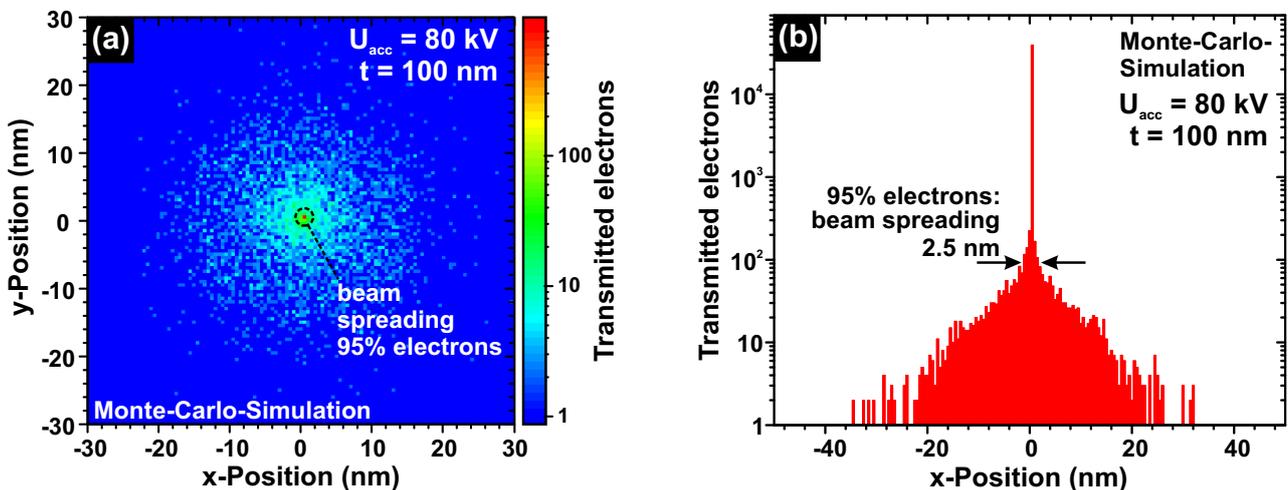


Abbildung 3.11: Monte-Carlo-Simulation: (a) Örtliche Verteilung der transmittierten Elektronen am Austritt aus der unteren Oberfläche der 100 nm GaN-Schicht; (b) Histogramm der transmittierten Elektronen entlang der x-Richtung.

Zur näheren Analyse der Elektronenstrahlverbreiterung ist in Darstellung 3.11(b) das Histogramm der transmittierten Elektronen entlang der x-Richtung abgebildet. Als Maß für die Elektronenstrahlverbreiterung wird ein Durchmesser definiert, in welchem 95% der Elektronen transmittiert werden.

Aus der Analyse der Häufigkeitsverteilung der transmittierten Elektronen in Abb. 3.11(b) folgt, dass 95% der Elektronen innerhalb eines Durchmessers von 2,5 nm um die Position des Primärelektronenstrahls aus der 100 nm dicken GaN-Schicht austreten. Innerhalb dieses Durchmessers werden entlang der Foliendicke Überschussladungsträger erzeugt, welche anschließend strahlend, bzw. an den Defekten nicht-strahlend, rekombinieren können.

Einen alternativen Ansatz zur Bestimmung der Strahlaufweitung bietet die Berechnung des differentiellen Wirkungsquerschnitts. Da im Allgemeinen die Berechnung des differentiellen Wirkungsquerschnitts jedoch nicht zu einer analytischen Lösung führt, kann dies nur im Rahmen der Bothe-Theorie für Mehrfachstreuung angenähert werden. Für eine ausführliche Herleitung der Strahlaufweitung b_e sei auf Reimer verwiesen [137]. So folgt für die Aufweitung des Primärelektronenstrahls b_e im Festkörper [137]:

$$b_e = 1,05 \cdot 10^5 \cdot \left(\frac{\rho}{A}\right)^{\frac{1}{2}} \cdot \left(\frac{Z}{E}\right) \cdot \frac{1 + E/E_0}{1 + E/2E_0} \cdot t^{\frac{3}{2}} \quad (3.4)$$

Hierbei stellt Z die Ordnungszahl, E_0 (in eV) die Ruhenergie der Elektronen und A (in g/mol) die relative Atommasse dar. Es wird deutlich, dass die Strahlaufweitung zum einen mit der Schichtdicke t zu $b_e \propto t^{3/2}$ skaliert. Zum anderen ist auch die Energie des Primärelektronenstrahls E , welche durch die Beschleunigungsspannung U_{acc} definiert wird, entscheidend für die Größe des Wechselwirkungsvolumens.

Abbildung 3.12(a) zeigt die Strahlaufweitung in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung für die binären Halbleiter GaN, AlN und InN. Mit zunehmender Beschleunigungsspannung nimmt die Wahrscheinlichkeit von Streuprozessen im Festkörper ab. Daraus resultiert, dass mit erhöhter Beschleunigungsspannung das Wechselwirkungsvolumen reduziert wird. Dies ist ein grundsätzlicher Gegensatz zur SEM-CL bei der das Wechselwirkungsvolumen mit steigender Beschleunigungsspannung größer wird.

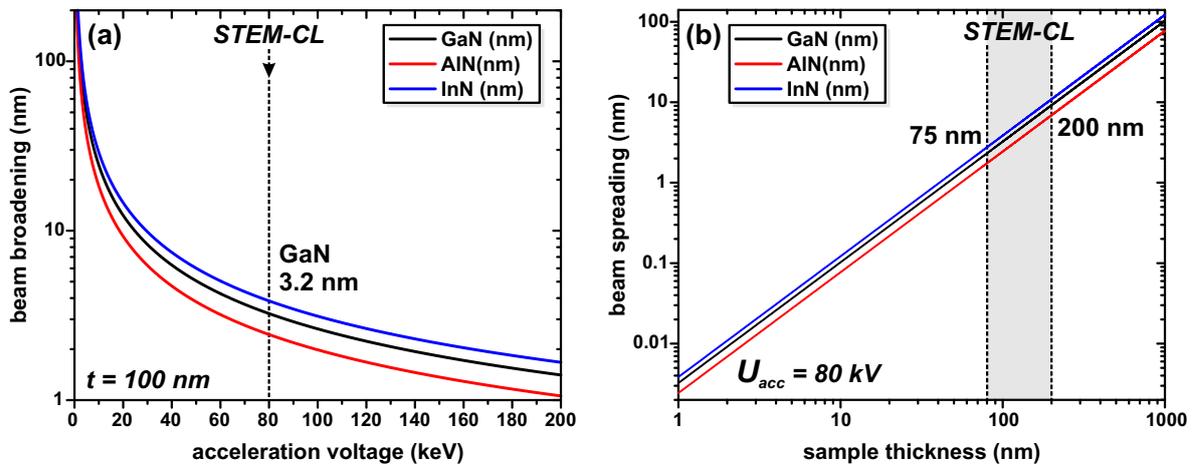


Abbildung 3.12: (a) Abhängigkeit der Strahlverbreiterung der Elektronenprobe von der Beschleunigungsspannung für die binären III-N-Halbleiter; (b) Elektronenstrahlaufweitung in Abhängigkeit der Lamellendicke.

So erhält man für die Strahlaufweitung bei einer Beschleunigungsspannung von $U_{\text{acc}} = 80$ kV innerhalb einer 100 nm dicken GaN-Schicht einen Wert von $b_{e(\text{GaN})} = 3,2$ nm, bzw. für AlN $b_{e(\text{AlN})} = 2,4$ nm. Diese Werte können durch die zuvor präsentierten Monte-Carlo-Simulationen bestätigt werden. Eine weitere Verbesserung der Ortsauflösung kann über die weitere Erhöhung der Primärelektronenenergie bei Beschleunigungsspannungen bei 200 kV erreicht werden. Jedoch können bei Beschleunigungsspannungen oberhalb von 100 kV Strahlschädigungen wie die Radiolyse und Knock-on-Damage die Emissionseigenschaften der Probe stark beeinflussen [135, 145, 146]. Die hochenergetische Elektronenstrahlanregung von ternären, Indium haltigen Materialien bei $U_{\text{acc}} > 100$ kV kann zusätzlich zur Formierung von Clustern mit erhöhter Konzentration führen [147–150].

Zudem liegt die Strahlverbreiterung bei 80 kV bereits in der Größenordnung des Bohr'schen Radius der freien Exzitonen der Gruppe-III-Nitride und befindet sich damit am physikalischen Grenzwert für die örtliche Auflösung der Kathodolumineszenz im Rastertransmissionselektronenmikroskop. Eine Verringerung der Strahlaufweitung würde somit nur zu einer Erhöhung der Auflösung des STEM-Signals führen, aber keine Verringerung der Auflösungsgrenze des CL-Signal bewirken. Daher wurden die hier durchgeführten STEM-CL Messungen zur Vermeidung von Elektronenstrahlschädigung typischerweise bei einer Beschleunigungsspannung von $U_{\text{acc}} = 80$ kV angefertigt.

Nach Gleichung 3.4 begrenzt neben der Primärelektronenenergie die Probendicke der TEM-Lamelle die Ortsauflösung signifikant. In Abb. 3.12(b) ist die Strahlaufweitung doppelt-logarithmisch als Funktion der Schichtdicke abgetragen. Als Beschleunigungsspannung wurde wiederum ein Wert von 80 kV gewählt. Wie zu erwarten, wird die Strahlaufweitung mit zunehmender Lamellendicke vergrößert. Die untere, kritische Schichtdicke für STEM-CL Experimente wird zum einen von der Schädigung der Oberfläche und zum anderen von der Oberflächenrekombination begrenzt. Die im Material erzeugten Überschussladungsträger können zu den freien Oberflächen diffundieren und dort nicht-strahlend rekombinieren, sodass folglich kein CL-Signal detektiert werden kann. Die Oberflächenrekombinationsrate kann nach Van Roosbroeck durch die Gleichung:

$$s\Delta n = D \left. \frac{\partial \Delta n}{\partial t} \right|_{t=0} \quad (3.5)$$

beschrieben werden [151]. Hierbei stellt s die Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit und D die Diffusionskonstante des Materials dar. Die Lösung der Gleichung 3.6 zeigt, dass die Oberflächenrekombination mit der Diffusionslänge λ_{Diff} der Überschussladungsträger zu

$$s \propto \exp\left(\frac{-t}{\lambda_{\text{Diff}}}\right) \quad (3.6)$$

skaliert. Liegt die Schichtdicke der TEM-Lamelle nun in der Größenordnung der Diffusionslänge, nimmt die Rate der Oberflächenrekombinationen exponentiell zu, die CL-Intensität also ab. Demzufolge muss die Schichtdicke der Probe größer gleich der Diffusionslänge der Überschussladungsträger sein. Typische Schichtdicken für die STEM-CL liegen im Bereich zwischen $75 \text{ nm} < t < 200 \text{ nm}$ und stellen einen Kompromiss zwischen STEM-Signal und CL-Intensität dar [43, 118, 120]. Die Strahl-

verbreiterung für eine große Schichtdicke von $t = 200$ nm beträgt für GaN $b_{e(\text{GaN})} = 9,2$ nm bzw. für AlN $b_{e(\text{AlN})} = 6,9$ nm, ist also nur unwesentlich größer als der Bohr'sche Radius der freien Exzitonen. Die Schädigung der Oberflächen durch die Präparation kann im weiteren dazu führen, dass die Emission nur aus einem ungeschädigten Kernvolumen der Lamelle stattfindet.

Ladungsträgertransport — Bestimmung der Diffusionslänge

Die Aufweitung des Primärelektronenstrahls stellt die untere physikalische Grenze der Ortsauflösung dar. Eine zusätzliche Verbreiterung der örtlichen Auflösung tritt in Folge der Diffusion der generierten Überschussladungsträger auf. Zur Beschreibung des ambipolaren Ladungsträgertransports in Halbleitern kann die Kontinuitätsgleichung der Form:

$$\frac{\partial n}{\partial z} = \frac{1}{e} \text{div} \vec{j} + G(\vec{r}, z) - R(\vec{r}, z) \quad (3.7)$$

angewandt werden. So ist die zeitliche Änderung der Teilchenkonzentration n sowohl abhängig von der Divergenz der Stromdichte \vec{j} , der Generationsrate $G(\vec{r}, z)$, als auch von der Rekombinationsrate $R(\vec{r}, z)$ der Teilchen am Ort \vec{r} zur Zeit z . Als Nebenbedingung wird angenommen, dass im Falle einer kontinuierlichen Anregung die Generationsrate gleich der Rekombinationsrate entspricht. Zusätzlich wird unter Annahme des Relaxationszeit-Ansatzes vorausgesetzt, dass die Rückkehr in den Gleichgewichtszustand durch Rekombination der Teilchen exponentiell mit der Relaxationszeit τ erfolgt. Unter Berücksichtigung des Zusammenhangs zwischen der Diffusionskonstanten D , sowie der Diffusionslänge λ_{Diff} und der Lebensdauer τ der generierten Teilchen nach:

$$D = \frac{\lambda_{Diff}}{\tau} \quad (3.8)$$

kann für den eindimensionalen Fall neutral geladener Exzitonen die Diffusionsdifferentialgleichung der Form:

$$-G(x) \frac{\tau}{\lambda_{Diff}} = \frac{\partial^2}{\partial x^2} n_{Ex} - \frac{n_{Ex}}{\lambda_{Diff}^2} \quad (3.9)$$

angenommen werden. Die vollständige Lösung der eindimensionalen Diffusionsgleichung für eine punkt-förmige Anregung, also einer örtlich, deltafunktionsartigen Teilchengeneration lautet:

$$n_{EX}(x) = G_0 \cdot \tau \cdot e^{-\frac{|x|}{\lambda_{Diff}}} \quad (3.10)$$

Die Konzentration der Exzitonen im Abhängigkeit vom Ort x ist danach exponentiell abhängig von der Anzahl der generierten Ladungsträger G_0 , sowie von der Lebensdauer und der Diffusionslänge der Überschussladungsträger. Experimentell ist die Konzentration der überschüssigen Elektron-Loch-Paare proportional zur emittierten Lumineszenzintensität I , bzw. $I_0 \propto G_0 \tau$. Somit folgt für die Lumineszenzintensität:

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-\frac{|x|}{\lambda_{Diff}}} \quad (3.11)$$

Dies ermöglicht es, die Diffusionslängen aus der aufgenommenen Kathodolumineszenz-Verteilung zu bestimmen und so Wechselwirkungsreichweiten strahlender oder nicht strahlender Rekombinations-

zentren abzuleiten. Nichtsdestotrotz betrachtet diese Lösung der eindimensionalen Diffusionsgleichung nur den Fall einer idealen punktförmigen Teilchengeneration. Im Realfall der Anregung mittels eines konvergenten Elektronenstrahls muss die deltaförmige Anregung durch eine gaussförmige Teilchengeneration ersetzt werden. Für den Fall einer gaussförmig verbreiterten Anregung mit einer Standardabweichung σ der lateralen Ausdehnung folgt nun mehr²:

$$I(x) = I_0 \cdot \sigma \cdot \sqrt{\frac{\pi}{2}} e^{\frac{1}{2} \frac{\sigma^2}{\lambda_{Diff}^2}} \left\{ e^{\frac{x}{\lambda_{Diff}}} \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{x}{\sigma} + \frac{\sigma}{\lambda_{Diff}} \right) \right) \right] + e^{-\frac{x}{\lambda_{Diff}}} \left[1 + \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{x}{\sigma} - \frac{\sigma}{\lambda_{Diff}} \right) \right) \right] \right\}. \quad (3.12)$$

Die Standardabweichung σ ist für die CL-Spektroskopie im STEM durch die bereits oben diskutierte Elektronenstrahlaufweitung innerhalb der TEM-Lamelle gegeben.

Ein Beispiel für die Bestimmung der Diffusionslänge in einer Kern-Mantel-Mikrosäule ist in Abbildung 3.13 gezeigt. Die koaxiale Struktur besteht aus einem Si-dotierten GaN-Kern auf dem eine AlGaN-Zwischenschicht und anschließend ein Si-dotierte GaN-Mantel-Schicht gefolgt von einem InGaN-Quantenfilm gewachsen wurde. Eine ausführliche Betrachtung der optischen und strukturellen Eigenschaften der Probe erfolgt im Kap. 5.2. Im untersuchten Probenbereich beträgt die Lamellendicke rund 200 nm. Die CL-Messung wurde bei einer Beschleunigungsspannung von $U_{acc} = 80$ kV und einem Strahlstrom von $I_B = 270$ pA bei $T = 15$ K angefertigt. In der STEM-HAADF-Aufnahme in Darstellung 3.13(a) ist der 5,5 nm dicke InGaN-Quantenfilm auf der non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ Facette als heller Kontrast sichtbar. Die umgebene Si-dotierte GaN-Barrierschicht ist als grauer Kontrast ersichtlich.

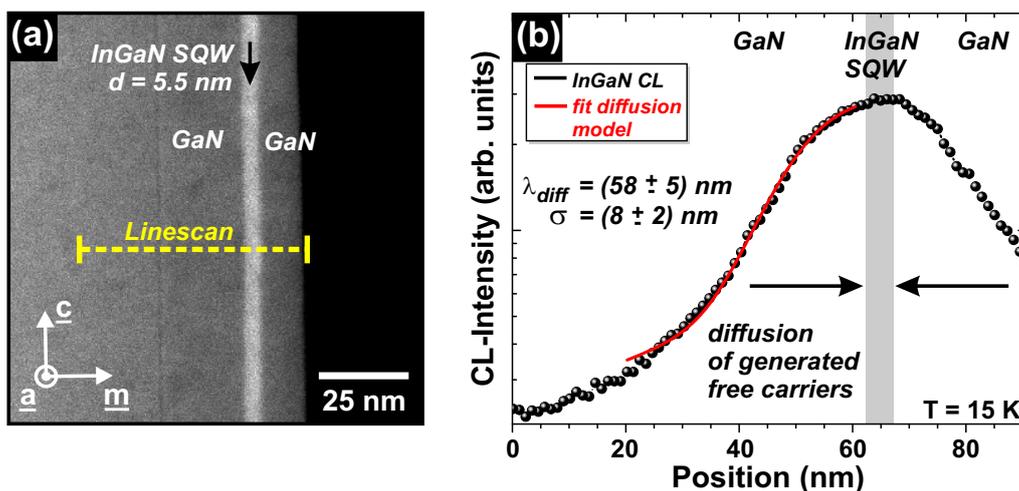


Abbildung 3.13: (a) STEM-Aufnahme im HAADF-Kontrast des non-polaren InGaN/GaN-Quantenfilms; (b) CL-Intensitätsprofil der InGaN-Emission bei einer Wellenlänge von 435 nm (schwarze Kurve) und Anpassung der Diffusionsgleichung an den Verlauf der Lumineszenzintensität (rote Kurve) ($T = 15$ K).

²Eine ausführliche Herleitung und Lösung der Diffusionsgleichung wird in der Dissertation von Martin Noltemeyer beschrieben [152]

Zur Bestimmung der Diffusionslänge wurde ein CL-Intensitätsprofil (schwarze Kurve) an der spektralen Position der InGaN-Emission bei einer Wellenlänge von 435 nm senkrecht zum QW angefertigt (siehe Abb. 3.13(b)). Die örtliche Position des InGaN-Quantenfilms wurde aus dem simultan aufgenommenen HAADF-Kontrast ermittelt. Durch die Diffusion der generierten Überschussladungsträger nimmt die Lumineszenzintensität bis zur Position des InGaN-QW bei $x = 63$ nm exponentiell zu und fällt danach wiederum zur Oberfläche ab.

Aus der Anpassung der Diffusionsgleichung an den Verlauf der Lumineszenzintensität (rote Kurve) wurde eine Diffusionslänge von $\lambda_{Diff} = (58 \pm 5)$ nm bei $T = 15$ K bestimmt. Die ermittelte Standardabweichung des Anregungsvolumens von $\sigma = (8 \pm 2)$ nm liegt im Bereich der zu erwartenden theoretischen Strahlaufweitung nach Gleichung 3.4 für eine 200 nm dicke GaN-Lamelle. Das erhaltene Ergebnis zeigt auch experimentell, dass durch die Anwendung der CL-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop eine deutliche Verbesserung der Ortsauflösung gegenüber der konventionellen SEM-CL erreicht werden kann.

3.3.4 Dünnschicht-Präparation von Nanostrukturen für die STEM-CL

Von fundamentaler Bedeutung für Kathodolumineszenz-Spektroskopie Untersuchungen im Rastertransmissionselektronenmikroskop ist die Präparation der Proben zu elektronentransparenten Folien. Die Qualität und das Auflösungsvermögen der analytischen STEM-CL Untersuchungen wird maßgeblich schon durch die Dünnschicht-Präparation bestimmt. Zur Herstellung von elektronentransparenten Folien kann zum einen die klassische Präparation durch mechanisches Dünnen und anschließendem Ionensputtern verwendet werden. Für dreidimensionale Nanostrukturen bietet jedoch vor allem die Präparation einer Lamelle mittels eines fokussierten Ionenstrahls (engl. *focused ion beam preparation* — FIB) immense Vorteile. So wurden in dieser Arbeit erstmals erfolgreich Tieftemperatur STEM-CL Messungen an FIB präparierten Dünnschicht-Lamellen durchgeführt. Im folgenden sollen beide Präparationstechniken vorgestellt und verglichen werden.

Konventionelle Dünnschliff-Präparation

An die Präparation werden besondere Anforderungen gestellt, wie kritische Schichtdicke, kleine Schichtdicken-Gradienten und defektfreie Probenoberflächen. Vor allem die Foliendicke ist ein entscheidender Faktor für die Analyse und Interpretation der durchgeführten Experimente. So muss ein Optimum zwischen Elektronentransparenz der Folie und erzeugter Kathodolumineszenz gewählt werden. Anders als zur atomaren Abbildung mittels hochauflösender Transmissionselektronenmikroskopie, werden für STEM-CL Untersuchungen Probendicken im Bereich von $75 \text{ nm} < t < 200 \text{ nm}$ benötigt. Für Auflösungen im atomaren Bereich sind typischerweise Probendicken kleiner als $t < 50 \text{ nm}$ nötig.

Nach der Voruntersuchung im konventionellen Lichtmikroskop und anschließend mit Hilfe des Rasterelektronenmikroskops werden die zu präparierenden Bereiche ausgewählt. Vor allem für dreidimensionale Nanostrukturen müssen Regionen der Probe ausgewählt werden in denen ein homogenes Wachstum stattgefunden hat und keine großen unbewachsenen Leerstellen auftreten, sodass in der folgenden Präparation möglichst viele der Nanostrukturen zu finden sind. Abbildung 3.14 zeigt die folgenden Präparationsschritte.

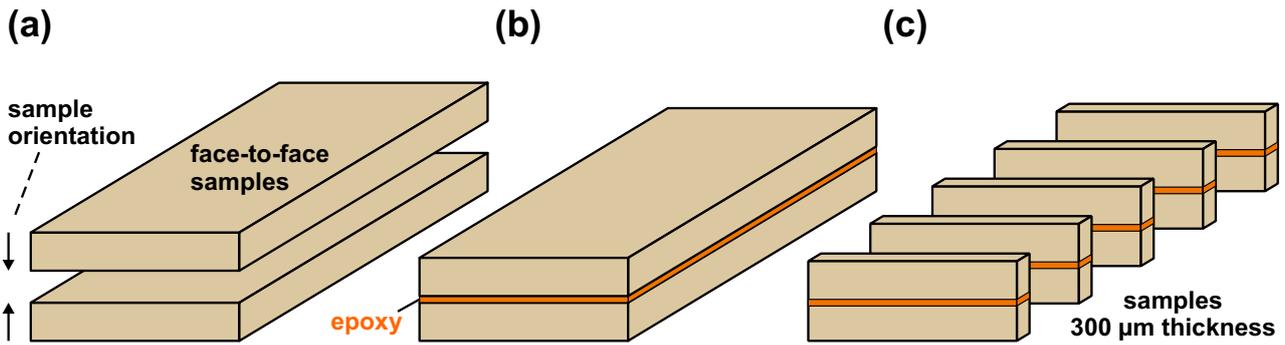


Abbildung 3.14: Grundlegende erste Präparationsschritte für die TEM-Querschnittspräparation mit Dünnschlifftechnik: (a) Probenvorbereitung mit Diamantdrahtsäge, (b) Zusammenkleben der „face-to-face“-Proben und (c) Trennung der „Sandwich-Prob“ in kleinere Stücke.

Im ersten Schritt werden zunächst zwei gleichartige 2 x 4 mm große Streifen mit Hilfe einer Diamantdrahtsäge aus der Probe heraus getrennt. Somit können aus einem Probenstück mehrere Präparate angefertigt werden. Diese werden dann mit Aceton und Iso-Propanol gründlich gereinigt, um eventuelle Verschmutzungen auf der Probenoberfläche zu entfernen. Im Anschluss werden die beiden Streifen auf der Oberfläche mit einem 2-Komponenten Epoxydharz (G1, GATAN) benetzt und Schicht auf Schicht (engl. *face-to-face*) in einer „Sandwich-Form“ aufeinandergelegt. Zu beachten ist, dass der erste Schnitt bereits die Orientierung der Probe im Halter und damit die kristalline Projektionsrichtung im TEM festlegt. Wie in Abschnitt 3.3.3 erläutert, kann die Probe im TEM-Kryo-Probenhalter nur um eine Achse um jeweils 5° verkippt werden, sodass die vorherige sorgfältige Orientierung die STEM-CL Messung entscheidet. Nach der Aushärtung des Epoxydharzes wird die „Sandwich-Prob“ mit der Diamantsäge in Scheiben geschnitten, wobei die entstehenden Probenstückchen eine Dicke von rund $300 \mu\text{m}$ aufweisen (siehe Abb. 3.14(c)).

Der nächste Präparationsschritt ist das mechanische Dünnen der Scheiben. Hierfür wird das $300 \mu\text{m}$ dicke Probenstück mit Heißwachs auf einem transparenten Pyrexträger (bestehend aus Borosilikatglas) befestigt. Ebenfalls werden auf diesen Pyrexstempel als Abtragsmarker zwei längliche Silizium-Dummies sowie zwei runde Wachspunkte aufgetragen (siehe Abb. 3.15(a)). Der Träger wird dann in ein sogenanntes T-Tool nach Schubert-Bischoff eingespannt. Dieses Werkzeug besteht aus zwei Justierstiften, mit denen das T-Tool in die Poliermaschine eingesetzt wird, und bildet zusammen mit dem Probenträger eine Dreipunktauflage auf den Polierblättern (Abb. 3.15(b)). Die Probe wird dann in der Schleifmaschine mit unterschiedlichen Diamantläppfilmen verschiedenster Körnungen ($0,5 - 30 \mu\text{m}$) beidseitig mechanisch gedünnt. Die Diamantpolierscheiben können dabei in stufenlos regelbarer Geschwindigkeit vor- und rückwärts rotieren und ermöglichen so eine planparallele Abdünnung der Probe. Hiermit kann eine Dünnung bis auf etwa $10 \mu\text{m}$ erfolgen (Abb. 3.15(c)). Die beiden jeweils vor und hinter der Probe angebrachten Wachspunkte ermöglichen dabei die Kontrolle des parallelen Aufliegens auf der Diamantscheibe. Eine Abschätzung der Dicke des Probenstücks erfolgt über die Messung der Lichttransparenz der Silizium-Dummies.

Im letzten Präparationsschritt wird die Probe mittels einer Ionendünnungsanlage auf eine elektronentransparente Dicke gedünnt. Zur Ionendünnung wird ein *Precision Ion Polishing System* (PIPS) von GATAN verwendet. In dieser Anlage werden bei einer Temperatur von $T = 150 \text{ K}$ unter strei-

fendem Einfall, d.h. bei flachem Auftreffwinkel, Argon-Ionen auf die Probe geschossen und durch den Sputterprozess ein Loch in die Schicht geätzt (siehe Abb. 3.15(d)). Die Beschleunigungsspannung der Argonionen für den Ätzvorgang beträgt zwischen 2 kV bis 5 kV. An den resultierenden Kanten entsteht nun ein ausreichend dünner, elektronentransparenter Bereich für die STEM-CL Untersuchungen. Durch den flachen Auftreffwinkel der Argon-Ionen entsteht vom Loch zum Rand der Probe ein Dickengradient. Wie oben erläutert, werden STEM-CL Experimente ab einer Schichtdicke von $t > 75$ nm durchgeführt. Unterhalb dieser Schichtdicken werden Oberflächenrekombinationen und Amorphisierungen durch die Probenpräparation zu dominanten Prozessen und verhindern optische Untersuchung in diesen Bereichen. Idealerweise entstehen durch Verwendung einer „Sandwich-Probe“ vier äquivalente für das STEM geeignete Probenbereiche. Speziell die Wahl der Beschleunigungsspannung und der Einfallswinkel der Argon-Ionen und die damit verbundene Variation der Abtrageraten hat erheblichen Einfluss auf die Qualität der dünnen Probe. Vor der Messung im Mikroskop empfiehlt sich eine Reinigung der Probenoberfläche mittels Plasma in einem kommerziellen Plasmacleaner, um Kohlenstoffschichten auf der Oberfläche zu entfernen.

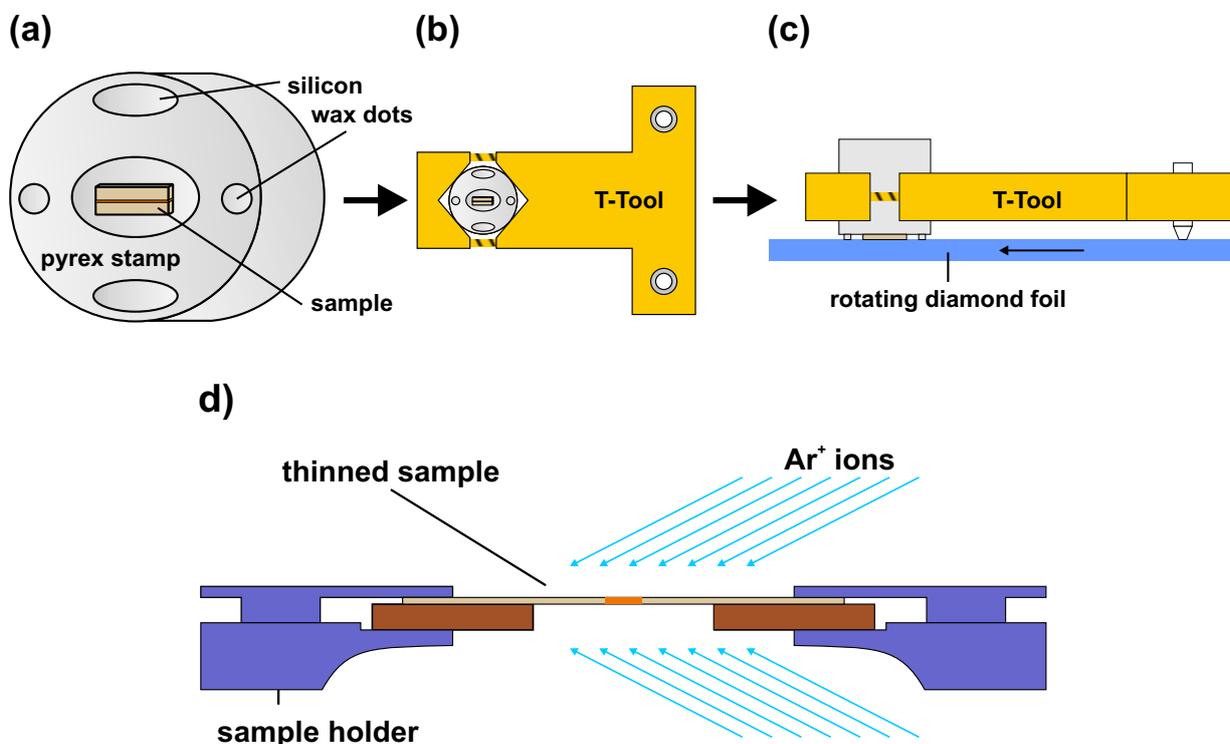


Abbildung 3.15: Mechanische Dünnung der Probe: (a) Kleben des Materials auf einen Pyrexträger, (b) Einspannen in das T-Tool nach Schubert-Bischoff und (c) Dickenreduktion durch mechanisches Schleifen mit Diamantfolien; (d) Ionendünung durch Argonionen mittels PIPS.

Das Beispiel einer konventionellen Dünnschliff-Präparation von axialen InGaN/GaN-Nanosäulen ist in Darstellung 3.16 gezeigt. Nach der Auswahl des zu präparierenden Probenbereichs mittels Rasterelektronenmikroskopie (Abb. 3.16(a)) wurde die Probe mittels des oben beschriebenen Verfahrens im ersten Schritt mechanisch gedünnt und anschließend mit Hilfe der Ionendünnung auf elektronentransparente Dicken abgetragen. Die lichtmikroskopische Übersichtsaufnahme der präparierten TEM-Probe ist in Abb. 3.16(b) dargestellt. Deutlich sichtbar ist das Ätzloch auf der linken Seite der Aufnahme.

Vom Loch beginnend zum Rand der Lamelle tritt auf Grund der Ionenabdünnung unter streifendem Einfall ein Schichtdickengradient auf. Abbildung 3.16(c) zeigt das HAADF-Bild der Probe im elektronentransparenten Bereich. Im unteren Teil des Bildes ist die planare Pufferschicht und darauf die in *c*-Richtung gewachsenen InGaN/GaN-Nanosäulen sichtbar. In der HAADF-Aufnahme ist horizontal von links nach rechts eine deutliche Kontrastveränderung von hell zu dunkel sichtbar. Grund hierfür ist der Schichtdickengradient entlang der Lamelle. So werden im dünnen Bereich mehr Elektronen transmittiert und anschließend detektiert als in den dicken Bereichen.

Vor allem für Nanostrukturen stellt sich hier ein deutliches Problem. Wie in der STEM-Aufnahme zu sehen, befinden sich im dünnen Bereich einzelne Nanosäulen, wohingegen in dickeren Regionen mehrere Nanosäulen entlang der Probendicke überlagern. Der Messbereich für strukturelle und optische Untersuchungen ist deutlich eingeschränkt auf die dünne Region der Lamelle.

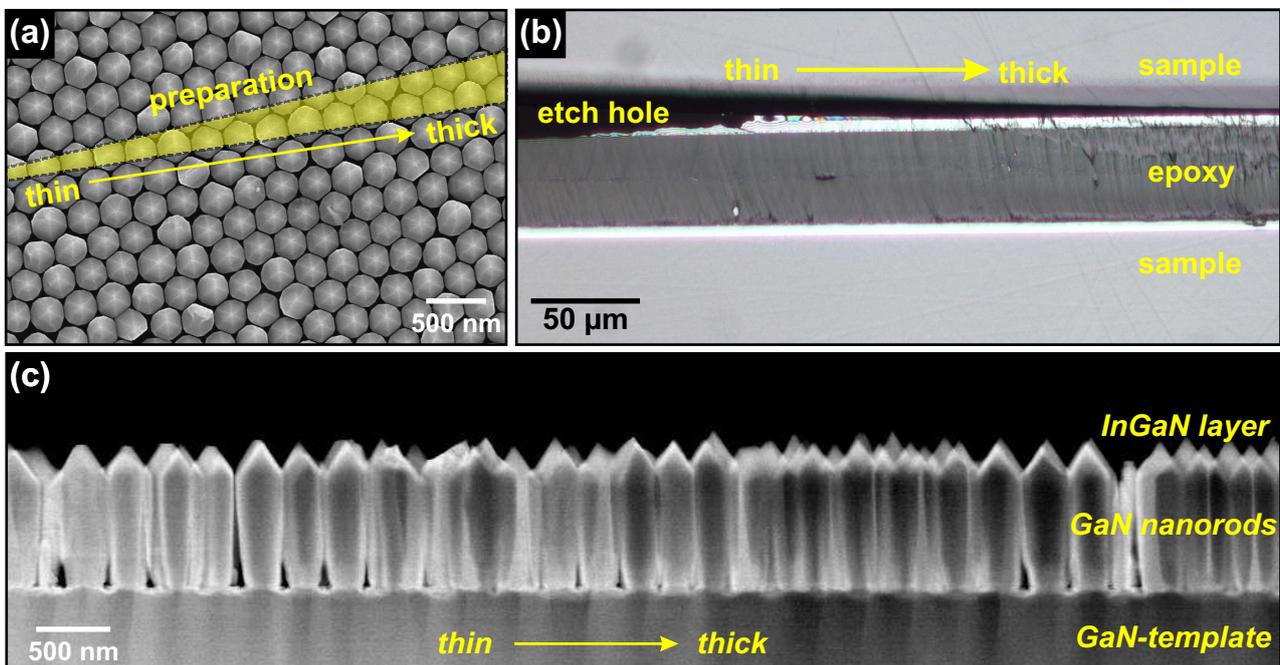


Abbildung 3.16: Dünnschliff-Präparation von axialen InGaN/GaN-Nanosäulen: (a) Auswahl des Probenbereichs mittels SEM-Analyse; (b) lichtmikroskopische Aufnahme der TEM-Probe nach der Ionendünnung; (c) STEM Aufnahme im HAADF-Kontrast aus dem elektronentransparenten Bereich der Probe.

Insbesondere für koaxiale Mikrosäulen, bei denen die aktiven Schichten radial um den GaN-Kern gewachsen sind, ist eine homogene Präparation entlang der Achse der Struktur notwendig. In Abb. 3.17 ist ein solches Beispiel einer koaxialen InGaN/GaN-Mikrosäule abgebildet. Die HAADF-Aufnahme in Bild 3.17(a) zeigt im unteren die GaN Pufferschicht und die darauf gewachsene Mikrosäulenheterostruktur. Für diese wurde auf einen Si-dotierten GaN-Kern ein InGaN-Quantenfilm auf die non-polaren Facetten abgeschieden (eine detaillierte Analyse der Struktur geschieht in Kapitel 5). Wie im STEM-Bild deutlich anhand des Kontrastverlaufs von dunkel zu hell zu sehen, bildet sich vertikal entlang der Mikrosäule ein Dickengradient der Lamelle aus. Auf Grund einer stärkeren Absorption der einfallenden Elektronen im unteren, dickeren Bereich wird eine niedrige HAADF-Intensität de-

tektiert. Zum oberen Bereich nimmt die Lamellendicke ab und die Anzahl der transmittierten bzw. gestreuten Elektronen steigt an.

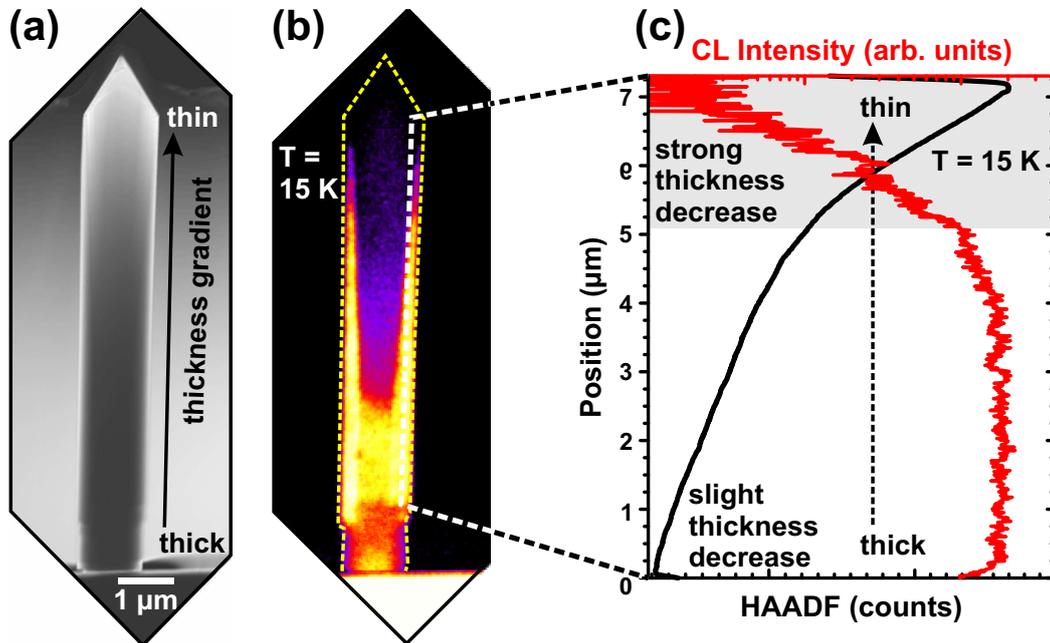


Abbildung 3.17: Dünnschliff-Präparation einer InGaN/GaN-Mikrosäule: (a) HAADF-Aufnahme; (b) panchromatisches Intensitätsbild; (c) Linescan entlang der non-polaren Facette zum Vergleich die HAADF-Intensität mit der CL-Intensität.

Dieser Lamellendickengradient wird auch im gleichzeitig aufgenommenen panchromatischen CL-Intensitätsbild in Abb. 3.17(b) sichtbar. Im unteren, dickeren Bereich der Mikrosäule wird eine deutlich höhere CL-Intensität detektiert. Entlang der Säule nimmt die CL-Intensität zum oberen, dünneren Bereich sehr stark ab. Eine detaillierte Gegenüberstellung von HAADF-Kontrast und panchromatischer Intensität ist im Linescan in Abb. 3.17(c) zusammengefasst. Hier wird deutlich, dass die HAADF-Intensität im unteren Bereich nur leicht zunimmt, also eine geringe Dickenreduktion stattfindet. Gleichzeitig wird hier eine nahezu konstante CL Intensität beobachtet. Zum oberen Bereich der Mikrosäule zeigt sich nun eine starke Zunahme der HAADF-Intensität, die Probe wird also erheblich dünner. Im Vergleich dazu nimmt die CL-Intensität in dieser Region exponentiell ab. Grund hierfür ist zum einen, dass das Wechselwirkungsvolumen reduziert wird und zum anderen werden in den dünnsten Bereichen nicht-strahlende Oberflächenrekombinationen zum dominierenden Effekt. In Folge dessen beeinflussen Schichtdickengradienten durch die konventionellen Dünnschliff-Präparation die Messung maßgeblich und müssen bei der Interpretation der Daten berücksichtigt werden.

Zielpräparation von einzelnen Nanostrukturen mittels fokussiertem Ionenstrahl

Während die konventionelle Dünnschlifftechnik keine gezielte Auswahl einzelner Nano- oder Mikrosäulen zur Präparation zulässt, kann dies durch das Heraustrennen individueller Strukturen mittels eines fokussiertem Ionenstrahls erreicht werden. Zur Zielpräparation von Nanostrukturen sind insbesondere hochauflösende FIB-Geräte mit zwei unabhängigen Säulen (engl. *dual beam*) vorteilhaft zu verwenden. Die erste erzeugt einen feinfokussierten Elektronenstrahl zur rasterelektronenmikroskopischen Abbildung, die zweite einen fokussierten Gallium-Ionenstrahl. In Darstellung 3.18 ist schematisch die herkömmliche FIB-Präparation im „lift-off“-Verfahren gezeigt.

Im ersten Schritt der Präparation wird auf den ausgewählten Probenbereich eine zusätzliche Schutzschicht aufgebracht. Diese dient zum einen zur Reduktion von Oberflächenamorphisierung bei kristallinen Proben und zum anderen dem Schutz vor einer Implantation von Gallium-Ionen in der Lamelle. Dazu wird mittels eines lokalen Gasinjektionssystems bei geringem Druck ein schwermetallhaltiges (Platin) Kohlenwasserstoffgas auf die Probenoberfläche geleitet und der zu schützende Bereich mit dem Elektronen- oder Ionenstrahl abgerastert. Durch die damit verbundene Energiezufuhr vernetzen die Kohlenwasserstoffe und bilden an der Auftreffstelle von Elektronen- oder Ionenstrahl eine feste, metallhaltige Schutzschicht [153].

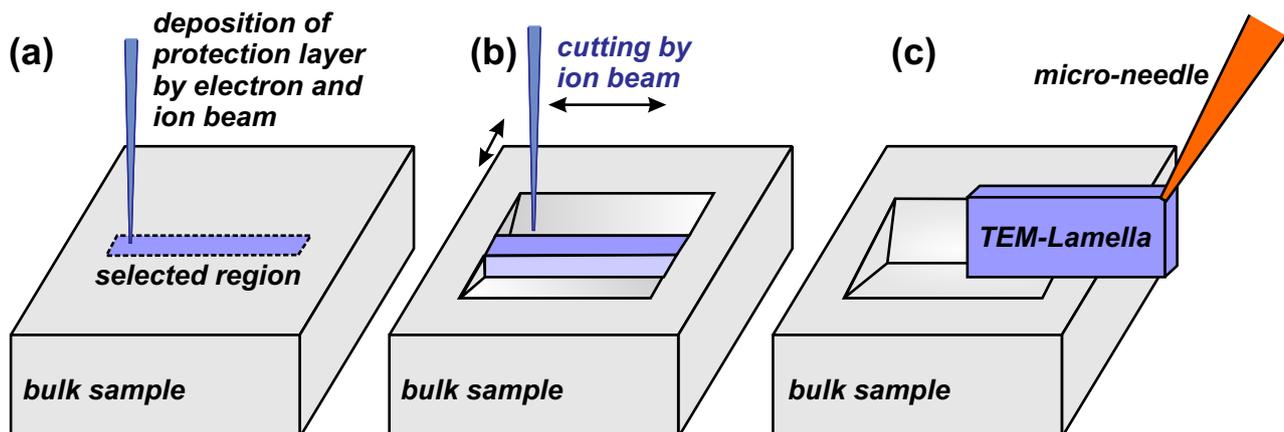


Abbildung 3.18: FIB-Präparation von Nanostrukturen: (a) Aufbringen einer Schutzschicht auf den zuvor ausgewählten Probenbereich; (b) Freischneiden der Lamelle mittels Gallium-Ionenstrahl; (c) Heraustrennen der Lamelle und Transport zum Träger mit Hilfe einer Mikronadel.

Nachdem die Probe vor der Strahlschädigung geschützt ist, wird der ausgewählte Probenbereich mit Hilfe des hochenergetischen Ionenstrahls (20 kV) freigeschnitten und das umliegende Material entfernt (siehe Abb. 3.18(b)). Sofern der Probenbereich frei liegt, wird die Lamelle nun aus dem Kompaktmaterial heraus getrennt und mittels einer Mikronadel unter rasterelektronenmikroskopischer Kontrolle an einem Träger angeschweißt (Abb. 3.18(c)).

Die in Kapitel 4 vorgestellten FIB-präparierten GaN Nanosäulen Probe wurden von Herrn A. Urban in der Arbeitsgruppe von Frau A. Rizzi an der Georg-August-Universität Göttingen hergestellt. Für die STEM-CL Messungen musste die FIB-Präparation optimiert werden. So ist vor allem die Strahlschädigung durch die Verwendung des energiereichen Gallium-Ionenstrahl ein limitierender

Faktor. Dementsprechend wurde vor dem Aufbringen einer Platin-Schutzschicht auf die Oberfläche, ex-situ eine 200 nm dicke Si_3N_4 -Schicht mittels Plasma-unterstützter chemischer Gasphasenabscheidung auf die Nanosäulen gedampft. Das anschließende Abscheiden der Platin-Schicht geschieht in einem zweistufigen Verfahren. Zu Beginn wird das Platin mittels Elektronenstrahlverdampfung aufgetragen, gefolgt von der Ionenstrahlverdampfung. Das Freilegen und Heraustrennen der FIB-Lamelle ist in Bild 3.19 gezeigt.

Anders als in der herkömmlichen FIB-Präparation geschieht das finale Abtragen bzw. das Abdünnen der Lamelle nicht bei hohen Beschleunigungsspannungen. Die Beschleunigungsspannung des Ionenstrahls ist für die Präparation von STEM-CL Lamellen auf 5 kV im letzten Schritt reduziert. Zum weiteren Schutz vor Strahlschädigung trifft der Gallium-Ionenstrahl unter sehr kleinen Winkeln ($1,5^\circ$) parallel zur Wachstumsrichtung auf die Probe. Nach dem Abdünnen der Probe innerhalb der FIB beträgt die übliche Schichtdicke rund 250 nm. Die finale Abdünnung der Probe geschieht, wie auch in der konventionellen Dünnschliff-Präparation, mittels Argon-Ionen im *Precision Ion Polishing System*. Gleichzeitig werden mit Hilfe der Argon-Ionen die durch die FIB-Präparation entstandene Oberflächenamorphisierung abgetragen. Eine detaillierte Beschreibung der Querschnitts-Präparation ist in der Dissertation von Herrn A. Urban zu finden [154].

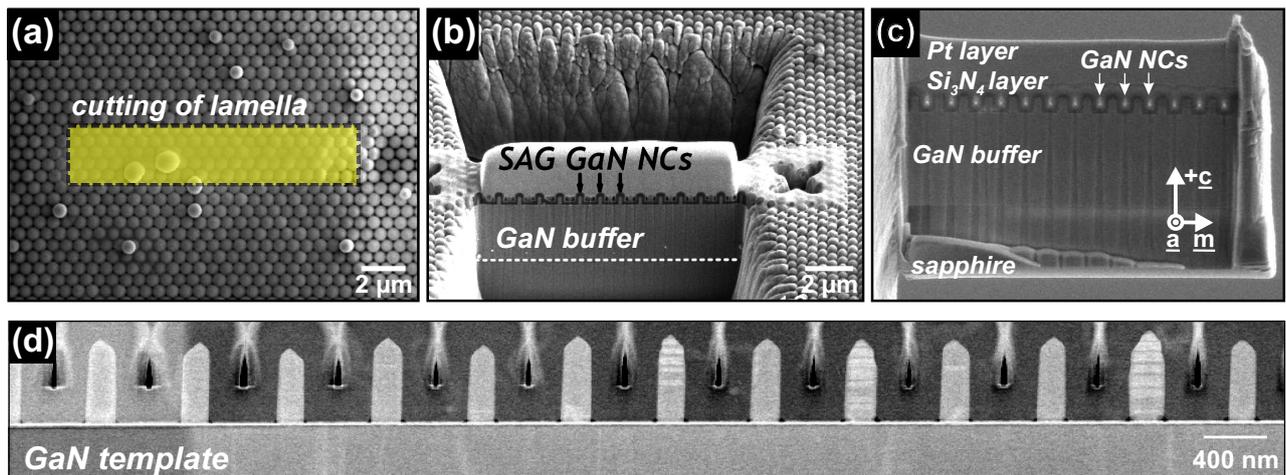


Abbildung 3.19: FIB-Präparation von GaN Nanosäulen für STEM-CL Messungen: (a) Abscheidung von Platin mittels Elektronenstrahl- und anschließender Ionenstrahlverdampfung auf das ausgewählte Probengebiet; (b) Freischneiden der GaN Nanosäulen mittels Gallium-Ionenstrahl, (c) FIB-Lamelle nach dem Ionenstrahl-Abdünnen auf eine elektronentransparente Dicke; (d) STEM-Querschnittsaufnahme der GaN-Nanosäulen nach Präparation. ³

Diese optimierte Präparationsmethodik hat sich für STEM-CL Messungen an Nanostrukturen als erfolgreich erwiesen und konnte auch auf andere Strukturen angewandt werden [88]. Ein deutlicher Vorteil dieser Zielpräparation ist zum einen die genaue Auswahl des zu präparierenden Bereichs, zum anderen können starke Schichtdickengradienten der Lamelle verhindert werden. Nachteilig hingegen ist, dass nur kleine Probenbereiche präpariert werden können und ein deutlicher Mehraufwand mit dem FIB-Verfahren besteht.

³Die FIB-Präparation von GaN Nanosäulen wurde von Herrn A. Urban mit einem Nova 600 NanoLab Dual Beam an der Georg-August-Universität Göttingen angefertigt.

4 Korrelation der optischen und strukturellen Eigenschaften von GaN-Nanosäulen

Im folgendem Kapitel werden die optischen Rekombinationsprozesse in ortsselektiv gewachsenen GaN-Nanosäulen detailliert diskutiert. Zur Untersuchung einzelner Nanosäulen mit Hilfe der Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop wurde erstmalig eine modifizierte FIB-Präparation mit minimaler Schädigung der elektronischen Eigenschaften eingesetzt. Dies ermöglicht eine orts aufgelöste Korrelation der optischen mit den strukturellen Eigenschaften auf Nanometer-Skala, sodass die elektronische Struktur der Nanosäulen direkt visualisiert werden kann. Die hohe kristalline Qualität der Nanosäulen erlaubt insbesondere die analytische Charakterisierung von einzelnen Basalflächenstapelfehlern im GaN-Materialsystem. Dabei wird die spezifische Emission unterschiedlicher Stapelfehlertypen in dreidimensionalen Nanostrukturen eindeutig nachgewiesen. Daran anschließend wird die zeitliche Rekombinationskinetik und die Auswirkung von Polarisationsfeldern auf die Stapelfehler-Emission diskutiert.

4.1 Selektives Zonenwachstum und Morphologie von GaN-Nanosäulen

Die in diesem Kapitel vorgestellten Proben wurden von der Georg-August-Universität Göttingen (Arbeitsgruppe A. Rizzi) bereitgestellt. Die GaN-Nanosäulen wurden ortsselektiv auf eine kommerziell erhältliche, planare Pufferstruktur (Hersteller: LUMILOG) gewachsen. Der Herstellungsprozess der GaN-Nanosäulen ist schematisch in Abbildung 4.1(a) - (d) dargestellt.

Als Basis für das Wachstum der GaN-Nanosäulen dient eine in [0001]-Richtung orientierte $3,5 \mu\text{m}$ dicke GaN-Pufferschicht, welche mittels metallorganischer Gasphasenepitaxie auf ein Saphir-Substrat abgeschieden wurde (Abb. 4.1(a)). Voraussetzung für das uniforme Wachstum von Nanosäulen ist eine Maskierung der Ga-polaren GaN-Oberfläche. Dazu wurde auf die Pufferschicht mit Hilfe der Elektronenstrahlverdampfung eine nominell 10 nm dicke Molybdän-Schicht homogen abgeschieden (siehe Abb. 4.1(b)). Diese im weiteren Verlauf zu strukturierende Mo-Schicht dient dem selektiven Zonenwachstum der GaN-Nanosäulen, welches eingehend in Kapitel 2.4 erläutert wurde. Um insbesondere eine glatte Molybdän-Oberfläche für den sich anschließenden Epitaxieprozess zu erhalten, wurde eine niedrige Abscheiderate von 1 \AA/s während der Elektronenstrahlverdampfung gewählt.

Im nächsten Prozessierungsschritt wurden unter Verwendung von hochorts aufgelöster Elektronenstrahlolithographie kreisrunde Löcher in hexagonaler Anordnung in die Mo-Schicht eingebracht (siehe Abb. 4.1(c)). Für den Lithographieprozess ist es notwendig, einen Elektronenstrahl-empfindlichen Photolack auf die Probe aufzubringen, welcher anschließend vom Elektronenstrahl belichtet wird. Im Anschluss an die Elektronenstrahlexposition und der Photolack-Entwicklung werden durch reakti-

ves Ionenätzen (engl. *reactive ion etching* — RIE) Löcher in die Mo-Schicht bis zur GaN-Oberfläche geätzt. Zum Ätzen wurde eine Mischung aus SF₆- und Ar-Gas mit einer Ätzrate von 3 Å/s eingesetzt. Der verbliebene Photolack wird nach dem Ätzprozess chemisch von der Probenoberfläche entfernt. Das im Vorfeld entworfene Maskenlayout wurde für mehrere quadratische Felder von 80 × 80 μm² Größe lithographisch prozessiert, wobei sowohl Durchmesser als auch Abstand der Nanosäulen auf den Feldern variiert wurden. Für das in dieser Arbeit relevante Nanosäulenfeld betragen der nominelle Durchmesser und Abstand d_{hole} = 100 nm bzw. p_{hole} = 500 nm.

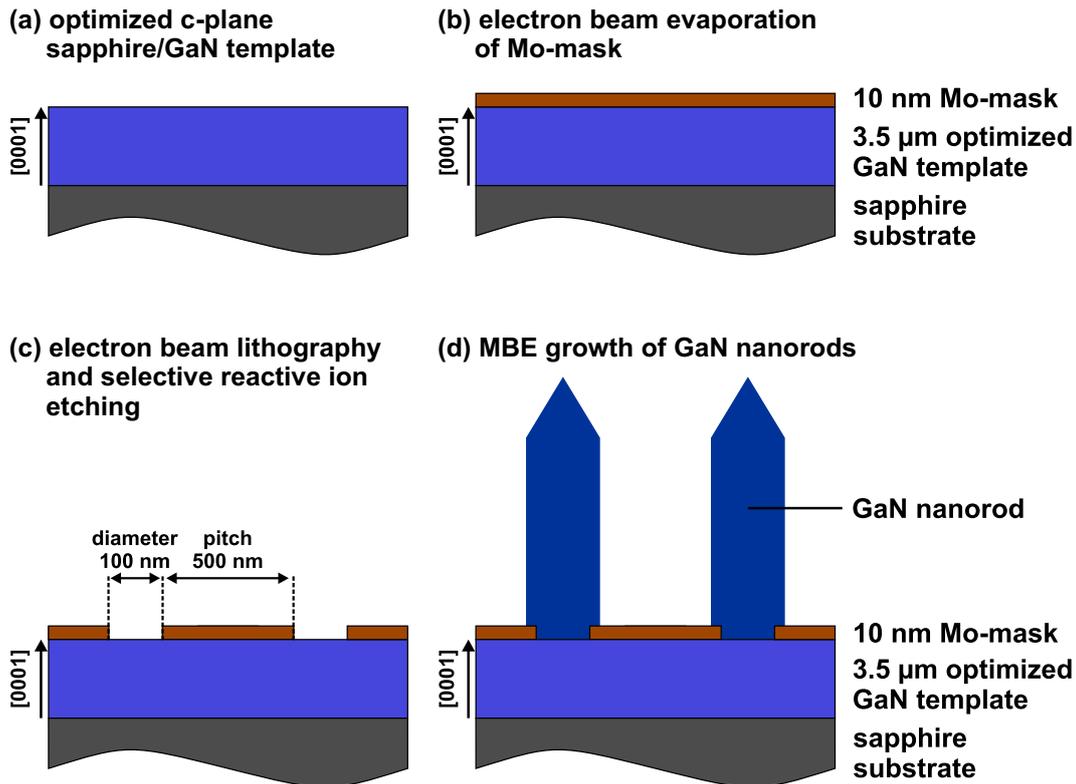


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung des ortsselektiven Wachstumsprozesses von GaN-Nanosäulen: (a) Auf eine optimierte, in c-Richtung orientierte GaN/Saphir-Pufferstruktur wird (b) mittels Elektronenstrahlverdampfung eine 10 nm dicke Molybdän-Schicht abgeschieden. Anschließend wird in Verbindung von Elektronenstrahlolithographie mit reaktiven Ionenätzen eine definierte Maske aus kreisrunden Löchern in die Molybdän-Schicht prozessiert. Im letzten Schritt (d) werden mittels Molekularstrahlepitaxie GaN Nanosäulen vertikal aus den Löchern gewachsen.

Das selektive Zonenwachstum (engl. *selective area growth* — SAG) der GaN-Nanosäulen erfolgt anschließend mittels Molekularstrahlepitaxie (engl. *molecular beam epitaxy* — MBE) in einem Veeco GenII MBE System, ausgestattet mit einer UNIBULB RF-Stickstoffquelle und Effusionszellen zur Verdampfung von Gruppe-III-Elementen. Die Wahl der Wachstumsparameter war derart, dass ein vertikales Wachstum der Nanosäulen vorrangig in die [0001]-Richtung gefördert wird. Das nominelle Stickstoff-zu-Gallium-Verhältnis während des Wachstums beträgt 9:1, bei einer Substrat-Temperatur von 780°C. Die Wachstumszeit der dreidimensionalen GaN-Säulen im MBE-Prozess betrug 3 Stunden.

Morphologische Eigenschaften der Nanosäulen

In Abbildung 4.2 ist eine rasterelektronenmikroskopische Übersichtsaufnahme der Probenoberfläche (a) sowie die Vergrößerung einer einzelnen Nanosäule in Schräg- (b) und in Aufsicht (c) dargestellt. Die Übersichtsaufnahme zeigt deutlich die gleichmäßige Anordnung der GaN-Nanosäulen (im helleren SE-Kontrast) auf der Pufferstruktur. Die Mo-Maske erscheint als dunklerer Kontrast zwischen den Nanosäulen. Das MBE-Wachstum findet also ausschließlich aus den per Lithographie prozessierten Löchern in der Maske statt. Zwischen den Nanosäulen, auf der Mo-Schicht, ist kein parasitäres Wachstum von selbstorganisierten Nanostrukturen zu beobachten.

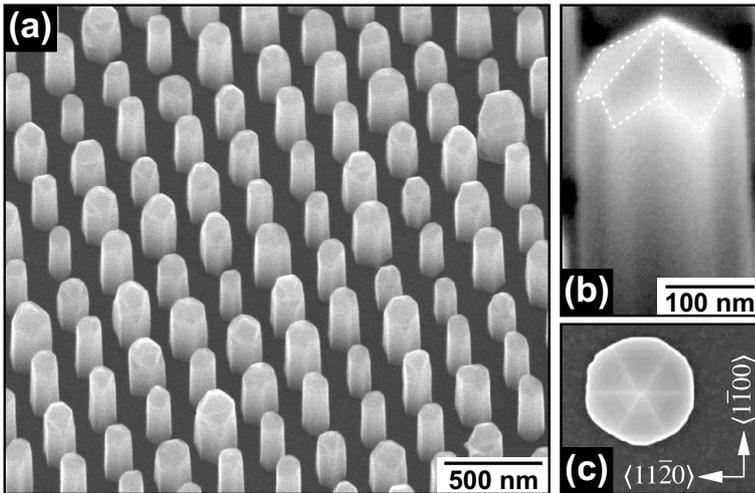


Abbildung 4.2: (a) SEM-Übersichtsaufnahme der selektiv gewachsenen GaN-Nanosäulen auf der Pufferoberfläche unter 45° Ansicht. Die Morphologie einer einzelnen Nanosäule ist rechts vergrößert in (b) und (c) gezeigt [121].

Die SEM-Untersuchungen belegen die hexagonale Morphologie der Nanostrukturen. Im unteren Bereich werden die Säulen von sechs non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten terminiert. Wie in der vergrößerten Aufnahme in Abb. 4.2(b) erkenntlich ist, bilden sich hingegen im Bereich der Spitze semi-polare Facetten. Aus den Winkelerorientierungen der Oberflächen zur $(1\bar{1}00)$ -Ebene lassen sich die Indizes der semi-polaren Facetten ableiten. Demzufolge wird die Spitze der Nanosäule von semi-polaren $\{1\bar{1}02\}$ -Facetten terminiert. Die Morphologie der Nanosäulen-Spitze sowie die Bildung von semi-polaren Facetten ist insbesondere vom V/III-Verhältnis während des MBE-Prozesses abhängig. Zu Beginn der Nukleation treten, in Folge der Diffusion von Ga-Atomen auf der Mo-Oberfläche, in den geätzten Maskenlöchern lokal Ga-reiche Wachstumsbedingungen auf. Im weiteren Verlauf des Wachstums bilden sich an der Spitze der Nanosäule jedoch Stickstoff-reiche Bedingungen aus. Grund dafür ist die niedrigere Diffusionslänge der Ga-Atome entlang der Oberfläche der Nanosäulen im Vergleich zur Mo-Oberfläche [91, 155]. Unter Stickstoff-reichen Bedingungen werden typischerweise semi-polare Facetten gebildet, wohingegen Gallium-reiche Bedingungen zur Formation einer c-planaren Oberfläche an der Spitze der Nanosäulen führen würden [91, 156].

Die mittlere Höhe (h_{NR}) und Durchmesser (d_{NR}) der Strukturen betragen nach dem 3 stündigen Wachstum rund $h_{NR} = 550$ nm respektive rund $d_{NR} = 160$ nm. Das daraus resultierende Aspektverhältnis von $h_{NR}/d_{NR} \approx 3,4$ belegt, dass die Nanosäulen eine deutlich größere freie Oberfläche ausbilden als eine vergleichbare planare Schicht.

4.2 Rekombinationsprozesse in dreidimensionalen GaN-Nanosäulen

Zum Vergleich der optischen und strukturellen Eigenschaften des Nanosäulenfeldes wurden mit Hilfe von ortsaufgelöster Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rasterelektronenmikroskop die Emissionswellenlängenverteilung und Intensitätsverteilung analysiert. Sämtliche Untersuchungen haben bei einer Beschleunigungsspannung von $U_{\text{acc}} = 3 \text{ kV}$ und einem Strahlstrom von $I_b = 1,2 \text{ nA}$ stattgefunden. Damit ergibt sich nach Gleichung 3.1 eine Bethe-Range von $R_{\text{Bethe}} = 90 \text{ nm}$, sodass jeweils einzelne Säulen angeregt werden. In Abb. 4.3(a) ist die spektral-integrale CL-Intensitätsverteilung der GaN-Nanosäulen auf der c-planaren Oberfläche der Pufferstruktur bei Tieftemperatur ($T = 6 \text{ K}$) gezeigt. Die maximale Intensität wird von den homogen angeordneten Nanosäulen detektiert. In den dazwischen liegenden Bereichen der nicht überwachsenen GaN-Pufferstruktur dominieren hingegen nicht-strahlende Rekombinationsprozesse, welche zu einem drastischen Abfall der Lumineszenzintensität über zwei Größenordnungen führen. Durch die homogene Anordnung der ortsselektiv gewachsenen Nanosäulen ergibt sich im Intensitätsbild eine örtlich charakteristische Lumineszenzverteilung.

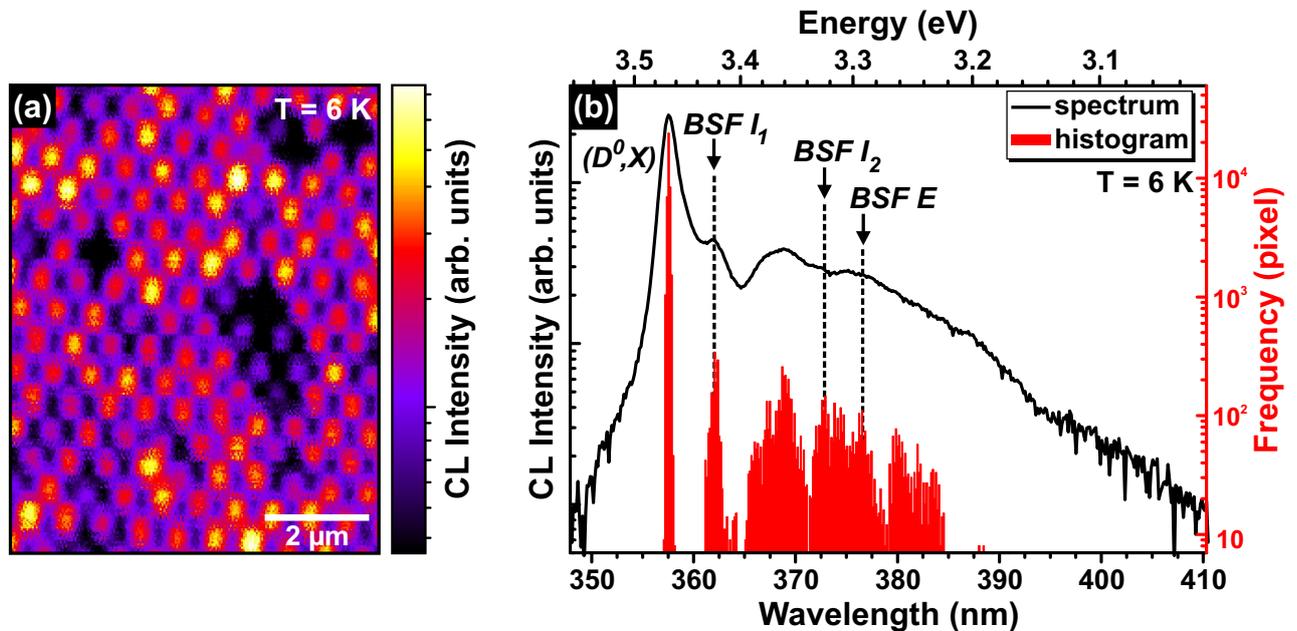


Abbildung 4.3: (a) Übersicht der spektral-integralen Kathodolumineszenz-Intensitätsverteilung sowie (b) das dazugehörige ortsintegrale CL-Spektrum des Probenausschnitts bei $T = 6 \text{ K}$. Die Emissionswellenlängen der Stapelfehlertypen sind nach den Referenzen [157–159] im Spektrum zugeordnet.

Der detaillierte Vergleich der emittierten Intensität einzelner Nanosäulen offenbart jedoch untereinander lokale Intensitätsschwankungen, welche auf signifikante Unterschiede in der kristallinen Realstruktur der dreidimensionalen Säulen zurückzuführen sind. So können strukturelle Defekte in den GaN-Nanosäulen als nicht-strahlende Rekombinationszentren für die generierten Elektron-Loch-Paare dienen und infolge dessen zu einer Reduktion der Intensität führen.

Eine Übersicht der optischen Rekombinationsprozesse ist in dem zum Probenbereich korrespondierenden ortsintegralen Spektrum in Abb. 4.3(b) halblogarithmisch dargestellt. Das Spektrum wird dominiert von der Lumineszenz des neutralen Donator gebundenen Exzitons (D^0,X) bei $357,5 \text{ nm}$

mit einer Halbwertsbreite von $\text{FWHM} = 18 \text{ meV}$. Die Position der Exzitonen-Lumineszenz ist im Vergleich zu undotiertem, unverspanntem GaN leicht zu geringeren Energien verschoben [160]. Das Histogramm der Peak-Wellenlängenverteilung in Abb. 4.3(b) zeigt zudem die Häufigkeitsverteilung der spektralen Anteile maximaler Intensität im untersuchten Probenbereich. Die Verteilung gibt Aufschluss über die Homogenität der einzelnen Anteile sowie deren Standardabweichung. Der Anteil der (D^0, X) -Lumineszenz überwiegt mit einer Häufigkeit von 82% im Großteil der Nanosäulen. Die Auswertung des Histogramms ergibt außerdem eine geringe Standardabweichung von $\sigma_{(D^0, X)} = 2 \text{ meV}$ der (D^0, X) -Emission, was auf eine hohe Homogenität der GaN-Nanostrukturen hinweist.

Zusätzlich zur exzitonen Lumineszenz tritt auf der niederenergetischen Seite bei 362,0 nm ein weiterer Emissionspeak mit schwächerer Intensität auf. Dieser Peak kann dem Basalflächenstapelfehler vom Typ I_1 zugeordnet werden [157, 161, 162]. Weiterhin lässt sich zu längeren Wellenlängen, im Spektralbereich zwischen 366 nm bis 395 nm, eine breite Lumineszenzbande beobachten. Insbesondere im Histogramm lassen sich hier einzelne Rekombinationsprozesse unterschiedlichen Lumineszenzkanälen zuordnen. In diesem Spektralbereich können weitere Typen von Stapelfehlern wie auch kubische Einschlüsse in der Wurtzit-Matrix zur Lumineszenz beitragen [158, 159, 163, 164]. Die Übergangsenergien für die in der Literatur angegebenen Werte von Stapelfehlern sind im Spektrum vergleichend markiert. Infolge der spektralen Verbreiterung durch die örtliche Integration über das Nanosäulen-Ensemble erscheint die Defekt-Lumineszenz im integralen Spektrum als breite Lumineszenzbande. Lokale Spektren in Abb. 4.6 und hochauflösende Messungen in Kapitel 4.3 belegen die Lumineszenz individueller Defekte mit separierten Emissionspeaks. Im Weiteren soll ein Überblick über die atomare Struktur von Stapelfehlern und deren optische Eigenschaften gegeben werden.

Atomare und elektronische Struktur von Basalflächenstapel Fehlern

Wie eingangs in Kapitel 2.1 beschrieben, kristallisiert GaN im Normalfall in der energetisch favorisierten Wurtzitstruktur. Anders als beim Wachstum von c-planaren GaN-Strukturen kann die epitaktische Züchtung von nitridischen Nanosäulen lokal zu einer energetischen Stabilisierung der Zinkblende-Phase führen [163]. Insbesondere können Monolagen dünne kubische Einschlüsse in der hexagonalen Matrix wie Basalflächenstapelfehler (engl. *basal-plane stacking fault* — BSF) auftreten. Die Entstehung von Basalflächenstapel Fehlern wird auch in non- und semi-polar orientierten GaN sowie in lateral epitaktisch überwachsenen Strukturen häufig beobachtet [157, 158, 162, 165, 166].

Im Allgemeinen können Stapelfehler im GaN als planare Defekte betrachtet werden, die lokal eine kubische ABC -Stapelfolge in der idealen hexagonalen Stapelfolge ausbilden. Sie entstehen durch die Verschiebung zweier gleichorientierter Kristallbereiche um einen Translationsvektor, der ungleich einem Gittervektor ist. Folglich lassen sich die unterschiedlichen Stapelfehler durch ihren Verschiebungsvektor beschreiben. Der Gitterbaufehler resultiert in einer Änderung der Stapelfolge senkrecht zum Verschiebungsvektor. In der Wurtzitstruktur des GaN können vier Formen von Stapelfehlern in der basalen Ebene auftreten: drei intrinsische (BSF I_1 , BSF I_2 und BSF I_3) und ein extrinsischer (BSF E) [165, 167].

Der Basalflächenstapelfehler I_1 entsteht durch das Entfernen einer basalen Ebene und der Verschiebung des eines Teils des Kristalls gegenüber dem anderen um $1/3\langle 1\bar{1}00 \rangle$. Die ideale Stapelfolge

$ABABABABABAB$ geht in $ABABABCBCBCB$ (siehe Abb. 4.4(a)) über. Berechnungen von Stampfl und Van de Walle zur Bildung von Stapelfehlern im GaN zeigen, dass der BSF I_1 die niedrigste Bildungsenergie benötigt [168]. Anders als im GaN-Volumenkristall wird der BSF I_1 in Nanosäulen nicht durch eine Frank-Shockley Versetzung begrenzt, sondern durch die freien Oberflächen der dreidimensionalen Struktur terminiert.

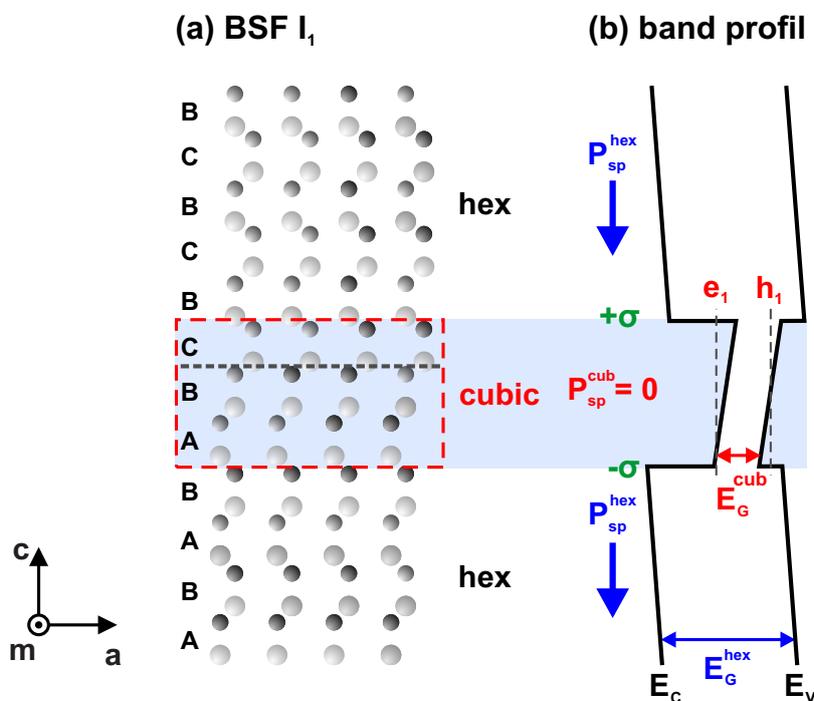


Abbildung 4.4: (a) atomare Stapelfolge des BSF I_1 im hexagonalen Kristall abgebildet auf die $(11\bar{2}0)$ -Ebene [165]; (b) schematischer Bandverlauf des in der Wurtzit-Matrix eingebetteten kubischen GaN-Quantenfilms als Typ-I Heteroübergang [161].

Ein erstes empirisches Modell zur Beschreibung der optischen Eigenschaften von Stapelfehlern geht auf Rebene *et al.* zurück und beschreibt die Rekombination von Exzitonen an polytypen Quantenfilmen [161]. Die Monolagen dünne kubische GaN-Schicht im hexagonalen Kristall bildet auf Grund der unterschiedlichen Bandlücke von Zinkblende- und Wurtzit-Kristallphase einen polytypen Quantenfilm aus. Eine schematische Darstellung der atomaren Stapelfolge des BSF I_1 und der daraus folgenden elektronischen Bandstruktur des BSFs als Typ-I Heteroübergang ist in Abb. 4.4(b) gezeigt. Anders als die kubische Phase besitzt die umgebene Wurtzit-Struktur eine inhärente, spontane Polarisation entlang der c -Richtung (siehe Kapitel 2.2), welche zur Bildung eines elektrischen Feldes senkrecht zum Quantenfilm führt. Aktuelle Dichte-funktional theoretische (DFT) Berechnungen der elektronischen Bandstruktur des Stapelfehlers von Belabbes *et al.* beschreiben einen Typ-I Heteroübergang mit einem Leitungsbandoffset von 170 meV [169]. Der Wert für den Valenzbandoffset ist hingegen mit 62 meV deutlich niedriger [169]. Demgegenüber stehen ältere Berechnungen von Stampfl *et al.*, welche einen Typ-II Heteroübergang vorhersagen [168]. Eine endgültige Antwort auf die Art der Bandlückendiskontinuität ist bis heute jedoch nicht gegeben. Unabhängig von der Art des Heteroübergangs sind für beide Fälle das Elektron und Loch auf Grund der spontanen Polarisation in der Wurtzit-Matrix örtlich separiert [169]. So ergeben die DFT-Rechnungen der Elektronen- und Loch-Wellenfunktionen

von Belabbes *et al.* auch für den Typ-I Heteroübergang eine starke Lokalisierung des Lochs nah der WZ-Barriere vergleichbar dem Typ-II Übergang.

Durch korrelierte TEM- und CL-Untersuchungen von Liu *et al.* gelang ein erster direkter Nachweis der Emission vom BSF I₁ bei 363,3 nm in a-planaren GaN-Strukturen [157]. Im Vergleich zu dem von Liu *et al.* beobachteten Wert für die Emissionsenergie des BSF I₁, tritt in den hier untersuchten Nanosäulen eine leicht blau verschobene Emission des Stapelfehlers um 362,0 nm auf. Ein Grund für die Verschiebung könnten unterschiedliche Stapelfehlerdichten im GaN sein. Typischerweise besitzen a-planare GaN-Schichten eine hohe Dichte an Stapelfehlern, wohingegen in Nanosäulen nur wenige, von einander isolierte Stapelfehler beobachtet werden können. Eine hohe Dichte an Stapelfehlern kann gleichermaßen wie ein Multi-Quantenfilm-System zu einer Modifikation der Übergangsenergien führen [166, 170]. Grund hierfür ist die quantenmechanische Kopplung der elektronischen Zustände im Quantenfilm, welche eine Änderung der Emissionswellenlänge bewirkt [171, 172]. Der Einfluss einer n-Dotierung auf die Emissionsenergie, wie von Badcock *et al.* beschrieben, wird im Falle des hier verwendeten MBE-Wachstums auf Grund der niedrigen Hintergrunddotierung ($N_D < 8 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) ausgeschlossen [173].

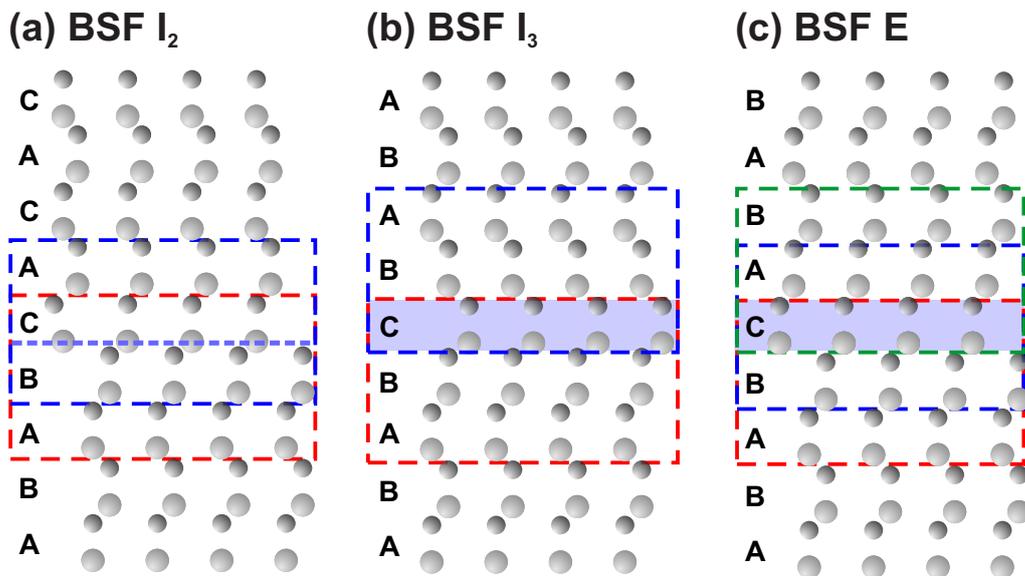


Abbildung 4.5: Atomare Stapelfolge des (a) BSF I₂ und (b) BSF I₃ sowie (c) des extrinsischen Basalfächenstapelfehlers E. Die kubischen Einschlüsse in der Wurtzitmatrix sind in der Stapelfolge hervorgehoben [165].

Einen weiteren Typ von Stapelfehler bildet der BSF I₂, welcher durch die Scherung um $1/3\langle 1\bar{1}00 \rangle$ eines Teils des Gitters gegenüber dem anderen generiert wird. Die Stapelfolge des BSF I₂ lautet *ABABBCACAC* und beinhaltet zwei kubische Doppelschichten (siehe Abb. 4.5(a)). Beschrieben wird der BSF I₂ durch den Translationsvektor $1/3\langle 1\bar{1}00 \rangle$. Die Übergangsenergie des BSF I₂ ist im Vergleich zum BSF I₁ auf Grund der größeren Quantenfilm-Schichtdicke niedriger und wurde erstmals von Tischer *et al.* bei 373,3 nm [158] nachgewiesen. Im ortsintegralen Spektrum in Abbildung 4.3(b) tritt der BSF I₂ durch die Integration über das Nanosäulen-Ensemble nur innerhalb der breiten niederenergetischen Emissionsbande auf.

Der extrinsische Basalflächenstapelfehler wird durch den Einschub einer zusätzlichen Ebene entlang der [0001]-Richtung gebildet, sodass der Gitterbaufehler zur neuen Stapelfolge $ABABABCABAB$ führt (siehe Abb. 4.5(c)). Anders als die intrinsischen Basalflächenstapelfehler bildet der extrinsische Typ drei kubische Doppelschichten aus. Konsequenterweise zeigt der extrinsische Basalflächenstapelfehler eine zu längeren Wellenlängen verschobene Emission um 377 nm [159].

Im Unterschied zu den bereits diskutierten und optisch nachgewiesenen Stapelfehlern ist der BSF I_3 bisher nur strukturell von Zharkov *et al.* im GaN beobachtet worden [165]. Betrachtet man die Stapelfolge des BSF I_3 mit $ABABABC BABAB$ (4.5(b)) so wird deutlich, dass der BSF I_3 auch als eine Folge von zwei direkt aufeinanderfolgende BSF I_1 angesehen werden kann. Ein Nachweis einer charakteristischen BSF I_3 -Lumineszenz wie auch eine direkte Korrelation der optischen und strukturellen Eigenschaften existiert in der Literatur bis dato nicht.

Lokale Emissionseigenschaften - optische Identifikation von Stapelfehlern

Zur genaueren Analyse der Stapelfehler-Lumineszenz soll das zum CL-Intensitätsbild (Abb. 4.3) korrespondierende, spektral-aufgelöste CL-Wellenlängenbild in Darstellung 4.6(a) betrachtet werden. Wie das CL-Wellenlängenbild beweist, dominiert die exzitonische Emission bei 357,5 nm (lila Farbkontrast) in dem Großteil der Nanosäulen.

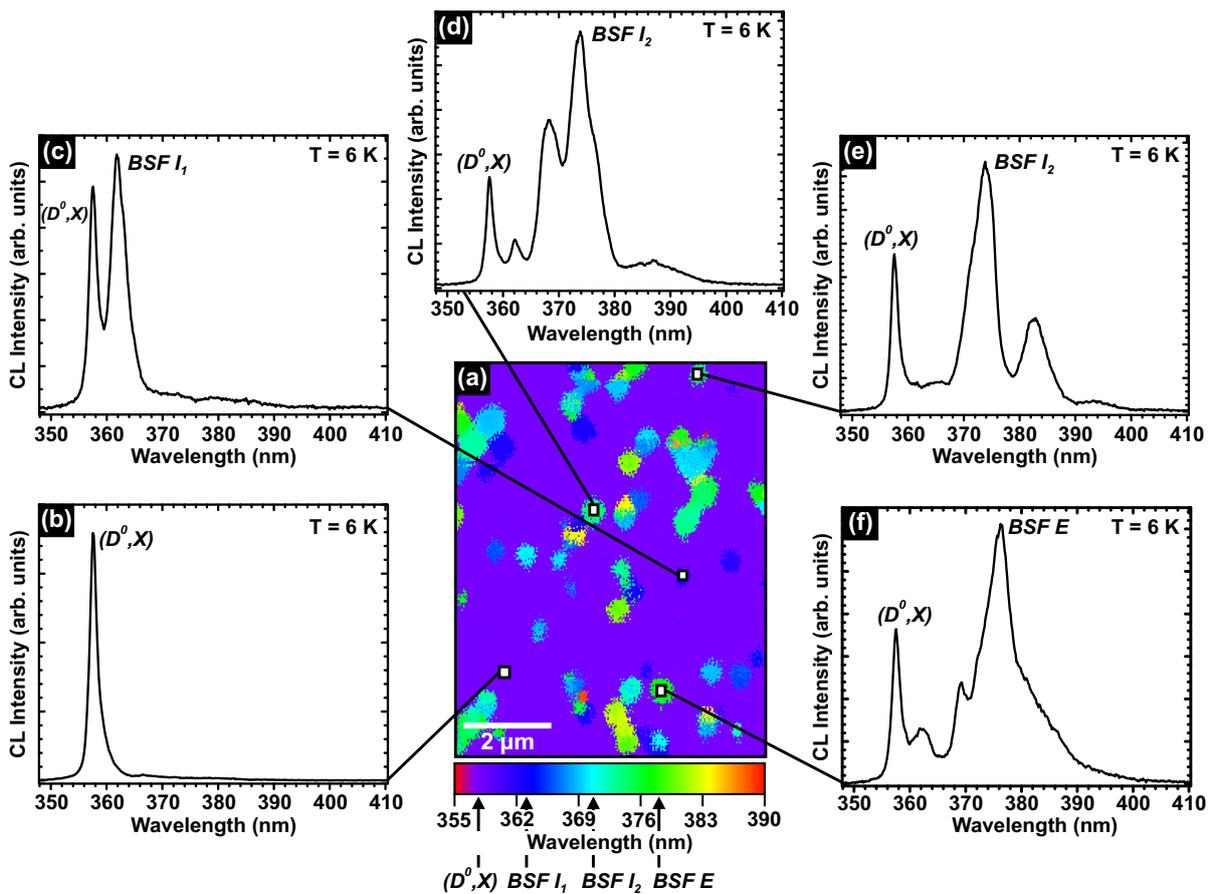


Abbildung 4.6: Lokaler Einbau von Stapelfehlern in GaN Nanosäulen: Örtliche Verteilung der Rekombinationsprozesse im CL-Wellenlängenbild (a) sowie lokale Spektren (b) - (f) von individuellen Säulen ($T = 6$ K).

In defektfreien Nanosäulen (Spektrum 4.6(b)) tritt ausschließlich die Donator gebundene Exziton-Lumineszenz auf. Demgegenüber ist im CL-Wellenlängenbild die BSF I₁-Lumineszenz bei 362,0 nm als blauer Farbkontrast in defektbehafteten Säulen sichtbar. Die niederenergetische BSF I₂-Emission ist als türkiser Farbkontrast erkenntlich. Die Auswertung des Wellenlängenbildes zeigt, dass der BSF I₂ in einigen der Nanosäulen als dominierender Rekombinationskanal auftritt.

Um die Linienform der Defekt-Lumineszenz näher zu charakterisieren, wurden lokale Spektren von einzelnen Nanosäulen angefertigt und in Abb. 4.6(b) - (f) dargestellt. Anders als im ortsintegrierten Spektrum zeigt sich in den lokalen Spektren deutlich das Auftreten voneinander separierbarer, scharfer Emissionspeaks der Basalflächenstapelfehler. Im lokalen Spektrum in Darstellung 4.6(c) wird zusätzlich zur (D⁰,X)-Lumineszenz bei 357,5 nm die BSF I₁-Emission detektiert. Das Peakmaximum der Defekt-Lumineszenz tritt bei 362,0 nm auf und besitzt eine Halbwertsbreite von FWHM = 25 meV. Die lokalen Spektren in Darstellung 4.6(d) und (e) zeigen zudem intensive Emissionslinien des BSF I₂ bei 373,8 nm in guter Übereinstimmung mit dem von Tischer *et al.* berichteten Wert. Die Halbwertsbreite der BSF I₂-Emission beträgt FWHM = 36 meV. Zusätzlich zu den Beiträgen der intrinsischen Basalflächenstapelfehler tritt im lokalen Spektrum (f) eine Emission bei 376,4 nm auf, welche dem extrinsischen Basalflächenstapelfehler zugeordnet werden kann. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit der von Lähnemann *et al.* beobachteten Emissionswellenlänge des BSF E in unverspannten GaN-Mikrokristallen bei 377 nm [159].

Aus den SEM-CL-Untersuchungen lässt sich bereits feststellen, dass in den Nanosäulen unterschiedliche Typen von Basalflächenstapelfehlern auftreten. Zusammenfassend sind in Tabelle 4.1 die Stapelfolgen und die spektralen Positionen der Emissionswellenlängen der Basalflächenstapelfehler gegenübergestellt.

Tabelle 4.1: Übersicht der atomaren Stapelfolge und Emissionswellenlänge der Basalflächenstapelfehler:

Defekttyp	Stapelfolge	Emissionswellenlänge
BSF I ₁	<i>ABABABCBCBC</i>	362,0 nm
BSF I ₂	<i>ABABABCACAC</i>	373,8 nm
BSF E	<i>ABABABCABAB</i>	376,4 nm

Mikroskopische Lumineszenzverteilung der Stapelfehler-Emission

Einen Überblick über die Intensitätsverteilung der Stapelfehler-Emission zeigen die monochromatischen Intensitätsbilder in Abb. 4.7. Zum Vergleich ist die exzitonische (D⁰,X)-Lumineszenz, im Wellenlängenbereich von 357,0 - 358,5 nm (Abb. 4.7(a)) zusätzlich dargestellt. Der Großteil der GaN-Nanosäulen zeigt eine homogene Verteilung der (D⁰,X)-Emission. Lokal treten jedoch Säulen auf, die eine starke Reduktion der exzitonischen Emission über mehrere Größenordnungen aufweisen (mit weißen Strichen in den Intensitätsbildern markiert).

Die direkte Korrelation mit den monochromatischen Intensitätsbildern der unterschiedlichen BSF-Typen in Abb. 4.7(b) - (c) zeigt, dass die BSF-Emission in genau den Säulen auftritt, in denen die exzitonische Lumineszenz reduziert ist. Hier stellt sich ein deutlich komplementäres Verhalten zwischen exzitonischer und BSF-Lumineszenz heraus. Die verringerte Quantenausbeute der exzitonischen

Lumineszenz in den Säulen mit Stapelfehlern kann darauf zurückgeführt werden, dass die generierten Ladungsträger bzw. Exzitonen innerhalb ihrer Diffusionslänge und Lebensdauer zu dem Quantenfilm gelangen können und dort strahlend rekombinieren. Liegt die Strukturgröße der Nanosäulen im Bereich der Diffusionslänge wird ein Großteil der freien Ladungsträger zu den Stapelfehlern diffundieren und zur Defekt-Lumineszenz beitragen. Aus der statistischen Auswertung der Intensitätsbilder lässt sich folglich ableiten, dass in über 30% der Nanostrukturen Stapelfehler gebildet werden.

Einen tieferen Einblick in den Transport der freien Ladungsträger innerhalb einzelner Nanosäulen und der Formation von Basalflächenstapelfehlern geben die im folgenden Kapitel angefertigten STEM-CL-Untersuchungen.

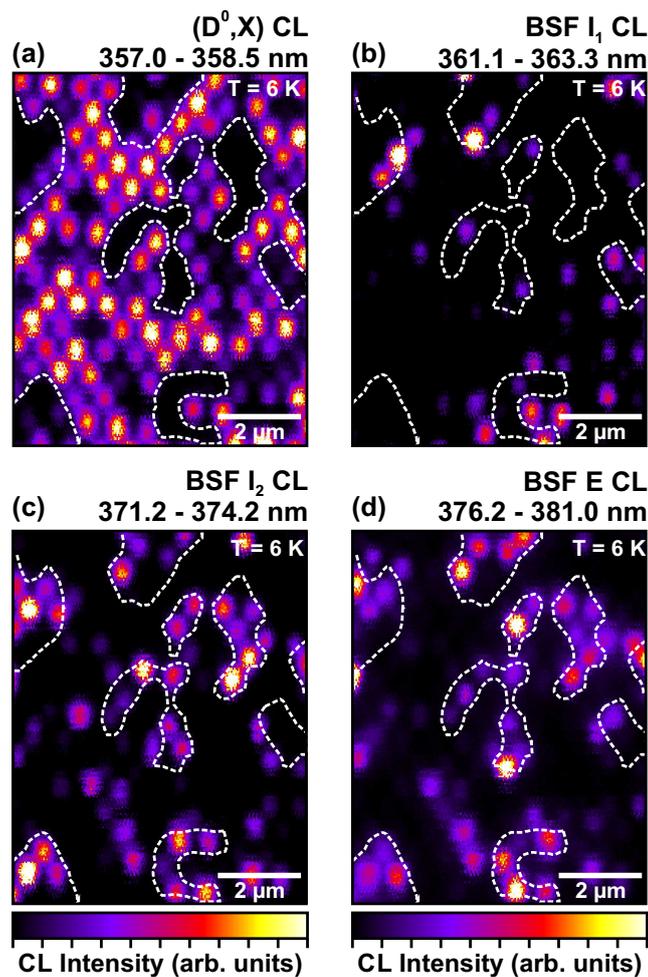


Abbildung 4.7: Monochromatische Kathodolumineszenz-Intensitätsbilder der einzelnen Rekombinationskanäle bei $T = 6$ K in linearer Darstellung: (a) Intensitätsverteilung der Donator gebundenen Exziton Emission von 357,0 - 358,5 nm; (b) Intensitätsbild BSF I_1 -Lumineszenz im Spektralbereich von 361,1 - 363,3 nm; (c) Verteilung der CL-Intensität des BSF $_2$ von 371,2 - 374,2 nm; (d) Intensitätsbild der BSF E-Emission von 376,2 - 381,0 nm. Zur direkten Korrelation sind Gebiete in denen eine Reduktion der (D^0,X) -Intensität auftritt, weiß gestrichelt markiert.

4.3 Hochortsaufgelöste Charakterisierung einzelner GaN-Nanosäulen mittels STEM-CL

Nachdem in den konventionellen SEM-CL-Untersuchungen die Rekombinationsmechanismen in den GaN-Nanosäulen identifiziert wurden, soll in diesem Abschnitt näher auf die Nanometer-aufgelöste Korrelation der Kristallstruktur mit den Lumineszenzprozessen eingegangen werden. Zur Analyse der Lumineszenzverteilung innerhalb einzelner GaN-Nanosäulen und des Einflusses von freien Oberflächen sowie von Defekten auf die Rekombinationsmechanismen wurden Kathodolumineszenz-Messungen im Rastertransmissionselektronenmikroskop am Querschnitt der Strukturen vorgenommen.

4.3.1 Direkte Korrelation der optischen und strukturellen Eigenschaften im Querschnitt

Um die Nanosäulen im Querschnitt zu charakterisieren, wurde aus dem Nanosäulen-Ensemble eine repräsentative Reihe von geordneten Nanosäulen ausgewählt und mittels des in Kapitel 3.3.4 vorgestellten, optimierten FIB-Prozesses präpariert. Die linke Abbildung 4.8(a) zeigt das SEM-Bild des ausgewählten Probenbereichs. Die Morphologie der kompletten Schichtstruktur, nach dem sukzessiven Abdünnen der TEM-Lamelle, ist in der STEM-ADF-Aufnahme in Bild 4.8(b) dargestellt. Die einzelnen Schichten der Heterostruktur sowie die kristalline Orientierung der TEM-Probe sind markiert.

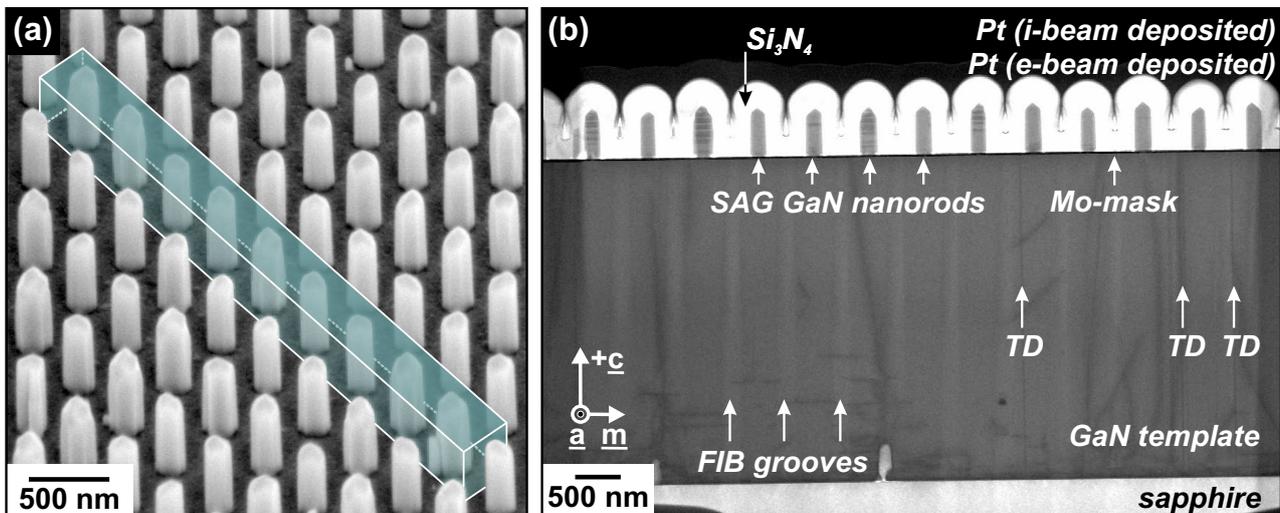


Abbildung 4.8: (a) SEM-Aufnahme des ausgewählten Probenbereichs zur Präparation einzelner Nanosäulen mittels FIB-Prozess; (b) korrespondierendes ADF-STEM-Bild im Querschnitt der kompletten Heterostruktur [121].

Im unteren Bereich, im hellen ADF-Kontrast, befindet sich das Saphir-Substrat. Oberhalb des Substrats, im dunkleren Kontrast, ist die 3,5 μm dicke GaN-Pufferschicht zu sehen. Der GaN-Puffer zeigt über den kompletten Bereich der TEM-Lamelle homogene Eigenschaften und nur sehr geringe Dickenfluktuationen durch die Präparation.

Als Folge der senkrecht unterschiedlichen a-Gitterkonstanten von Saphir und GaN [47] tritt in der Pufferschicht eine hohe Dichte an Durchstoßversetzungen (engl. *threading dislocations* — TD) auf [174].

Diese sind im ADF-Bild als dunklere Kontraste im GaN Puffer deutlich erkennbar. Die Versetzungen verlaufen senkrecht zum Substrat entlang der c -Richtung zur Oberfläche der Struktur, wo sie an der Mo-Schicht terminieren oder vereinzelt in die Nanosäulen propagieren. Die mittlere Versetzungsdichte der optimierten GaN-Pufferschicht beträgt $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$. Im Allgemeinen treten während des Wachstums von GaN auf Saphir drei Typen von Versetzungen auf, die durch ihren charakteristischen Burgers-Vektor beschrieben werden können [175, 176]:

- (I) reine Stufenversetzungen mit $\mathbf{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$
- (II) reine Schraubenversetzungen mit $\mathbf{b} = \langle 0001 \rangle$
- (III) gemischte Versetzungen mit $\mathbf{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}3 \rangle$.

Die Linienenergie dieser Versetzungen hängt zum einen vom Burgers-Vektor und zum anderen von der Länge der Versetzung ab [177, 178]. Üblicherweise wird die Versetzung entlang der Richtung propagieren in welcher die freie Energie minimiert werden kann.

Reduktion der Versetzungsdichte in Nanosäulen

Ortsselektiv aus den Löchern in der Mo-Maske sind die GaN-Nanosäulen homogen entlang der c -Richtung gewachsen. Laufen die Versetzungen aus dem GaN-Puffer in die GaN-Nanosäulen, ist ein Abknicken der Versetzungen in lateraler Richtung entlang der $[1\bar{1}00]$ -Richtung zu den non-polaren Seitenfacetten beobachtbar. Ein schematisches Modell zum Abknicken der Versetzungen in Nanosäulen sowie auch eine TEM-Dunkelfeld-Aufnahme am Übergang vom GaN-Puffer zur Nanosäule ist in Abbildung 4.9 einander gegenübergestellt. In der Dunkelfeld-Aufnahme (Zonenachsenorientierung $[11\bar{2}0]$) unter der Beugungsbedingung $\mathbf{g} = (1\bar{1}00)$ in Darstellung 4.9(b) wird deutlich sichtbar, dass die Versetzungen aus dem Puffer in die Nanosäule propagieren, wo sie nach einigen zehn Nanometern um 90° abknicken und zu den non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Oberflächen der Struktur verlaufen, um dort terminiert zu werden.

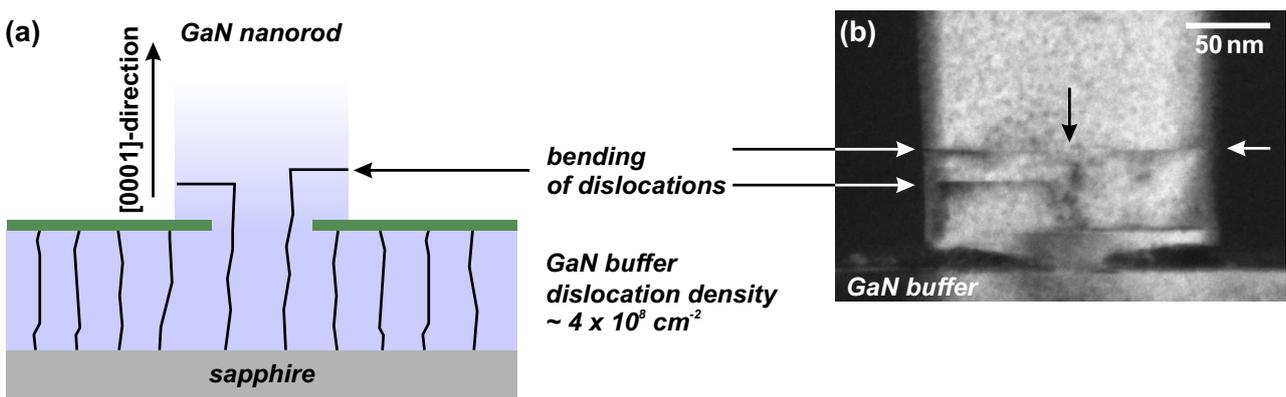


Abbildung 4.9: (a) Schematisches Modell zur Reduzierung der Versetzungsdichte in GaN-Nanosäulen; (b) TEM-Dunkelfeldabbildung unter der Beugungsbedingung $\mathbf{g} = (1\bar{1}00)$ zur Analyse der Versetzungen am Übergang vom GaN-Puffer zur Nanosäule (Zonenachse $[11\bar{2}0]$).

Dieser Effekt wurde bereits von Hersee *et al.* experimentell in Nanosäulen nachgewiesen und ist auch in selektiv gewachsenen Pyramiden, wie auch in lateral überwachsenen GaN-Strukturen zu beobach-

ten [28, 179–181]. Der Grund für das Abknicken der Versetzungen in Richtung der Seitenfacetten liegt in der Minimierung der freien Energie der Versetzung. Wie bereits diskutiert, hängt die Linienenergie der Versetzung signifikant mit der Länge der Versetzung zusammen. So wird durch das Abknicken der Versetzung und der Terminierung an der non-polaren Oberfläche die Länge der Versetzung gegenüber einer Versetzung, die entlang der Wachstumsrichtung zur Spitze der Nanosäule propagiert deutlich verkürzt. Dieses Verhalten wird sowohl für Stufen- wie auch für Schraubenversetzungen und gemischte Versetzungen beobachtet [181]. Insbesondere das geometrische Aspekt-Verhältnis der Nanosäulen ist ein wichtiger Faktor für diesen Prozess. Nach dem Abknicken der Versetzungen im Fuß der Nanosäulen, ist im oberen Bereich der dreidimensionalen Struktur keine Bildung von neuen Versetzungen erkennbar. Die Filterung der Versetzungen durch das selektive Wachstum sowie durch das Abknicken der Versetzungen im unteren Bereich der Nanosäulen wird vor allem für die Reduktion der Versetzungsdichte in der aktiven Zone von radial gewachsenen Kern-Mantel Heterostrukturen ausgenutzt, welche anschließend in Kapitel 5 detailliert erläutert werden. Nichtsdestotrotz können diese Defekte im unteren Bereich der Nanosäulen negative Einflüsse auf Mantelschichten haben, die co-axial auf die $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten gewachsen werden [182].

Lumineszenzeigenschaften der FIB-Lamelle

Zur direkten Korrelation der optischen Eigenschaften mit der kristallinen Realstruktur der Nanosäulen ist in Darstellung 4.10 eine HAADF-Aufnahme (a) des oberen Probenbereichs einem panchromatischen Intensitätsbild (b) gegenübergestellt. Die STEM-CL-Untersuchungen wurden bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und einem Strahlstrom von 270 pA bei Tieftemperatur ($T = 15$ K) angefertigt.

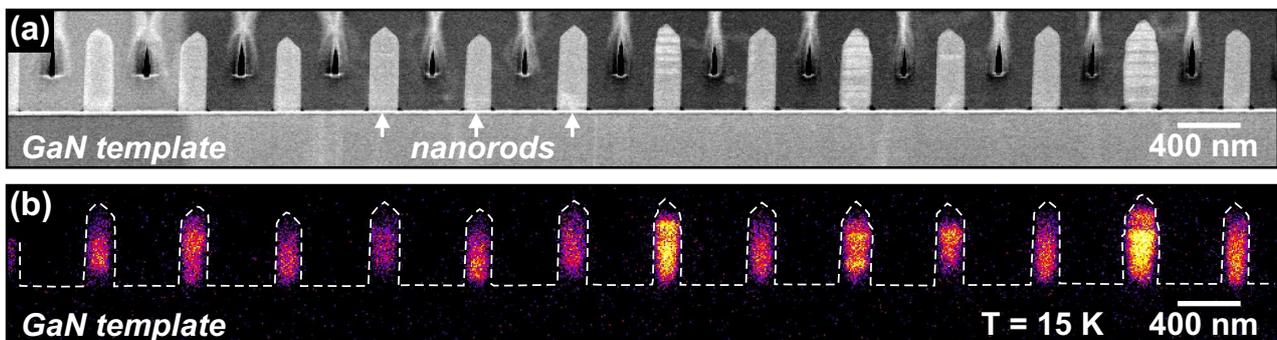


Abbildung 4.10: Direkte Korrelation des STEM-Bildes im HAADF-Kontrast (a) mit der simultan detektierten panchromatischen CL-Intensitätsverteilung (b) der GaN-Nanosäulen auf dem GaN-Puffer ($T = 15$ K).

Im unteren Bereich des HAADF-Bildes sind sowohl der GaN-Puffer wie auch die Mo-Maske (im helleren Kontrast) zu sehen. Auf der Pufferstruktur sind die GaN-Nanosäulen homogen angeordnet. Sie weisen einen mittleren Durchmesser von ca. 160 nm auf, was mit den SEM-Aufnahmen der Probenfläche in Abb. 4.2 korreliert. In mehreren Nanosäulen tritt im HAADF-Bild senkrecht zur $[0001]$ -Richtung ein streifenförmiger Kontrast auf. Grund für diesen Kontrast sind keine Änderungen der chemischen Zusammensetzung, sondern die Bildung von Stapelfehlern in den Säulen. In Folge

des in Kap. 3.3.2 beschriebenen Gitterführungseffekts kommt es durch den Einbau von Stapelfehlern und der damit verbundenen lokalen Störung der Gitterperiodizität zu einer Vergrößerung des Winkelbereichs, in dem die Elektronenstreuung im GaN auftritt [142]. Daraus resultiert eine höhere HAADF-Intensität der Stapelfehler im STEM-Bild. Ein Vergleich der Nanosäulen zeigt, dass sowohl defektfreie Säulen als auch Säulen mit einzelnen Stapelfehlern und Säulen mit hoher Stapelfehlerdichte auftreten.

In dem simultan aufgenommenen panchromatischen CL-Intensitätsbild bei $T = 15$ K in Abb. 4.10(b) erfolgt die dominante Emission ausschließlich aus den GaN-Nanosäulen heraus. Wie auch in den eingehend diskutierten CL-Untersuchungen der Probenoberfläche in Kap. 4.2 tritt in der CL-Analyse der Heterostruktur im Querschnitt eine deutliche Verminderung der Lumineszenzintensität im Bereich des GaN-Puffers auf. Versetzungen wirken hier als nicht-strahlende Rekombinationszentren für die generierten Elektron-Loch-Paare, woraus folglich eine deutliche Gesamtreduktion der Quantenausbeute folgt [183–185]. Zudem können Punktdefekte wie Fremdatome und Vakanzen im GaN-Puffer zusätzlich als nicht-strahlende Rekombinationszentren dienen. Da jedoch über die kommerziell hergestellte GaN/Saphir-Pufferstruktur keine detaillierten Wachstumsbedingungen bekannt sind, kann über den Einfluss von Punktdefekten nur spekuliert werden. Oberhalb der GaN-Pufferschicht, in den Nanosäulen, ist die Versetzungsdichte dramatisch reduziert, sodass strahlende Rekombinationsprozesse wahrscheinlicher werden.

Betrachtet man die CL-Intensitätsverteilung innerhalb der Nanosäulen, ist eine Abnahme der Intensität zu den non-polaren Seitenfacetten sowie zu den semi-polaren Spitzen zu beobachten. So können zum einen nicht-strahlende Oberflächendefekte, induziert durch die Unterbrechung der Gitterperiodizität, zu einer Abnahme der Intensität führen. Zum anderen kann das Fermi-Level-Pinning zu einer Bandverkipfung an den non-polaren Oberflächen führen, weshalb dort eine Verarmungszone entsteht und ein Lumineszenzabfall beobachtet werden kann [186]. Ein weiterer Grund für die Abnahme der Intensität zur Spitze hin, liegt in der dreidimensionalen Struktur der Säulen. Die Schichtdicke der TEM-Lamelle wird zu den Spitzen kleiner, wodurch auch das Interaktionsvolumen des Elektronenstrahls abnimmt. Das geringere Anregungsvolumen hat eine Reduktion der CL-Intensität direkt zur Folge. Grund für die Abnahme der Quantenausbeute im Fußbereich der Säulen sind die dort abknickenden Versetzungen wie auch die Diffusion der Ladungsträger bzw. Exzitonen in den unterliegenden GaN-Puffer, wo diese wiederum nicht-strahlend rekombinieren können.

Gleichzeitig lässt sich ein deutlicher Einfluss der Stapelfehler auf die Intensitätsverteilung erkennen. In den defektfreien Nanosäulen wird die höchste Intensität homogen im mittleren Bereich der Nanosäulen detektiert. Anders dazu wird in Nanosäulen mit Stapelfehlern eine deutliche Intensitätszunahme im Bereich der Defekte beobachtet. Dies ist als direkter Einfang der Ladungsträger und Exzitonen in den kubischen BSF-Quantenfilmen zu interpretieren. Die freien Ladungsträger können bereits schon in der hexagonalen Matrix, innerhalb ihrer Diffusionslänge, zu den Stapelfehlern diffundieren und dort strahlend rekombinieren.

Das korrespondierende ortsintegrale Spektrum der Querschnittspräparation ist in Abb. 4.11 dargestellt. Als Vergleich ist zusätzlich das CL-Spektrum des Nanosäulen-Ensemble in grau hinterlegt. Wie auch im Ensemble-Spektrum ist die exzitonische (D^0, X)-Lumineszenz der dominante Rekom-

binationskanal innerhalb der Nanosäulen. Jedoch ist die Energieposition der (D^0, X) -Emission im STEM-CL-Spektrum um $\Delta E = 18 \text{ meV}$ zu höheren Energien verschoben, was auf eine Verspannung der Lamelle hindeutet. Grundsätzlich vergrößert sich die fundamentale Bandlücke des GaN-Kristalls mit zunehmender kompressiver biaxialer Spannung [187, 188]. Unter Anwendung des von Kisielowski *et al.* ermittelten Koeffizienten $dE_G / d\sigma_{xx} = 27 \text{ meV}$ entspricht die Verschiebung der (D^0, X) -Linie gegenüber relaxierten GaN in erster Näherung einer kompressiv biaxialen Verspannung von 0,66 GPa [187]. Eine Erklärung für die kompressive Verspannung der im Querschnitt präparierten Nanosäulen könnte die für die Herstellung der TEM-Lamelle nötige Abscheidung von Si_3N_4 - und Platin-Schichten sein (siehe Kapitel 3.3.4). Wie im STEM-Bild in Abb. 4.8(b) ersichtlich, ummantelt die Si_3N_4 Schicht die Nanosäulen komplett und wird obenauf von der Platin Schicht bedeckt. Es ist anzunehmen, dass diese zusätzlichen Schichten eine Druckverspannung auf die Nanostrukturen ausüben.

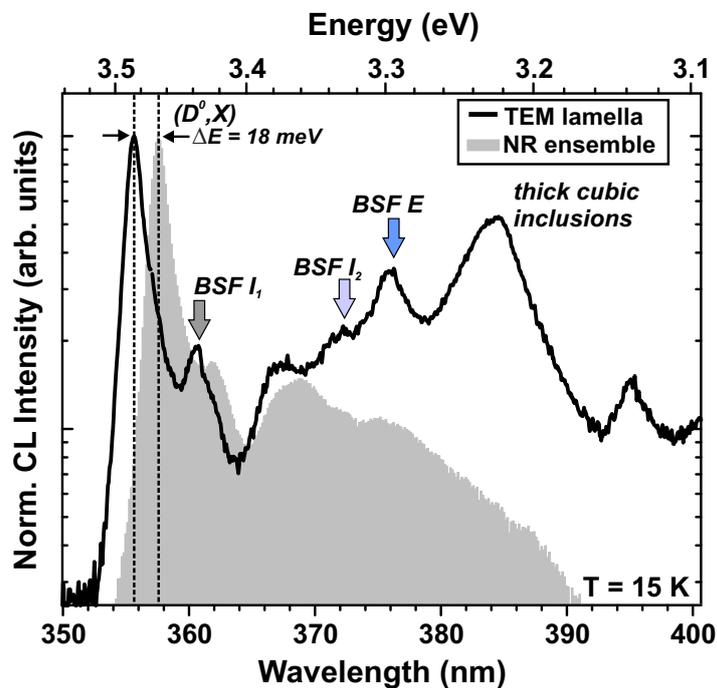


Abbildung 4.11: Ortsintegrales, spektral hochaufgelöstes Kathodolumineszenz-Spektrum der im Querschnitt präparierten Säulen aus Abbildung 4.10 bei Tieftemperatur ($T = 15 \text{ K}$); das Ensemble-Spektrum der Nanosäulen (SEM-CL) von der Probenoberfläche ist zum Vergleich in grau unterlegt.

Anders als im Ensemble-Spektrum treten auf der niederenergetischen Seite der (D^0, X) -Lumineszenz voneinander separierte Emissionslinien unterschiedlicher Basalflächenstapelfehler auf. Auch für die Stapelfehler ist eine Verschiebung der Emissionspeaks zu kürzeren Wellenlängen in Folge der kompressiven Verspannung zu beobachten. Wie in Kapitel 2.2 erläutert, führt eine kompressive Verspannung zudem zu einer Verkleinerung der Bindungslängen und damit verbunden zu einer Erhöhung der piezoelektrischen Polarisierung. Daraus resultiert eine Verschiebung der Emission des kubischen Quantenfilms zu höheren Energien, welche mit steigender kompressiver Verspannung zunimmt [189]. So zeigt das STEM-CL-Spektrum einen Peak der BSF I_1 -Lumineszenz bei 360,8 nm mit einer Halbwertsbreite von 10 meV. Im Vergleich zur Ensemble-Messung tritt eine energetische Verschiebung von $\Delta E = 22 \text{ meV}$ zu kürzeren Wellenlängen auf.

Außerdem sind im STEM-CL-Spektrum die Emissionslinien des BSF I₂ bei 372,2 nm und des extrinsischen BSF bei 376,1 nm ausgeprägt sichtbar. Die Halbwertsbreiten dieser beiden Stapelfehler sind verglichen mit der des BSF I₁ deutlich größer. Zusätzlich zu den Emissionen der drei Stapelfehler-Typen treten wie in den lokalen Spektren in Abb. 4.6 Lumineszenzpeaks bei längeren Wellenlängen auf. Die spektralen Positionen der Peaks im STEM-CL-Spektrum lassen sich zu 384,6 nm und 395,1 nm bestimmen. Diese Emissionslinien können dickeren kubischen Einschlüssen ($d_{\text{kubisch}} > 3$ Monolagen) zugeordnet werden, wie sie auch in selbst-organisierten Nanosäulen beobachtet werden [163, 164]. Eine Zunahme der Schichtdicke des kubischen Segments bedingt eine Reduktion der Übergangsenergie, die durch den Einfluss von spontanen und piezoelektrischen Feldern entlang der [0001]-Richtung verstärkt wird. Als Folge dessen kann die Übergangsenergie der kubischen Einschlüsse, wie von Jacopin *et al.* nachgewiesen, ab einer Schichtdicke von 4 Monolagen unter die Bandkantenenergie von GaN Zinkblende-Volumenmaterial (3,26 eV, 380 nm) fallen [164, 190].

4.3.2 Exzitonische Rekombination in defektfreien Nanosäulen - Einfluss von freien Oberflächen

Im Übersichtsspektrum der TEM-Lamelle zeigt bereits Vorteil der erhöhten Ortsauflösung gegenüber konventionellen CL-Messungen und erlaubt eine eindeutige Zuordnung scharfer Lumineszenzpeaks. Im weiteren werden nun einzelne Nanosäulen der Querschnittspräparation charakterisiert und diskutiert. In Abbildung 4.12 sind die Transmissionselektronenmikroskopie-Aufnahmen einer defektfreien Nanosäule im Hellfeld-Kontrast (a) sowie im Zwei-Strahl Dunkelfeld-Kontrast unter den Beugungsbedingungen $\mathbf{g} = (1\bar{1}00)$ (b) und $\mathbf{g} = (0002)$ (c) dargestellt¹. Als Zonenachse für die TEM-Analyse wurde die $[11\bar{2}0]$ -Richtung gewählt, unter welcher Basalfächenstapelfehler sichtbar werden.

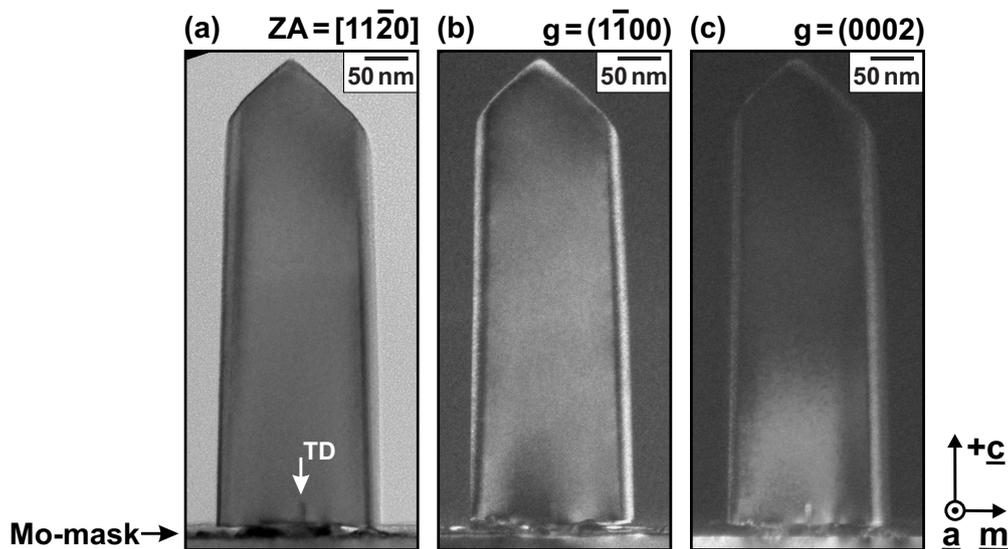


Abbildung 4.12: Transmissionselektronenmikroskopie-Aufnahmen einer defektfreien Nanosäule (Zonenachse $[11\bar{2}0]$): (a) TEM-Hellfeld-Abbildung; (b) TEM-Dunkelfeld-Bild unter $\mathbf{g} = (1\bar{1}00)$; (c) TEM-Dunkelfeld-Aufnahme unter $\mathbf{g} = (0002)$ [121].

¹Die hier gezeigten TEM-Aufnahmen zur strukturellen Analyse der Nanosäulen wurden von Herrn Dr. Arne Urban an der Georg-August-Universität Göttingen in der AG von Prof. Rizzi angefertigt.

Die TEM-Hellfeld-Aufnahme in 4.12(a) zeigt, dass die Nanosäule kohärent aus dem Masken-Loch in c-Richtung wächst. Die laterale Wachstumsrate ist deutlich niedriger, sodass die Nanosäule nur über einen kleinen Bereich der Mo-Schicht gewachsen ist. An der Grenzfläche zwischen dem GaN-Puffer und der Nanosäule tritt zudem eine Versetzung auf, welche nach wenigen zehn Nanometern terminiert wird (mit weißem Pfeil im Bild markiert). Da die Versetzung nicht im defektfreien Kristall terminiert werden kann, ist ein Abknicken der Versetzung in die $[11\bar{2}0]$ -Richtung anzunehmen. Die TEM-Aufnahme zeigt zudem, dass die Nanosäulen von glatten non-polaren Oberflächen abgeschlossen werden. Jedoch ist entlang der $[0001]$ -Richtung hin zum oberen Bereich eine leichte Abnahme des Nanosäulendurchmessers zu beobachten.

Die Ausnutzung des Unsichtbarkeitskriteriums unter unterschiedlichen Zwei-Strahl-Beugungsbedingungen im Dunkelfeld erlaubt eine strukturelle Identifizierung einzelner Defekt-Arten. Unter der Zwei-Strahl Dunkelfeld-Bedingung $\mathbf{g} = (1\bar{1}00)$ werden Basalflächenstapelfehler vom Typ I_1 und I_2 sichtbar [157, 191]. Hingegen sind extrinsische Basalflächenstapelfehler und der BSF I_3 unter dieser Konfiguration auf Grund des Verschiebungsvektors, welcher entlang der $[0001]$ -Richtung verläuft, nicht zu beobachten [192]. Die Dunkelfeld-Aufnahme zeigt einen homogenen Kontrastverlauf innerhalb der Nanosäule. Stapelfehler in der GaN-Säule sollten senkrecht zur $[0001]$ -Richtung zu einer Modifikation des Kontrastes führen und dadurch sichtbar werden. So kann ausgeschlossen werden, dass Typ I_1 und I_2 Basalflächenstapelfehler in der Säulen vorhanden sind. Auf Grund des homogenen Kontrastverlaufs in der Hellfeld-Aufnahme lässt sich vermuten, dass auch keine anderen Stapelfehler-Typen vorhanden sind. Jedoch lässt sich dies nicht vollkommen ausschließen.

Neben Stapelfehlern können unter dieser Konfiguration auch Schraubenversetzungen und gemischte Versetzungen erkannt werden [135]. Diese Defekte lassen sich ebenfalls in der Aufnahme nicht beobachten. Wird nun die Zwei-Strahl-Bedingungen $\mathbf{g} = (0002)$ in Abb. 4.12(c) näher betrachtet, unter der vor allem reine Stufenversetzungen wie auch gemischte Versetzungen sichtbar werden [135], und mit den anderen Abbildungsmodi verglichen, zeigt sich, dass im unteren Bereich einzelne Versetzungen auftreten, der obere Bereich der Nanosäule jedoch defektfrei ist.

Korrelation der optischen und strukturellen Eigenschaften

Ein direkter Vergleich der optischen und strukturellen Eigenschaften bei Tieftemperatur einer einzelnen defektfreien Nanosäule wird in Abb. 4.13 vorgenommen. Das STEM-HAADF-Bild in 4.13(a) zeigt erneut einen homogenen Kontrastverlauf entlang der GaN-Nanosäule. Kontraste durch Gitterführungseffekte von ausgedehnten Defekten lassen sich im HAADF-Bild wie auch im simultan aufgenommenen ADF-Bild (hier nicht abgebildet) nicht beobachten. Sorgfältig durchgeführte strukturelle Untersuchungen bei Raumtemperatur bewiesen zudem die Annahme, dass keine Basalflächenstapelfehler auftreten.

Das gleichzeitig aufgenommene panchromatische CL-Intensitätsbild in 4.13(b) bestätigt die hohe kristalline Qualität der Nanostruktur. Im Bild lässt sich innerhalb der Säule eine homogene Intensitätsverteilung beobachten. Im Fußbereich der Nanosäule findet eine monotone Intensitätsabnahme über zwei Größenordnungen statt. Wie eingehend in der Übersichtsaufnahme aufgezeigt, treten im GaN-Puffer überwiegend nicht-strahlende Rekombinationsprozesse auf. Werden nun durch den Elektronenstrahl Ladungsträger im unteren Bereich der Säule generiert, können diese innerhalb der Diffusionslänge

in den unterliegenden Puffer diffundieren und dort wiederum nicht-strahlend rekombinieren. Zusätzlich können lokale Defekte an der Grenzfläche zwischen dem mit MOVPE gewachsenen Puffer und den mittels MBE hergestellten Säulen als nicht-strahlende Rekombinationszentren dienen. Die Folge beider Effekte ist eine reduzierte Quantenausbeute im Fußbereich. Um die Intensitätsabnahme zur Spitze hin erklären zu können, muss die dreidimensionale Struktur der Säule berücksichtigt werden. Im Bereich der semi-polaren Spitzen findet eine Abnahme der Schichtdicke der TEM-Lamelle statt. Die direkte Folge des kleineren Anregungsvolumens ist eine Abnahme der CL-Intensität.

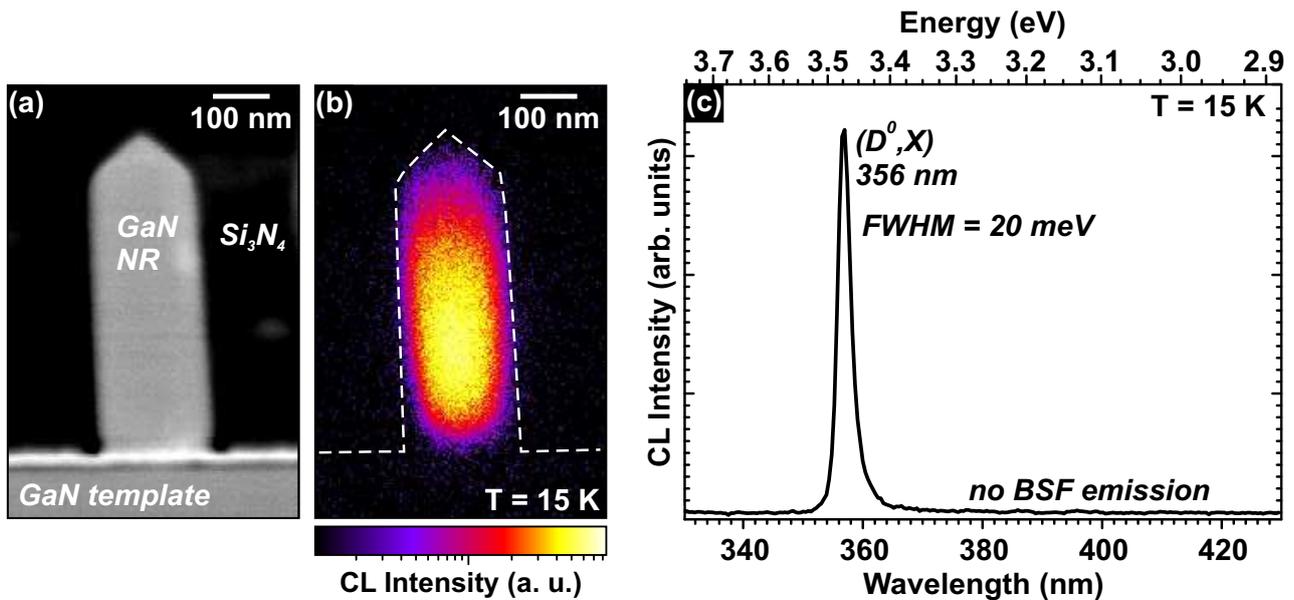


Abbildung 4.13: Direkte Korrelation der strukturellen Eigenschaften mit der Lumineszenz bei Tieftemperatur ($T = 15$ K): (a) HAADF-Bild einer einzelnen Nanosäule; (b) panchromatische Intensitätsverteilung innerhalb der Nanostruktur; (c) ortsintegrales CL-Spektrum [121].

Das ortsintegrale Spektrum in Abb. 4.13(c) zeigt ausschließlich die exzitonische (D^0, X)-Emission bei 356 nm mit einer Halbwertsbreite von $FWHM = 20$ meV. Der Vergleich der Halbwertsbreite einer einzelnen Nanosäule mit der Ensemble-Messung in Abb. 4.3 belegt, dass keine Ensemble-Verbreiterung der (D^0, X)-Emission auftritt, wie es die Analyse der Standardabweichung der Ensemble-Messung schon angedeutet hat. Der Wachstumsprozess der GaN-Nanosäulen ist demnach sehr homogen. In Übereinstimmung mit der strukturellen Analyse treten auch im Spektrum keine Lumineszenzpeaks von Basalflächenstapeldefekten auf.

Die spektrale Entwicklung des Lumineszenz entlang der vertikalen Wachstumsrichtung ist im CL-Linescan in Darstellung 4.14(a) im Falschfarbenkontrast bei Tieftemperatur ($T = 15$ K) abgebildet. Der CL-Linescan verläuft aus dem oberen Bereich des GaN-Puffers entlang der Nanosäule bis in die Si_3N_4 -Schicht. An der Grenzfläche zwischen planarer MOVPE-Schicht und GaN-Nanosäule ist das Einsetzen der exzitonischen Lumineszenz bei 356 nm zu beobachten. Die Intensitätsentwicklung der (D^0, X)-Emission ist in Abb. 4.14(b) dargestellt. Die Quantenausbeute im Puffer ist durch die hohe Dichte nicht-strahlender Defekte stark verringert. Mit zunehmender Distanz zum Puffer nimmt die Intensität des Donator gebundenen Exzitons monoton zu. Gegenüber der Pufferschicht steigt

die (D^0, X) -Intensität im Fußbereich der dreidimensionalen Struktur um zwei Größenordnungen und bleibt ab einem Abstand von 50 nm zur GaN-Schicht auf einem konstanten Niveau. Im Bereich der Spitze ist wiederum eine Abnahme der (D^0, X) -Intensität zu beobachten. Entlang der kompletten Nanosäule wird ausschließlich (D^0, X) -Emission detektiert. Der Linescan verdeutlicht, dass die Qualität der MOVPE-Pufferstruktur und die Grenzfläche zur MBE Nanosäule einen erheblichen Einfluss auf die Rekombinationsprozesse innerhalb der Nanosäule haben.

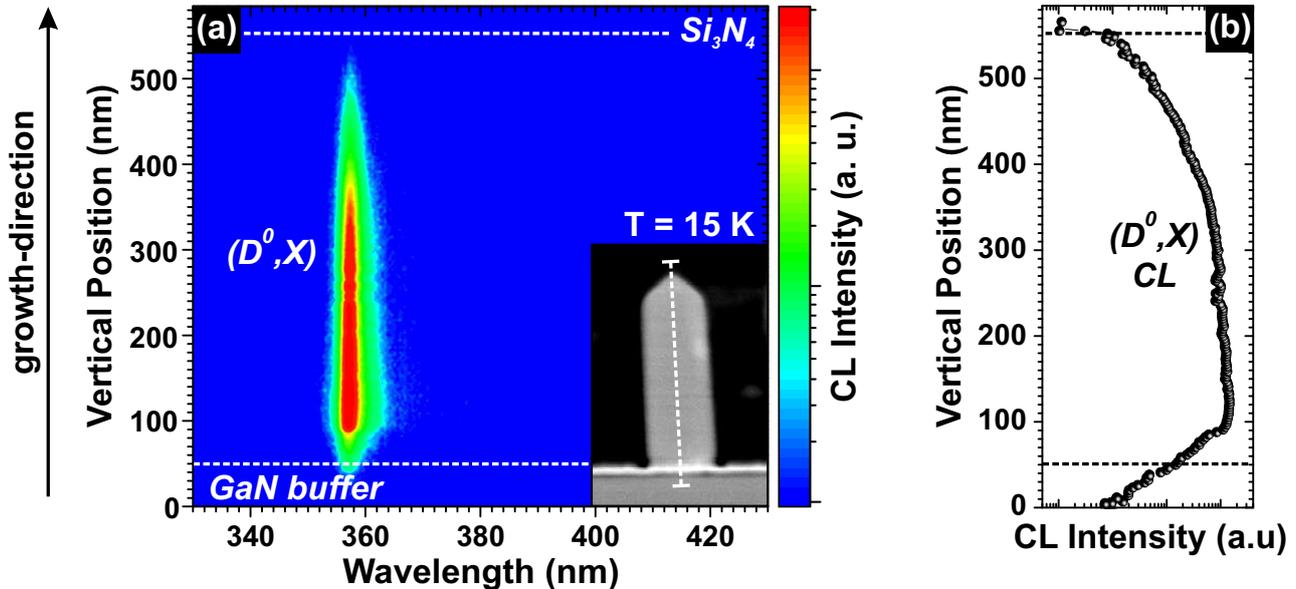


Abbildung 4.14: Verlauf der Lumineszenz entlang der vertikalen Wachstumsrichtung der Nanosäule ($T = 15\text{ K}$): (a) Kathodolumineszenz-Linescan in logarithmischer Darstellung; (b) Intensitäts-Linescan der exzitonischen Lumineszenz [121].

Auswirkung der freien Oberflächen - Fermi-level Pinning

Im Vergleich zu planaren Strukturen ist das Verhältnis von Oberfläche zu Volumen in Nanosäulen drastisch gesteigert, sodass Oberflächeneffekte eine signifikante Auswirkung auf die optischen und elektrischen Eigenschaften haben [193–197]. Zur Untersuchung des Einflusses von Oberflächeneffekten ist in Darstellung 4.15(a) das Profil der Lumineszenzintensität senkrecht zur Wachstumsrichtung abgebildet. Das panchromatische Intensitätsprofil wurde im mittleren Bereich der Säule angefertigt, um negative Auswirkungen des Puffers und der Nanosäulenspitze zu reduzieren. Im inneren Bereich der GaN-Nanosäule wird eine homogene Intensitätsverteilung detektiert. Im äußeren Bereich der Säule nimmt die Intensität hingegen exponentiell über zwei Größenordnungen zu den non-polaren Oberflächen ab. Die Maximalintensität im Inneren der Säule sinkt entlang eines Bereichs von ca. 30 nm monoton in $[1\bar{1}00]$ -Richtung.

Die Oberfläche der Nanosäule stellt eine Unterbrechung der periodischen Kristallstruktur dar. Demzufolge ist die sp^3 -Bindung an den Oberflächen der GaN-Nanosäule schwächer als im Volumen, was direkt zur Entstehung neuer erlaubter Energiezustände zwischen Valenzband und Leitungsband führt. Diese neuen Energiezustände können als effiziente nicht-strahlende Rekombinationszentren dienen. Die Wellenfunktionen dieser neuen Zustände sind an der non-polaren Oberfläche lokalisiert, sodass ihre Amplitude zum Inneren der Säule abnimmt. In Abhängigkeit von der energetischen Lage der

Oberflächenzustände zu den Bandkanten werden diese in der Säule ionisiert, wodurch eine Oberflächenladungskonzentration entsteht [198]. Diese wird durch die Ladungsverteilung im Halbleiter wiederum kompensiert. Die unterschiedlichen Ladungsverteilungen führen zur Bildung von elektrischen Feldern, die eine Krümmung der Bänder bewirken [198]. Gleichzeitig wird das Fermi-Niveau durch die Oberflächenzustände energetisch festgehalten (*Fermi-level Pinning*). In Abbildung 4.15(b) ist der Verlauf des Leitungs- und Valenzbandes radial entlang der GaN-Nanosäule schematisch dargestellt. Die Verbiegung von Leitungs- und Valenzband hat die Ausbildung einer Raumladungszone an den non-polaren Oberflächen zur Folge.

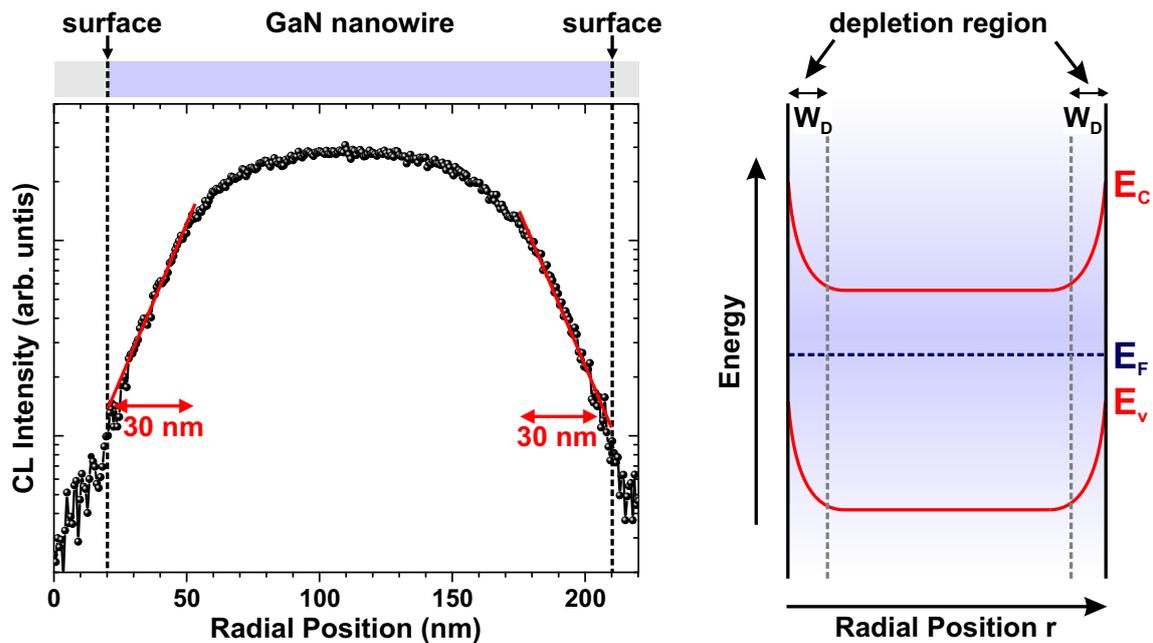


Abbildung 4.15: (a) Panchromatisches Intensitätsprofil senkrecht zu den Oberflächen der Säule; (b) schematische Darstellung des Leitungs- und Valenzbands-Verlaufs senkrecht zur c-Richtung.

Die Größe der Raumladungszone W_D an den Oberflächen ist abhängig von der Höhe der freien Ladungsträgerkonzentration N_D im GaN, dem Nanosäulendurchmesser R sowie dem Oberflächenpotential ϕ_b [193, 196]. Nach Simpkins *et al.* lässt sich der Bandverlauf analytisch mit Hilfe der Poisson-Gleichung in zylindrischen Koordinaten bestimmen [196]:

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \phi}{\partial r} = -\frac{qN_D}{\epsilon\epsilon_0} \quad (4.1)$$

Die allgemeine Lösung dieser Gleichung lautet [196]:

$$\phi(r) = -\frac{qN_D}{4\epsilon\epsilon_0} \cdot r^2 + C_1 \cdot \ln(r) + C_2 \quad (4.2)$$

Dabei stellt ϕ das Potential gemessen in Relation zum Leitungsband im Volumenmaterial dar und r den generalisierten radialen Abstand innerhalb der Säule. In der gewählten Betrachtung liegt der Nullpunkt auf der Oberfläche, am Rand der Säule. Die Integrationskonstanten C_1 und C_2 sind durch

die Randbedingungen des spezifischen Problems bestimmt:

$$\frac{\partial\phi(R - W_D)}{\partial r} = 0 \quad \text{und} \quad \phi(R) = \phi_b. \quad (4.3)$$

Hierbei repräsentiert W_D die Ausdehnung der Raumladungszone in der Säule. Aus den Randbedingungen folgt für die Integrationskonstanten:

$$C_1 = \frac{qN_D}{2\epsilon\epsilon_0} \cdot (R - W_D)^2 \quad \text{und} \quad C_2 = \phi_b + \frac{qN_D}{4\epsilon\epsilon_0} \cdot (R - W_D)^2 [1 - 2\ln(R - W_D)]. \quad (4.4)$$

Werden nun die Integrationskonstanten in Gleichung (4.2) eingesetzt, ergibt sich für den Potentialverlauf innerhalb der Nanosäule (unter der Bedingung: $q = e \cdot w$):

$$\phi(r) = \phi_b - \frac{eN_D(R - W_D)^2}{2\epsilon\epsilon_0} \left[\ln\left(\frac{r}{R - W_D}\right) - \frac{r^2}{2(R - W_D)^2} + \frac{1}{2} \right] \quad \text{für } W_D < r < R. \quad (4.5)$$

Die Größe der Raumladungszone W_D wurde numerisch über das Newton'sche Verfahren für eine GaN-Nanosäule mit einem Durchmesser von 160 nm in Abhängigkeit von der Höhe des Oberflächenpotentials ϕ_b nach Gleichung (4.5) bestimmt und in Abb. 4.16 dargestellt. Für nominell undotierte GaN-Nanosäulen, welche im MBE Verfahren hergestellt wurden, werden typischerweise Hintergrunddotierkonzentrationen im mittleren 10^{17}cm^{-3} Bereich berichtet [199]. Im hier untersuchten Fall wurde die Ausdehnung der Verarmungszone für zwei freie Ladungsträgerkonzentrationen von $N_D = 2 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$ und $N_D = 6 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$ bestimmt. Typische Werte für die Oberflächenpotentiale betragen in der Literatur zwischen $0,3 \text{ eV} < \phi_b < 0,6 \text{ eV}$ [193, 200, 201].

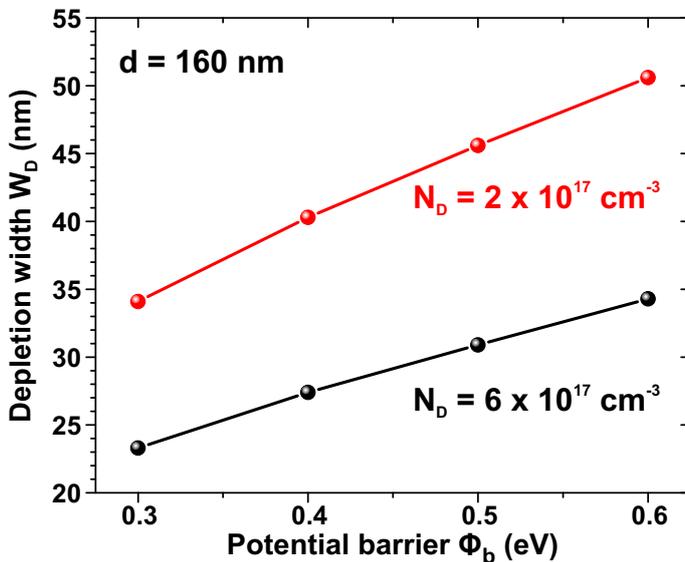


Abbildung 4.16: Ausdehnung der Raumladungszone W_D an den non-polaren Oberflächen der Nanosäule in Abhängigkeit von der Höhe der Oberflächenpotentiale ϕ_b .

Für eine freie Ladungsträgerkonzentration von $N_D = 6 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$ und einem Potential von $\phi_b = 0,6 \text{ eV}$ lässt sich die Verarmungszone zu $W_D = 34,3 \text{ nm}$ berechnen. Kleinere Potentiale an der Oberfläche der Säule führen zu einer reduzierten Ausdehnung der Verarmungsschicht. Betrachtet man den Fall einer niedrigeren freien Ladungsträgerkonzentration von $N_D = 2 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$ bei gleichbleibendem Potential von $\phi_b = 0,6 \text{ eV}$ wird die Verarmungsschicht deutlich auf $W_D = 50,6 \text{ nm}$ vergrößert.

Konsequenterweise hat die Verkipfung von Leitungs- und Valenzband im Bereich der Verarmungszone einen direkten Einfluss auf die optischen Eigenschaften der Nanosäule. Die positive Krümmung des Leitungsbandes hat zur Folge, dass die Elektronen nicht zur Oberfläche diffundieren können, anders als die Löcher, die als Minoritätsladungsträger zur Oberfläche der Säule gelangen. Demzufolge ist die mittlere Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektron- und Lochwellenfunktion örtlich separiert. Das Überlappintegral der Elektron- und Lochwellenfunktion wird reduziert, was eine Abnahme der Oszillatorstärke zur Folge hat und sich in einer Reduzierung der Übergangswahrscheinlichkeit und somit interner Quantenausbeute zur Oberfläche äußert.

4.3.3 Untersuchung der Lumineszenzeigenschaften von einzelnen Basalflächenstapelfehlern

Nach der Charakterisierung der defektfreien Nanosäulen werden nun die optischen und strukturellen Eigenschaften von einzelnen Basalflächenstapelfehlern und der Ladungsträgertransport zu den Defekten näher betrachtet. In Abb. 4.17 ist beispielhaft eine Säule mit niedriger Stapelfehlerdichte dargestellt.

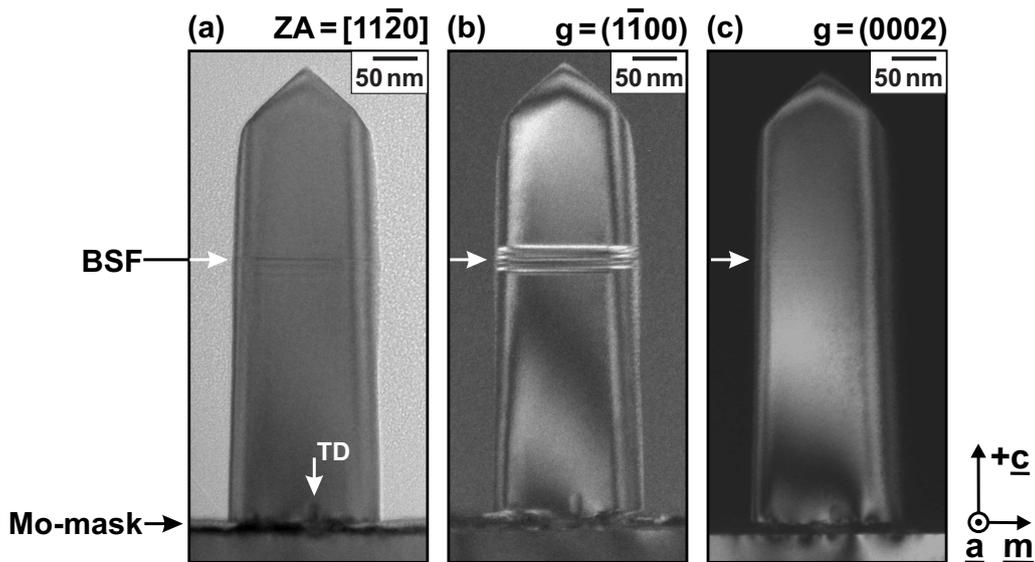


Abbildung 4.17: TEM-Analyse einer Nanosäule mit niedriger Defektdichte entlang der $[11\bar{2}0]$ -Richtung: (a) TEM-Hellfeld-Aufnahme; (b) TEM-Dunkelfeld-Abbildung unter $g = (1\bar{1}00)$; (c) TEM-Dunkelfeld Bild unter $g = (0002)$ [121].

Wiederum wurden zur strukturellen Charakterisierung TEM-Hellfeld und Dunkelfeld-Aufnahmen entlang der $[11\bar{2}0]$ -Richtung angefertigt. Anders als in Abb. 4.12 von einer defektfreien Struktur tritt in der hier abgebildeten Nanosäule im Hellfeld-Bild (Abb. 4.17(a)) ein horizontaler Kontrast senkrecht zur $[0001]$ -Richtung auf (im Bild durch einen Pfeil hervorgehoben). Dieser Kontrast wird vor allem im Dunkelfeld-Bild unter der Beugungsbedingung $g = (1\bar{1}00)$ deutlich sichtbar. Im Gegensatz dazu verschwindet der horizontale Kontrast des Stapelfehlers unter der Bedingung $g = (0002)$ im Dunkelfeld. Unter Verwendung des Unsichtbarkeitskriteriums der Zwei-Strahl-Beugungsbedingung für BSFs lässt sich in diesem Fall schließen, dass es sich um Stapelfehler vom Typ I_1 und/oder Typ I_2

handelt [157, 191]. Extrinsische Stapelfehler können unter der gewählten Beugungsbedingung ausgeschlossen werden [192]. Anders als in GaN-Volumenkristallen werden die Stapelfehler in den Säulen nicht von Teilversetzungen begrenzt, sondern an den non-polaren Oberflächen terminiert. Wie auch für die Stapelfehler-freien Säulen lassen sich im unteren Bereich der Nanosäule einzelne Versetzungen beobachten, die nach wenigen Nanometern zu den non-polaren Oberflächen abknicken und dort terminiert zu werden.

Hochortsaufgelöste Lumineszenzanalyse des Basalfächenstapelfehler-Typs I_1

Neben der strukturellen Identifizierung von Stapelfehlern ist es auch möglich, diese durch ihre charakteristische Lumineszenz nachzuweisen. Vor allem die niedrige Defektdichte in den Säulen ermöglicht eine gezielte Untersuchung der optischen Eigenschaften einzelner Stapelfehler. Zur direkten Korrelation der strukturellen Eigenschaften mit den spektralen Lumineszenzcharakteristika der Defekte ist in Abb. 4.18 das HAADF-Bild (a) und das simultan aufgenommene panchromatische CL-Intensitätsbild (b) einer Nanosäule mit niedriger Stapelfehlerdichte gegenübergestellt. Im HAADF-Kontrast treten die Basalfächenstapelfehler auf Grund des Gitterführungseffekts der eingestrahelten Primärelektronen und der damit verbundenen Vergrößerung des Streu-Winkelbereichs in einem helleren Kontrast auf [136]. Die STEM-Aufnahme offenbart deutlich drei örtlich separierte, senkrecht zur c -Richtung verlaufende HAADF-Kontraste von Stapelfehlern. Die beiden unteren Stapelfehler werden von $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten terminiert, wohingegen der oberste Stapelfehler von den semi-polaren $\{1\bar{1}02\}$ -Facetten begrenzt wird.

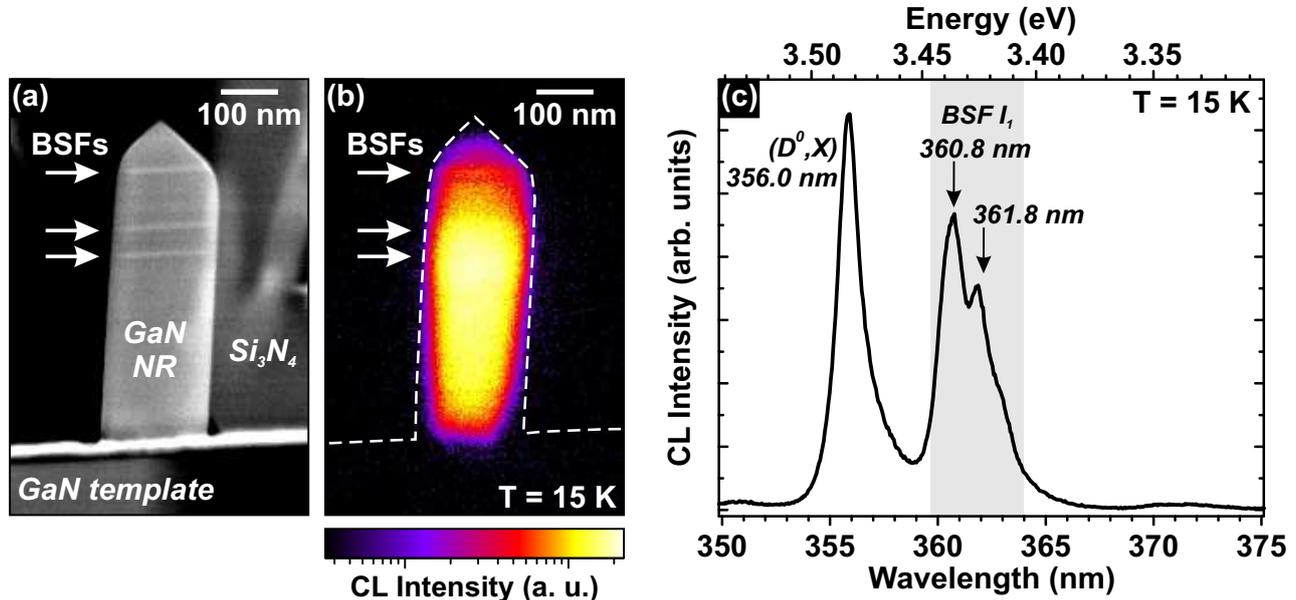


Abbildung 4.18: Identifizierung von Stapelfehlern in GaN-Nanosäulen: (a) STEM-Bild einer einzelnen Nanosäule mit drei Basalfächenstapelfehlern im HAADF-Kontrast; (b) panchromatische Intensitätsverteilung innerhalb der Nanostruktur; (c) ortsintegriertes CL-Spektrum bei Tieftemperatur ($T = 15$ K) [121].

Anders als in analytischen TEM-Untersuchungen lässt sich allein durch die STEM-Aufnahme keine Aussage über den Typ des Stapelfehlers machen. Eine eindeutige Zuordnung des Stapelfehlers kann

in der STEM-CL jedoch über die Emissionswellenlänge der kubischen Quantenfilme bei Tieftemperatur geschehen. Bereits die panchromatische CL-Intensitätsaufnahme in Bild 4.18(b) zeigt deutliche Unterschiede zu dem zuvor diskutierten defektfreien Fall. Die höchste CL-Intensität wird in der Nähe der Stapelfehler (durch Pfeile in den Abbildungen markiert) detektiert. Insbesondere im Bereich der unteren Stapelfehler wird eine höhere Quantenausbeute im Vergleich zum ungestörten GaN beobachtet. Wie auch in den defektfreien Säulen nimmt die CL-Intensität zu den semi- und non-polaren Facetten auf Grund der reduzierten Schichtdicke und der Oberflächeneffekte monoton ab.

Das ortsintegrale Spektrum der Nanosäule, abgebildet in Darstellung 4.13(c), weist zusätzlich zur erwarteten (D^0,X)-Emission bei 356,0 nm zwei Lumineszenzpeaks von Basalflächenstapelfehlern bei 360,8 nm und 361,8 nm auf. Diese Rekombinationskanäle können spektral eindeutig dem Basalflächenstapelfehler I_1 zugeordnet werden [157, 162, 166]. Wie bereits im Fall der defektfreien Nanosäule beobachtet, tritt in Folge der kompressiven Verspannung der TEM-Lamelle durch die Präparation eine Blauverschiebung zu kürzeren Emissionswellenlängen auf. Dieses Verhalten wird sowohl für die (D^0,X)-Emission wie auch für die BSF I_1 -Lumineszenz beobachtet. Die Linienbreite der Basalflächenstapelfehler-Emission von $\text{FWHM} = 10$ meV ist vergleichbar mit typischen in der Literatur berichteten Halbwertsbreiten von isolierten Basalflächenstapelfehlern [170, 202, 203]. Im Spektrum findet sich zudem keine charakteristische Emissionslinie des BSF I_2 oder BSF E, was darauf hinweist, dass alle drei Stapelfehler innerhalb der Nanosäule vom Typ I_1 sind.

Spektrale Entwicklung entlang der Nanosäule

Einen tieferen Einblick über die örtliche Verteilung der Rekombinationsprozesse gibt der in Abb. 4.19(a) dargestellte, spektral- und ortsaufgelöste Linescan entlang der vertikalen Wachstumsrichtung der Nanosäule. Im Linescan sind die Positionen der Basalflächenstapelfehler (dem HAADF-Kontrast entnommen) markiert. Im unteren defektfreien Bereich der Nanosäule dominiert die (D^0,X)-Emission bei 356,0 nm. Ab einer vertikalen Position von $x = 100$ nm erscheint im CL-Linescan die Emission des BSF I_1 bei 360,7 nm. Das Einsetzen der BSF-Lumineszenz führt gleichzeitig zu einer Reduktion der (D^0,X)-Intensität. In diesem Bereich können die generierten Überschussladungsträger bereits zum Basalflächenstapelfehler diffundieren und dort strahlend rekombinieren. Die (D^0,X)- und BSF-Lumineszenz bilden hier zwei konkurrierende Rekombinationskanäle. Weiter in Richtung des untersten Stapelfehlers wird die BSF-Lumineszenz zum dominierenden Rekombinationsprozess, weshalb nur noch eine sehr geringe (D^0,X)-Intensität detektiert werden kann und ab $x = 200$ nm komplett verschwindet. Wird der Elektronenstrahl nun sukzessive in Richtung der Spitze geführt, tritt eine leichte Rotverschiebung der BSF-Lumineszenz von 0,3 nm zu 361,0 nm im Bereich des zweiten Stapelfehlers auf. Wiederum weiter in Richtung des obersten, dritten Defekts tritt eine zusätzliche Verschiebung um 0,8 nm zu längeren Wellenlängen aus bis zu 361,8 nm auf.

Zur näheren Analyse wurden lokale CL-Spektren an den jeweiligen Positionen der drei Stapelfehler dem Linescan extrahiert und vergleichend in Abb. 4.19(b) gegenübergestellt. Die lokalen Spektren bestätigen die Rotverschiebung der Emissionswellenlänge vom untersten zum obersten Stapelfehler. Da Basalflächenstapelfehler typischerweise einen idealen Quantenfilm darstellen, haben insbesondere Dicken- und Kompositionsfluktuationen keinen Einfluss auf die Emissionsenergie. Eine quantenmechanische Kopplung der elektronischen Zustände der kubischen Quantenfilme kann auf Grund der

Abstände zwischen dem ersten und zweitem Defekt von 45 nm bzw. zwischen zweitem und drittem Defekt von 90 nm auch ausgeschlossen werden.

Bastek *et al.* berichtet zudem von einem Einfluss der lateralen Ausdehnungslänge der Stapelfehler auf die Emissionswellenlänge [162]. In dem hier betrachteten Fall zeigt der oberste Defekt jedoch nur einen leichten Unterschied in der lateralen Ausdehnung gegenüber den beiden unteren Stapelfehlern, sodass auch dieser Effekt vernachlässigbar scheint.

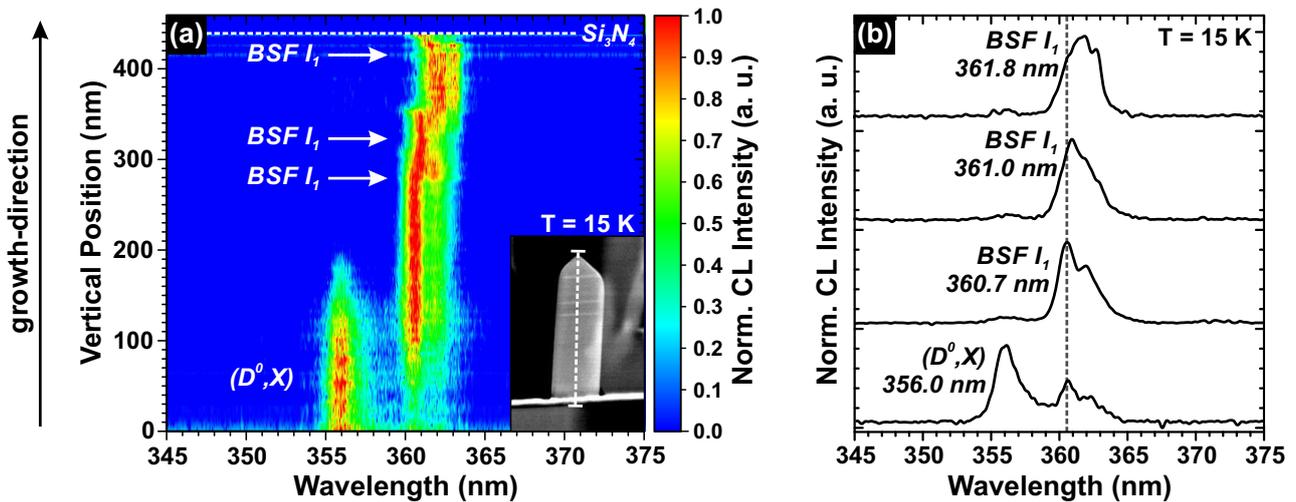


Abbildung 4.19: (a) STEM-CL-Linescan angefertigt bei Tieftemperatur ($T = 15$ K) entlang der Nanosäule vom GaN-Puffer bis zur Spitze; (b) lokale Spektren aus dem unteren, defektfreien Bereich und an den jeweiligen Positionen der drei Stapelfehler [121].

Eine mögliche Erklärung für die unterschiedlichen Emissionswellenlängen könnten lokal unterschiedliche Spannungszustände liefern, die in Folge der piezoelektrischen Polarisierung zu einer Verschiebung der Emissionswellenlänge führen [189]. Demzufolge würde die Spannung zum obersten Stapelfehler hin abnehmen, wie durch die Rotverschiebung beobachtet werden kann.

Ladungsträgertransport zum Basalflächenstapelfehler

Die Analyse der Lumineszenz-Intensität der Stapelfehler in Darstellung 4.19 gibt zusätzlich Aufschluss über die Diffusionslänge der generierten Überschussladungsträger entlang der Wachstumsrichtung zum Defekt. Eine schematische Abbildung dieser Methodik zur Diffusionslängenbestimmung ist in Bild 4.20(a) illustriert.

Die durch den Primärelektronenstrahl generierten freien Ladungsträger bzw. Exzitonen können entlang der Nanosäule zum Basalflächenstapelfehler diffundieren und dort effizient strahlend rekombinieren. Je näher die Generation der Ladungsträger am Defekt erfolgt, desto größer ist der Anteil der Ladungsträger, die den BSF erreichen. Der Primärelektronenstrahl wird hierfür entlang der Nanosäule geführt. Aus dem daraus resultierenden Intensitätsprofil in Abhängigkeit vom Ort der Generation lässt sich die Diffusionslänge der Überschussladungsträger bestimmen. Das simultan zur Kathodolumineszenz aufgenommene HAADF-Signal in 4.20(b) dient zur eindeutigen Bestimmung der örtlichen Position der Stapelfehler. Hier bewirkt der BSF eine höhere HAADF-Intensität als die umliegende GaN-Matrix.

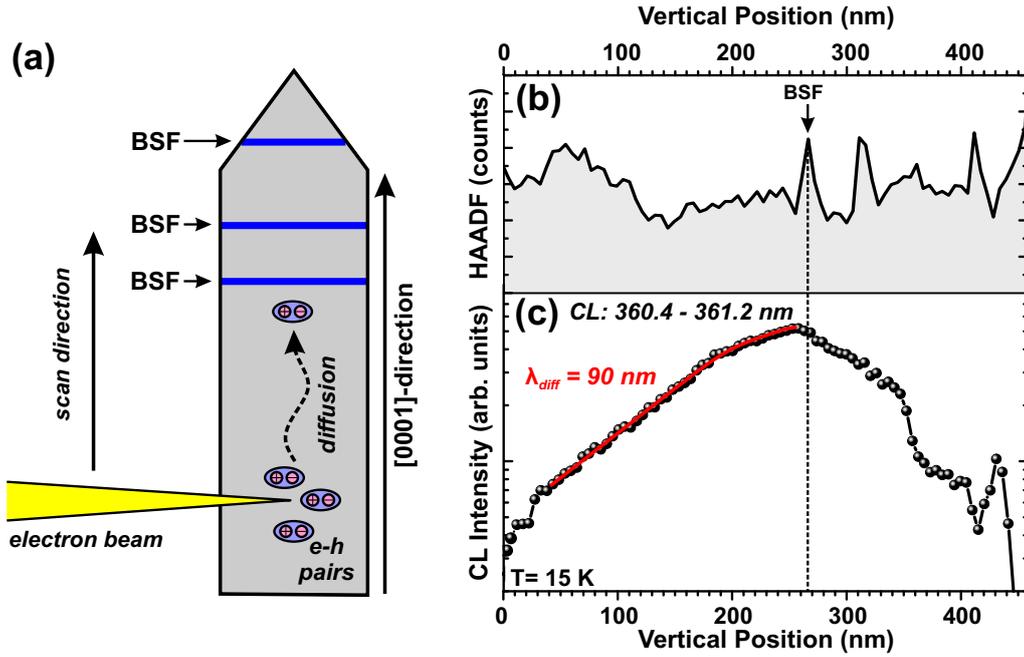


Abbildung 4.20: (a) Der Elektronenstrahl wird zur Bestimmung der Diffusionslänge entlang der [0001]-Richtung der Nanosäule geführt. Das aufgenommene HAADF-Signal (b) zeigt eindeutig die Position der Stapelfehler aufgrund einer höheren HAADF-Intensität. (c) Aus dem simultan detektierten BSF CL-Intensitätsprofil im Wellenlängenbereich zwischen 360,4 nm - 361,2 nm wird mittels der eindimensionalen Diffusionsgleichung die Diffusionslänge (in rot) bei $T = 15 \text{ K}$ bestimmt.

Das Intensitätsprofil der BSF-Emission im Spektralbereich von 360,4 nm - 361,2 nm in Abb. 4.20(c) zeigt ein monoexponentielles Ansteigen der Lumineszenzintensität hin zum untersten Defekt. Zu den beiden oberen Basalflächenstapelfehlern hingegen fällt die CL-Intensität auf Grund der spektralen Verschiebung sowie auch durch die Abnahme der Schichtdicke der TEM-Lamelle wieder ab. Wie in Kapitel 3.3.3 detailliert beschrieben, kann die Diffusionslänge der Ladungsträger bzw. Exzitonen durch die Analyse der Intensitätsverteilung $I_{BSF}(x)$ bestimmt werden. Um die Strahlaufweitung entlang der Schichtdicke der TEM-Lamelle zu berücksichtigen wird die eindimensionale Diffusionsgleichung unter der Annahme eines gaussförmigen Anregungsprofils angepasst [204]:

$$I_{BSF}(x) = I_0 \cdot \sigma \cdot \sqrt{\frac{\pi}{2}} e^{-\frac{\sigma^2}{2\lambda_{Diff}^2}} \left\{ e^{\frac{x}{\lambda_{Diff}}} \left[1 - \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2}}\left(\frac{x}{\sigma} + \frac{\sigma}{\lambda_{Diff}}\right)\right) \right] + e^{-\frac{x}{\lambda_{Diff}}} \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2}}\left(\frac{x}{\sigma} - \frac{\sigma}{\lambda_{Diff}}\right)\right) \right] \right\}. \quad (4.6)$$

Die Intensität $I_{BSF}(x)$ ist nach diesem Modell abhängig von der Position x entlang der Säule, der ungestörten Intensität I_0 (weit entfernt vom Defekt), der Diffusionslänge λ_{Diff} sowie dem Anregungsvolumen σ . In erster Näherung ergibt die Anpassung des Intensitätsprofils mit der eindimensionalen Diffusionsgleichung eine Diffusionslänge von $\lambda_{Diff} = (95 \pm 10) \text{ nm}$ bei $T = 15 \text{ K}$. Eine ähnliche Diffusionslänge von $\lambda_{Diff} = 68 \text{ nm}$ wird auch von Nogues *et al.* in undotierten GaN-Nanodrähten beobachtet [203]. Zum Vergleich: für planare, undotierte GaN-Schichten werden in der Literatur Diffusionslängen von λ_{Diff} von 80 nm bis 200 nm berichtet [205–207].

Die Diffusionslänge der freien Ladungsträger hängt generell stark von der Dotierkonzentration des Materials wie auch von der Temperatur ab [206]. In Folge der Streuung der Ladungsträger an Störstellen und Phononen kann die Diffusionslänge deutlich abnehmen. Einen weiteren Einfluss auf die Diffusionslänge können nicht-strahlende Rekombinationsprozesse an Oberflächen ausüben [203]. Somit stellt die hier ermittelte Einfangweite von $\lambda_{Diff} = (95 \pm 10)$ nm eine untere Grenze für Diffusionsprozesse der Überschussladungsträger innerhalb der Nanosäule dar.

Die Untersuchung des Intensitätsprofils der Stapelfehler-Emission liefert einen weiteren wichtigen Wert: das Anregungsvolumen σ des Primärelektronenstrahls im Material. Der hier erhaltene Wert $\sigma = (10 \pm 2)$ nm liegt in der Größenordnung der zu erwartenden Elektronenstrahlverbreiterung durch Streueffekte innerhalb einer 150 nm dicken GaN-Schicht welche eingehend in Kapitel 3.3.3 beschrieben wurden. Hier zeigt sich der eindeutige Vorteil der Ortsauflösung innerhalb der STEM-CL gegenüber konventionellen μ -Photolumineszenz- oder SEM-CL-Messungen.

Nachweis des Basalflächenstapelfehlers vom Typ I_2 in GaN-Nanosäulen

Der Basalflächenstapelfehler vom Typ I_2 besitzt eine deutlich größere Bildungsenergie als der BSF I_1 . In erster Näherung gilt für die Relation der Bildungsenergien: $E_{BSF I_2} \approx 2E_{BSF I_1}$ [165]. Infolgedessen wird der BSF I_2 in den GaN-Nanosäulen weit weniger häufig beobachtet und zeigt auch im integralen Lumineszenzspektrum des Ensembles Abb. 4.3(b) eine niedrigere CL-Intensität und Häufigkeitsverteilung als der BSF I_1 . Vereinzelt finden sich in den GaN-Nanostrukturen jedoch auch isolierte Stapelfehler vom Typ I_2 . Ein Beispiel eines solchen Defekts ist in Abb. 4.21 dargestellt.

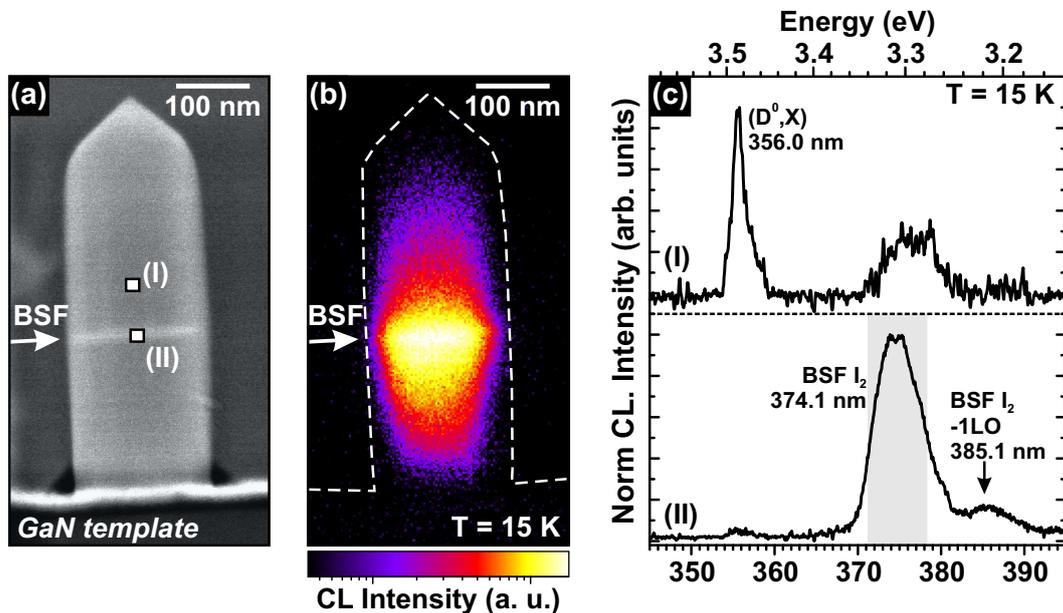


Abbildung 4.21: Tieftemperatur STEM-CL-Mapping einer GaN-Nanosäule mit niedriger Defektdichte: (a) HAADF-Aufnahme und (b) panchromatisches Intensitätsbild bei $T = 15$ K; (c) lokale Spektren angefertigt im ungestörten Bereich der Säule (I) und in der Nähe des Stapelfehlers (II).

Wiederum zeigt das STEM-Bild im HAADF-Kontrast (Abb. 4.21(a)) ein homogenes Wachstum der Nanosäule aus dem prozessierten Maskenloch auf dem GaN-Puffer. Im mittleren Bereich der dreidi-

mensionalen Struktur tritt senkrecht zur [0001]-Richtung ein horizontal verlaufender Defekt im hellen Kontrast auf, welcher durch die non-polaren Oberflächen begrenzt wird. Wird nun das gleichzeitig aufgenommene panchromatische Intensitätsbild in Abb. 4.21(b) mit der STEM-Aufnahme korreliert, zeigt sich die höchste CL-Intensität eindeutig in der Umgebung des Defekts. Die CL-Intensität nimmt zur Grenzfläche Nanosäule/Puffer wie auch zur Spitze der Nanosäule stark ab.

Zur spektralen Identifizierung des Stapelfehlers wurden lokale Spektren im Bereich des Defekts und im ungestörten GaN-Material angefertigt (Abb. 4.21(c)). Im ungestörten Bereich (Entfernung zum Defekt $\Delta x \approx 100$ nm) dominiert die (D^0, X) -Lumineszenz bei 356,0 nm im Spektrum. Auf der niedereenergetischen Seite der (D^0, X) -Lumineszenz tritt mit nur geringer Intensität eine defektverbundene Emission auf. Die durch den Primärelektronenstrahl erzeugten Überschussladungsträger können hier bereits schon im Rahmen der zuvor bestimmten Diffusionslänge von $\lambda_{Diff} = (95 \pm 10)$ nm zum darunterliegenden Stapelfehler diffundieren und dort strahlend rekombinieren. Im Vergleich dazu ist die Intensität der Donator gebundenen Exziton-Lumineszenz direkt am Defekt (Spektrum II) deutlich abgefallen und liegt knapp oberhalb des Rauschniveaus. Die Intensität der defektverbundenen Emission nimmt im Gegensatz stark zu. Das Maximum der Emissionslinie tritt bei 374,1 nm auf und korrespondiert mit der von Tischer *et al.* berichteten spektralen Position des BSF I₂ im GaN [158]. Wie anfänglich erläutert, stellt der BSF I₂ zwei kubische Doppelschichten innerhalb der hexagonalen GaN-Matrix dar. Dies führt direkt dazu, dass der BSF I₂ eine niedrigere Übergangsenergie als der BSF I₁ besitzt und deshalb eine zu längeren Wellenlängen verschobene Emissionslinie aufweist.

Die Halbwertsbreite der BSF I₂-Emission beträgt FWHM = 62 meV und ist deutlich größer als die Halbwertsbreite der beobachteten BSF I₁-Lumineszenz. Auf Grund des diffusen Kontrastes im HAADF-Bild kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass mehrere eng beieinander liegende Stapelfehler auftreten und zu einer Verbreiterung der Emission beitragen. Neben der BSF I₂-Lumineszenz offenbart das lokale Spektrum II zudem eine intensitätsschwache Emissionslinie bei 385,1 nm. Aus der Analyse der energetischen Differenz der beiden Emissionslinien von $\Delta E = 94$ meV kann geschlossen werden, dass es sich bei der niedereenergetischen Emission um die erste Phonon-Replik der BSF I₂-Emission handelt. Im GaN-Materialsystem werden typischerweise energetische Abstände von ca. 92 meV für Phonon-Repliken berichtet [101, 208]. Das Auftreten von Phonon-Repliken weist auf eine starke Wechselwirkung der Ladungsträger mit longitudinalen optischen (LO) Phononen hin.

Zusammenfassend konnte aus den CL-Daten eine direkte spektrale Identifizierung der BSF I₂-Lumineszenz bei 374,1 nm getätigt werden und schließlich dem im STEM-Bild beobachteten Stapelfehler zugeordnet werden.

Bildung des extrinsischen Basalflächenstapelfehlers in GaN-Nanosäulen

Wie bereits im Übersichtsspektrum der TEM-Lamelle in Abb. 4.11 beobachtet werden konnte, tritt neben intrinsischen Basalflächenstapelfehlern auch eine Emission des extrinsischen Stapelfehlers auf. In Folge der hohen Bildungsenergie des extrinsischen Stapelfehlers wird dieser in non- und semi-polaren GaN-Strukturen äußerst selten beobachtet [165]. In dreidimensionalen GaN-Nanostrukturen wird dieser Defekt hingegen häufiger beobachtet, wie von Lähnemann *et al.* und Jacopin *et al.* berichtet [164, 209]. Zur Identifizierung des Stapelfehlers vom Typ E ist in Abb. 4.22 das HAADF-Bild (a) einer einzelnen Nanosäule mit der panchromatischen Intensitätsverteilung (b) und dem dazu-

gehörigen ortsintegralen Spektrum (c) gegenübergestellt. Das STEM-Bild in Abb. 4.22(a) zeigt im unteren Bereich die GaN-Pufferschicht. Darüber ist die Mo-Maske im helleren HAADF-Kontrast und die GaN-Nanosäule zu sehen. Im Fußbereich der Nanosäule tritt eine Versetzung auf, die nach ca. 100 nm um 90° abknickt und zur $\{1\bar{1}00\}$ -Oberfläche propagiert, wo sie anschließend terminiert wird.

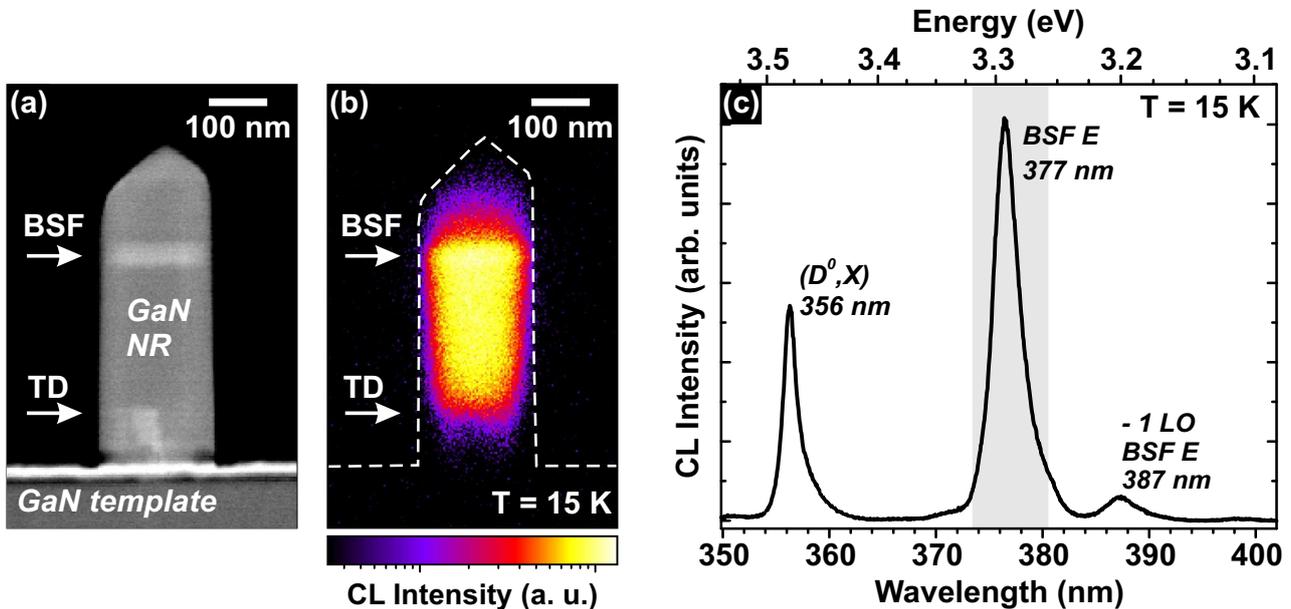


Abbildung 4.22: Die HAADF-Aufnahme (a) zeigt den Stapelfehler als helleren, horizontal verlaufenden Kontrast innerhalb der GaN-Nanosäule. Die direkte Korrelation mit dem panchromatischen CL-Intensitätsbild (b) bei Tieftemperatur ($T = 15$ K) zeigt deutlich eine effiziente Rekombination der generierten Überschussladungsträger im Bereich des Defekts. Der Stapelfehler emittiert im ortsintegralen Spektrum (c) der Nanosäule bei 377 nm.

Oberhalb der Versetzung ist die Nanosäule bis zu einer Höhe von $x = 350$ nm frei von Defekten. Bei $x = 350$ nm tritt ein hellerer HAADF-Kontrast durch Defekte auf, welche senkrecht zur $[0001]$ -Richtung verlaufen und von den non-polaren Facetten begrenzt wird. Die vorliegende Störung der Gitterperiodizität führt zu einer Vergrößerung des Streuwinkelbereichs der eingestrahnten Elektronen und dementsprechend zu einem helleren HAADF-Kontrast. Die Auswertung der vergrößerten STEM-Aufnahme im ADF-Kontrast aus diesem Bereich, dargestellt in Abb. 4.23, zeigt, dass es sich dabei um mehrere, nahe beieinanderliegende Stapelfehler handelt. Der örtliche Abstand der einzelnen Stapelfehler beträgt zwischen 7 nm - 13 nm. Nach Berechnungen von Corfidir *et al.* tritt eine effektive quantenmechanische Kopplung der elektronischen Zustände von Basalflächenstapelfehlern erst unterhalb eines Abstandes von 6 nm auf und würde zu einer Rotverschiebung der Emissionswellenlänge führen [172]. Folglich kann im vorliegenden Fall eine quantenmechanische Kopplung der Defekte vernachlässigt werden.

Zur Analyse der Lumineszenzeigenschaften der Defekte ist in Abb. 4.22(b) das korrespondierende panchromatische CL-Intensitätsbild gezeigt. Im Fußbereich der GaN-Nanosäule wird eine schwache CL-Intensität festgestellt. Dies kann zum einen auf die Diffusion der generierten Ladungsträger in den darunterliegenden, optisch inaktiven GaN-Puffer zurückgeführt werden. Zum anderen ist eine Reduzierung der Intensität auf Grund von nicht-strahlenden Rekombinationsprozessen der Ladungs-

träger an Versetzungen im unteren Bereich der Nanosäule möglich. Oberhalb der Versetzung nimmt die Lumineszenzintensität erkennbar um zwei Größenordnungen bis zum Stapelfehlerbündel zu, um oberhalb der Defekte wiederum zur Spitze abzuklingen.

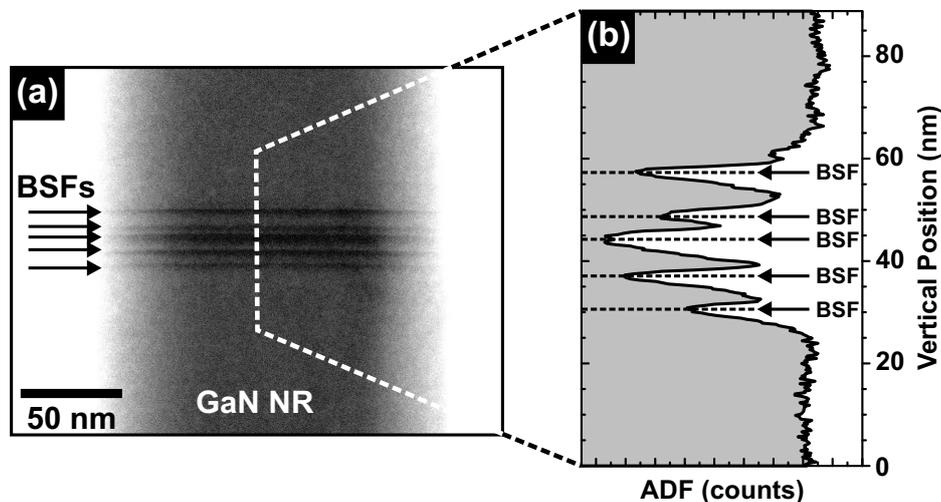


Abbildung 4.23: (a) Die vergrößerte STEM-Aufnahme im ADF-Kontrast aus dem Bereich der Defekte zeigt mehrere, örtlich eng beieinanderliegende Stapelfehler, welche senkrecht zur $[0001]$ -Richtung verlaufen. Aus der detaillierten Analyse des ADF-Profiles in (b) wurde der minimale Abstand der Stapelfehler zu > 7 nm bestimmt.

Das ortsintegrale Spektrum der Nanosäule in Darstellung 4.22(c) zeigt deutlich zwei vorherrschende Rekombinationsmechanismen innerhalb Struktur. Zum einen wird bei 356 nm die Emission des Donator gebundenen Exzitons detektiert. Neben der (D^0, X) -Lumineszenz tritt eine intensitätsstärkere Emissionslinie bei 377 nm auf. Diese Emissionslinie korrespondiert mit der von Lähnemann *et al.* berichteten spektralen Position des extrinsischen Basalflächenstapelfehlers [209]. Die Halbwertsbreite der Stapelfehlerlumineszenz bei 377 nm konnte zu $FWHM = 40$ meV bestimmt werden. Auf der niederenergetischen Seite der Stapelfehleremission wird mit einem energetischen Abstand von 90 meV die erste Phonon-Replik der Emission beobachtet. Der von Mei *et al.* nachgewiesene prismatische Stapelfehler (PSF) kann hier ausgeschlossen werden. Anders als der extrinsische verläuft der prismatische Stapelfehler entlang der $\{11\bar{2}0\}$ -Ebene, was hier nicht beobachtet werden kann [191].

Untersuchung der mikroskopischen Lumineszenzverteilung

Die örtliche Verteilung der exzitonenischen Lumineszenz und der Emission des extrinsischen BSFs ist in dem jeweiligen monochromatischen Intensitätsbild in Abb. 4.24(a) und (b) dargestellt. Das Intensitätsbild der (D^0, X) -Lumineszenz bei 356 nm zeigt eine intensive Emission aus dem unteren, defektfreien Bereich der Säule. Weiter in Richtung der Basalflächenstapelfehler findet ein deutlicher Einbruch der Intensität statt. Auf Grund der verringerten Probendicke im Bereich der Spitze kann oberhalb des Defekts zudem nur eine sehr schwache (D^0, X) -Intensität detektiert werden.

Demgegenüber zeigt die CL-Intensitätsverteilung der BSF E-Emission ein komplementäres Bild. Die Stapelfehler-Lumineszenz nimmt monoton in Richtung der Defekte zu. Innerhalb der Diffusionslänge und Lebensdauer können die generierten Überschussladungsträger zu den Stapelfehlern gelangen und

dort effizient strahlend rekombinieren. Die spektrale Entwicklung der Rekombinationskanäle entlang der [0001]-Richtung ist im Kathodolumineszenz-Linescan im Wellenlängenintervall von 330 nm bis 430 nm in Bild 4.24 dargestellt. Der Verlauf des Linescans ist in der eingefügten STEM-Aufnahme markiert. Oberhalb der zur Oberfläche abknickenden Versetzung bei der Position $x = 75$ nm setzt die exzitonische Emission bei 356 nm ein und nimmt bis zur Position $x = 170$ nm an Intensität zu. Ab $x = 170$ nm wird ein signifikanter Abfall der exzitonischen Lumineszenzintensität detektiert. Die Abnahme der (D^0,X) -Intensität geht einher mit der Zunahme der Intensität der BSF E-Emission, so dass die bereits in den monochromatischen Intensitätsbildern beobachtete Antikorrelation der beiden Lumineszenzprozesse bestätigt werden kann.

Innerhalb der Diffusionslänge gelangen die generierten Ladungsträger bzw. Exzitonen zu den BSFs und führen zu einem Anstieg der Intensität. Mit der Zunahme der Intensität bei 377 nm wird auch ein Einsetzen der ersten Phonon-Replik mit einem energetischen Abstand von 90 meV beobachtet. An der Position des Defekts bei $x = 380$ nm erfolgt eine direkte Anregung des Stapelfehlers, wodurch ausschließlich die BSF E-Emission sowie die erste Phonon-Replik detektiert wird. Gleichzeitig erreicht die exzitonische Emission ihr Intensitätsminimum und steigt oberhalb des Defekts leicht wieder an. Im Bereich der Nanosäule-Spitze nimmt die Schichtdicke der Nanosäule jedoch kontinuierlich ab, womit wiederum ein Intensitätsabfall verbunden ist.

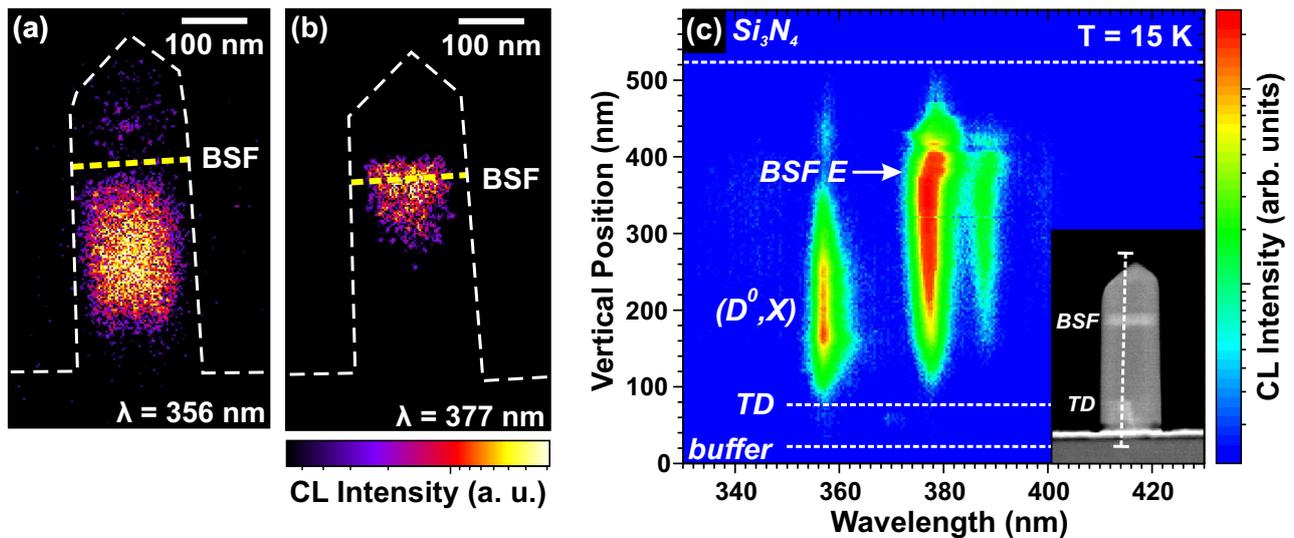


Abbildung 4.24: (a) Monochromatische Intensitätsbilder der (D^0,X) -Emission bei 356 nm und der (b) BSF E-Emission bei 377 nm; (c) vertikaler Kathodolumineszenz-Linescan entlang der GaN-Nanosäule ($T = 15$ K).

Aus dem Intensitätsverlauf der Stapelfehler-Emission wird durch Verwendung der eindimensionalen Diffusionsgleichung (Gleichung 4.6) eine Diffusionslänge von $\lambda_{Diff} = (110 \pm 10)$ nm bestimmt. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit der für den BSF I_1 bestimmten Diffusionslänge von $\lambda_{Diff} = (95 \pm 10)$ nm.

4.4 Rekombinationskinetik von GaN-Nanosäulen

Die Rekombinationskinetik der Lumineszenzprozesse wurde mit Hilfe zeitaufgelöster CL-Messungen des Nanosäulen-Ensembles (Probenfläche von $25 \times 35 \mu\text{m}$) analysiert [123, 124]. In den zeitaufgelösten Messungen erfolgt die Ladungsträgergeneration durch eine gepulste Anregung. Die Analyse der zeitlichen Entwicklung der Lumineszenzintensität geschieht durch das Verfahren des Einzel-Photonen-Zählens, welches nach der Methode der verzögerten Koinzidenz in invertierter Anordnung realisiert wird [210, 211].

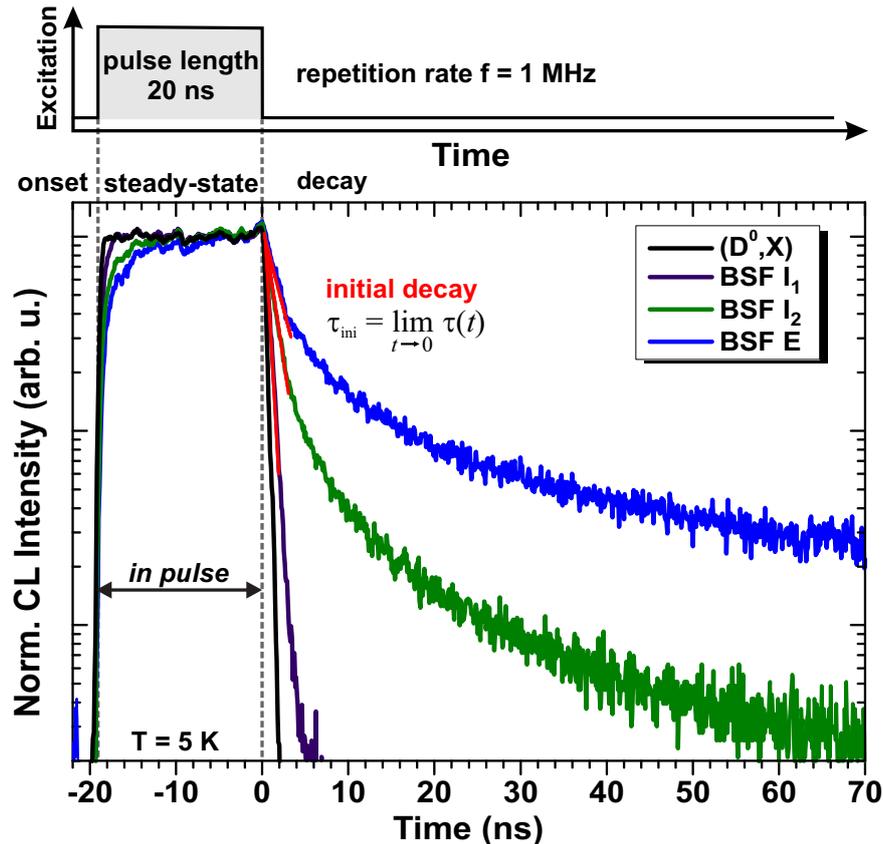


Abbildung 4.25: Ortsintegrale, normierte Transienten der (D^0, X) -Lumineszenz bei 357 nm (schwarz) und der Basalflächenstapelfehler-Emission an der spektralen Position des BSF I_1 bei 363 nm (magenta), des BSF I_2 bei 373 nm (grün) und des extrinsischen Stapelfehlers bei 378 nm (blau); die Transienten wurden bei $T = 5 \text{ K}$ vom Nanosäulen-Ensemble angefertigt.

Abbildung 4.25 zeigt die Transienten der exzitonen (D^0, X) -Lumineszenz (schwarz) bei 357 nm, der BSF I_1 -Emission (magenta) bei 363 nm, der BSF I_2 -Lumineszenz (grün) bei 373 nm und der Emission des extrinsischen Stapelfehlers (blau) bei 377 nm in halblogarithmischer Darstellung. Die Transienten zeigen die zeitliche Entwicklung der Lumineszenzintensität der einzelnen Rekombinationskanäle während der gepulsten Anregung bei einer Temperatur von $T = 5 \text{ K}$. Die Transienten sind jeweils auf deren Intensitätsmaximum im Quasi-Gleichgewicht normiert abgebildet. Die Pulslänge beträgt in den durchgeführten Messungen 20 ns, sodass sichergestellt wurde, dass die jeweiligen Lumineszenzprozesse das Quasi-Gleichgewicht der Anregung zum Ende des Anregungspulses erreicht haben. Um ein vollständiges Abklingen der Lumineszenz zu gewährleisten, wurde eine Wie-

derholrate des rechteckigen Anregungspulses von 1 MHz gewählt. Als Anregungsbedingungen für die zeitaufgelösten CL-Messungen wurde eine Beschleunigungsspannung von $U_{acc} = 3$ kV und ein Strahlstrom von $I_b = 600$ pA gewählt.

Durch das Anschalten des Elektronenstrahls für die Dauer des Rechteckpulses werden Elektron-Loch-Paare in den GaN-Nanosäulen generiert, was durch die anschließende strahlende Rekombination der Überschussladungsträger zu einem Ansteigen (onset) der CL-Intensität bei allen vier Lumineszenzprozessen führt. Die (D^0, X) -Lumineszenz ist während des Einschwingvorgangs innerhalb von 1 ns um drei Größenordnungen angestiegen und hat das Intensitätsniveau des Quasi-Gleichgewichts erreicht. Mit der Abschaltung des Elektronenstrahls beim Zeitpunkt $t = 0$ ns (decay) sinkt die Generationsrate der Ladungsträger schlagartig auf Null und die Überschussladungsträgerkonzentration strebt wieder in ihr thermodynamisches Gleichgewicht, wodurch die Lumineszenzintensität abnimmt. Die Transiente der (D^0, X) -Lumineszenz weist in der halblogarithmischen Darstellung ein exponentielles Abklingverhalten auf, welches gemäß einer monoexponentiellen Zerfallsfunktion:

$$I(t) = I_0 \cdot e^{\frac{-t}{\tau_{eff}}} \quad (4.7)$$

angenähert wurde. Hierbei setzt sich die effektive Lebensdauer τ_{eff} nach der Mathiessen-Regel aus einem strahlendem τ_S und einem nicht-strahlendem Anteil τ_{NS} zusammen:

$$\frac{1}{\tau_{eff}} = \frac{1}{\tau_S} + \frac{1}{\tau_{NS}} \quad (4.8)$$

Nach dem Modell von Chichibu *et al.* frieren die nicht-strahlenden Rekombinationsprozesse bei Tieftemperatur aus, sodass im hier betrachteten Fall die strahlenden Rekombinationskanäle dominieren [212]. Dementsprechend nimmt die interne Quanteneffizienz hier auch den Idealwert von Eins an. Die durch die Anpassung der monoexponentiellen Funktion an den anfänglichen Abfall der Lumineszenzintensität erhaltene Lebensdauer der exzitonischen (D^0, X) Lumineszenz beträgt $\tau_{ini} = 0,3$ ns.

Einfluss von Polarisationsfeldern auf die Rekombinationskinetik von Stapelfehlern

Im Einschwingverhalten der drei verschiedenen Rekombinationskanäle der Stapelfehler kann bereits ein signifikanter Unterschied zur (D^0, X) -Lumineszenz beobachtet werden. So benötigt die BSF-Lumineszenz mit zunehmender Dicke der kubischen Schicht eine deutlich längere Zeit zum Erreichen des Quasi-Gleichgewicht-Zustands nach dem Einschalten des Elektronenstrahls. Das Zeitverhalten der BSF-Lumineszenz im Decay zeigt ein nicht-mono-exponentielles Verhalten. Im Detail zeigen die Transienten der Stapelfehlerlumineszenz einen sehr schnellen anfänglichen Zerfall gefolgt von einem zweiten, langsameren Zerfallsprozess. Dies deutet darauf hin, dass die Rekombinationsrate abhängig von der Ladungsträgerkonzentration, also selbst zeitabhängig, ist [213].

Grund hierfür können die in die $[0001]$ -Richtung vorhandenen Polarisationsfelder sein. Kurz vor dem Abschalten des Elektronenstrahls ist die Überschussladungsträgerkonzentration am größten und demzufolge auch die Abschirmung der Polarisationsfelder am höchsten. Dies äußert sich in einer Reduktion des Quantum-confined Stark-Effekts und damit verbunden in einer schnelleren Rekombination in Folge des größeren Überlapp von Elektron- und Lochwellenfunktion. Mit fortschreitender Zeit nimmt

die Ladungsträgerkonzentration ab, wodurch wiederum der Abschirmeffekt der Polarisationsfelder reduziert wird und die Rekombinationsrate abnimmt. Folglich gewinnt der Einfluss des QCSE wieder an Stärke und reduziert die Rekombinationsrate durch eine erneut zunehmende Separation der Elektron- und Lochwellenfunktionen. Schematisch sind die Bandverläufe eines Typ I Heteroübergangs für eine hohe Anregungsdichte im steady-state und für eine niedrige Anregungsdichte im decay in Abb. 4.26 gegenübergestellt. Im Falle einer hohen Anregungsdichte führt die Abschirmung der Polarisationsfelder zu einer Reduktion der Bandverkipfung, wohingegen bei niedriger Anregungsdichte eine stärkere Bandverkipfung auftritt. Wie zu erwarten, nimmt dieser Effekt mit größer werdender Schichtdicke des kubischen Quantenfilms vom BSF I₁ zum BSF E zu.

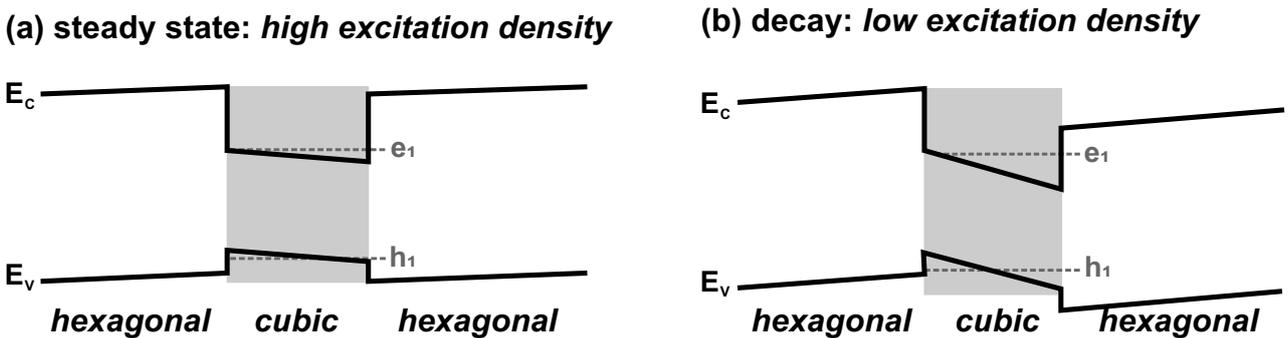


Abbildung 4.26: Einfluss der Anregungsdichte auf den Bandverlauf eines Typ I Heteroübergangs: (a) eine hohe Anregungsdichte führt zu einer Abschirmung der Polarisationsfelder und zu einer Reduktion der mit dem Feld verbundenen Bandverkipfung ; (b) bei niedriger Anregungsdichte sind die Abschirmeffekte kleiner und es tritt eine stärkere Bandverkipfung auf.

In einem kleinen Zeitbereich direkt nach dem Abschalten des Elektronenstrahls kann der Verlauf der Transienten dennoch monoexponentiell angenähert werden. Die angepassten monoexponentiellen Zerfallsfunktionen sind in rot in Abb. 4.25 dargestellt. Die ermittelten anfänglichen Lebensdauern der Stapelfehler-Emission sind in Tabelle 4.2 zusammengefasst.

Tabelle 4.2: Atomare Stapelfolge und anfängliche Lebensdauer der Basalflächenstapelfehler:

Defektyp	Stapelfolge	anfängliche Lebensdauer τ_{ini}
BSF I ₁	<i>ABABABCBCBC</i>	0,6 ns
BSF I ₂	<i>ABABABCACAC</i>	2,1 ns
BSF E	<i>ABABABCABAB</i>	3,2 ns

Hieraus lässt sich schließen, dass die anfängliche Lebensdauer mit zunehmender Schichtdicke des kubischen Quantenfilms ansteigt. Die strahlende Lebensdauer ist invers proportional zum Überlappintegral beider Wellenfunktionen. Das heißt, dass mit zunehmender strahlender Lebensdauer das Überlappintegral von Elektronen- und Loch-Wellenfunktion kleiner wird. So führt die kleinere Bandverkipfung beim BSF I₁ gegenüber dem BSF E zu einer schnelleren Rekombinationszeit und kürzeren Lebensdauer. Sowohl die Zunahme der anfänglichen Lebensdauer vom BSF I₁ zum BSF E wie auch der nicht-monoexponentielle Zerfallsprozess beweisen direkt die Auswirkung der entlang der [0001]-Richtung vorhandenen Polarisationsfelder in den GaN-Nanosäulen.

4.5 Zusammenfassung

Im vorliegenden Kapitel wurden die optischen und strukturellen Eigenschaften von dreidimensionalen GaN-Nanosäulen charakterisiert. Das selektive Wachstum der GaN-Nanosäulen mittels Molekularstrahlepitaxie ist gekennzeichnet durch eine hohe Homogenität der Nanosäulen in Bezug auf Durchmesser und Länge. Die Länge und Durchmesser der Nanosäulen wurde zu 550 nm bzw. 160 nm bestimmt. Morphologische Analysen der hexagonalen Strukturen belegen die uniforme Ausbildung von non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten und semi-polaren $\{1\bar{1}02\}$ -Facetten an der Nanosäulenspitze.

Mittels Kathodolumineszenz-Mikroskopie konnte gezeigt werden, dass die Mehrheit der GaN-Nanosäulen einen intensiven Beitrag zur exzitonischen Emission bei 357,5 nm leistet. Zusätzlich tritt eine breite Emissionsbande von Basalflächenstapelfehlern in Wellenlängenbereich zwischen 360 nm und 390 nm auf. Die hoch-orts aufgelösten CL-Messungen weisen eindeutig eine Korrelation zwischen der Reduktion der exzitonischen Emission und dem Auftreten von BSF-Lumineszenz auf.

Transmissionselektronenmikroskopie-Untersuchungen der Nanosäulen unterstützen die CL-Ergebnisse. Es konnte nachgewiesen, dass eine effektive Reduktion der Versetzungsdichte in den GaN-Nanosäulen durch das Abknicken der Defekte im Fußbereich der Strukturen stattfindet. Oberhalb einer Höhe von 100 nm sind die GaN-Nanosäulen frei von Versetzungen. Allerdings zeigt sich, dass vereinzelt Basalflächenstapelfehlern in den GaN-Nanosäulen gebildet werden, die von den Seitenfacetten terminiert werden.

Zur Analyse der Lumineszenzcharakteristik innerhalb einzelner Nanosäulen wurden CL-Messungen im Rastertransmissionselektronenmikroskop bei Tieftemperatur vorgenommen. Erstmals wurde hierfür eine optimierte Präparation mittels fokussiertem Ionenstrahl durchgeführt, um einzelne Nanostrukturen im Querschnitt zu charakterisieren. Durch die Optimierung des Präparationsprozesses hinsichtlich verringerter Oberflächenschädigung durch den hochenergetischen Ga-Ionenstrahl und eine vergrößerte Probendicke (> 100 nm) konnte der negative Einfluss der Ionenstrahlschädigung auf die optischen Eigenschaften reduziert werden.

Somit konnte gezeigt werden, dass in defekt-freien Nanosäulen ausschließlich die exzitonischen (D^0, X)-Lumineszenz auftritt. Durch die nanoskopische Analyse der örtlichen Intensitätsverteilung wurde weiterhin der Einfluss der freien Oberflächen auf die Emissionseigenschaften nachgewiesen. Ursache hierfür sind zum einen die nicht-strahlende Oberflächenrekombination und zum anderen das Fermi-Level-Pinning, das zu einer Krümmung von Leitungs- und Valenzband zu den Oberflächen führt. Die Ausdehnung der damit verbundenen Raumladungszone an der non-polaren Oberflächen wurde in Abhängigkeit von der freien Ladungsträgerkonzentration und dem Oberflächenpotential zu 20 – 50 nm bestimmt.

Durch die direkte Korrelation der kristallinen Realstruktur mit den lokalen Rekombinationsmechanismen bei Tieftemperatur wurden die Lumineszenzeigenschaften einzelner Basalflächenstapelfehler in den GaN-Nanosäulen mittels STEM-CL untersucht. Es konnten eindeutig die charakteristischen Emissionswellenlängen von Basalflächenstapelfehler vom Typ I_1 bei 361 nm, I_2 bei 374 nm

und E bei 377 nm identifiziert und den Defekten zugeordnet werden. Darüber hinaus wurde der Ladungsträgertransport zu den Stapelfehlern näher charakterisiert und eine Diffusionslänge von $\lambda_{Diff} = (95 \pm 10)$ nm bei $T = 15$ K bestimmt. Die Einfanglänge der generieren Ladungsträger liegt somit im Größenbereich der Nanosäulen, sodass die Bildung von Stapelfehlern direkt zur Reduktion der exzitonischen Lumineszenz führt.

Weiterhin wurde mit Hilfe der spektral-zeitaufgelösten Kathodolumineszenz-Untersuchung der Einfluss der Polarisationsfelder auf die Rekombinationskinetik der Basalflächenstapelfehler analysiert. Es konnte gezeigt werden, dass mit der Vergrößerung der Schichtdicke des kubischen Segments vom BSF I₁ zu BSF E eine Zunahme der anfänglichen Lebendauer der Defekte von 0,6 ns zu 3,2 ns auftritt. Gleichzeitig zeigt sich ein nicht-monoexponentieller Zerfallsprozess der Defekt-Lumineszenz.

Die Experimente demonstrieren, dass die verbesserte Ortsauflösung der STEM-CL-Mikroskopie gegenüber der SEM-CL-Mikroskopie einen wesentlichen Mehrwert an Informationen über die optischen und strukturellen Eigenschaften von Nanostrukturen liefert.

Aus den gewonnen Ergebnissen lässt sich feststellen, dass das selektive Wachstum von GaN-Nanosäulen eine aussichtsreiche Methode für die Herstellung von positionierten Bauelementen auf Nanometer-Skala darstellt. Im folgenden Kapitel 5 wird gezeigt, dass die non-polaren Oberflächen als Basis für das Wachstum von koaxialen Mantel-Schichten verwendet werden können.

5 Mikroskopische Lumineszenzuntersuchungen an InGaN/GaN-Mikrosäulen-LEDs

Nachdem im vorangegangenen Kapitel 4 die optischen und strukturellen Eigenschaften von positionierten GaN-Nanosäulen detailliert analysiert wurden, soll in diesem Kapitel die Untersuchung von koaxial gewachsenen Mikrosäulen-Heterostrukturen im Mittelpunkt stehen. Als Grundlage für die Herstellung dient wiederum ein ortsselektiver Epitaxieprozess durch die Kombination von Photolithographie und metallorganischer Gasphasenepitaxie. Die Proben wurden durch die Arbeitsgruppe um Martin Strassburg von OSRAM Opto Semiconductors bereitgestellt.

Im Fokus des Kapitels steht die hochauflösende Charakterisierung der Lumineszenzeigenschaften von dreidimensionalen InGaN/GaN-Mikrosäulen-LEDs. Die hier analysierte Probenserie verdeutlicht den Wachstumsprozess der Strukturen und umfasst aufeinander aufbauend: n-dotierte GaN-Mikrosäulen, welche als Basis für das Wachstum der aktiven Zone dienen; koaxiale InGaN/GaN-Mikrosäulen; sowie eine komplette Mikrosäulen-LED. Die Entwicklung der optischen Eigenschaften nach der Abscheidung der Mantel-Schichten wird anhand von mikroskopischen Kathodolumineszenz-Untersuchungen im Folgenden systematisch visualisiert. Dabei werden detailliert die spezifische Mikrosäulengeometrie, der Defekteinbau und die Wachstumsraten auf den semi- und non-polaren Oberflächen untersucht. Unter Verwendung von Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop werden die lokalen optischen Eigenschaften mit der kristallinen Realstruktur auf Nanometer-Skala korreliert und der laterale Ladungsträgertransport in den Mantel-Schichten analysiert.

5.1 Si-dotierte GaN-Mikrosäulen

5.1.1 Selektives MOVPE-Wachstum und strukturelle Charakterisierung

Die Si-dotierten GaN-Mikrosäulen wurden mittels metallorganischer Gasphasenepitaxie auf eine in [0001]-Richtung orientierte GaN/Saphir-Pufferstruktur gewachsen. Eine schematische Darstellung des Wachstumsprozesses der Mikrosäulen ist in Abb. 5.1 gezeigt. Die GaN-Pufferschicht ist im unteren, substratnahen Bereich nominell undotiert und weist im oberen Bereich eine zunehmende Si-Dotierung in der Größenordnung von $N_D = 10^{18} - 10^{19} \text{cm}^{-3}$ auf. Eine genauere morphologische, strukturelle und/oder optische Charakterisierung der Pufferschicht soll im Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht erfolgen. Auf die GaN-Pufferschicht wurde anschließend mittels chemischer Gasphasenabscheidung (engl. *chemical vapor deposition* — CVD) eine 30 nm dicke Siliziumdioxid-Schicht (SiO_2) abgeschieden. Unter Verwendung von Photolithographie wurde im folgenden Schritt eine geometrische Strukturierung der SiO_2 -Schicht vorgenommen. In die planare Oberfläche wurden durch Lithographie- und

Ätzschritte, kreisrunde Löcher mit einem Durchmesser von $1\ \mu\text{m}$ in einer hexagonalen Anordnung strukturiert (siehe Abb. 5.1(a)) [24, 89]. Die Dichte und Größe der Mikrosäulen ist direkt über die Maskenanordnung und den Lochdurchmesser steuerbar.

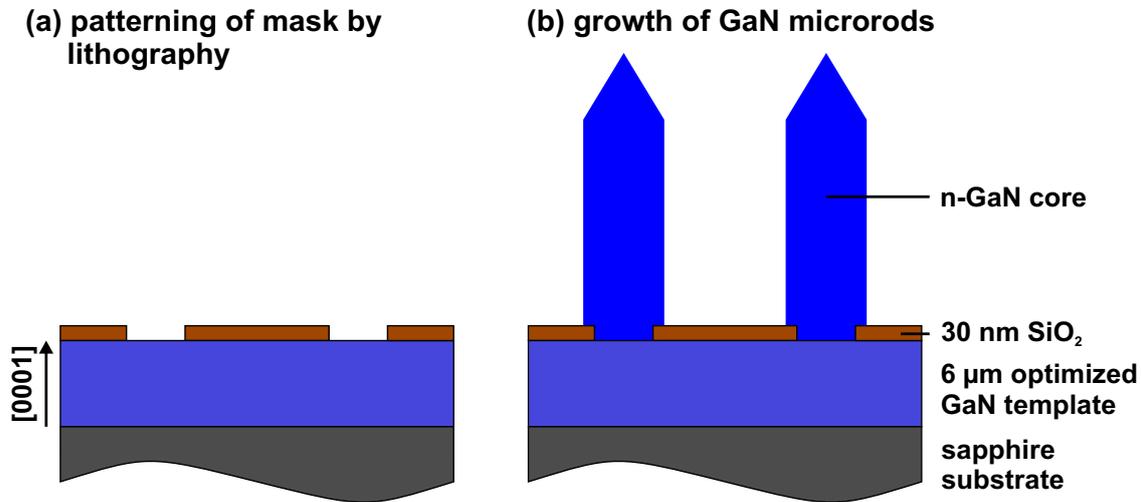
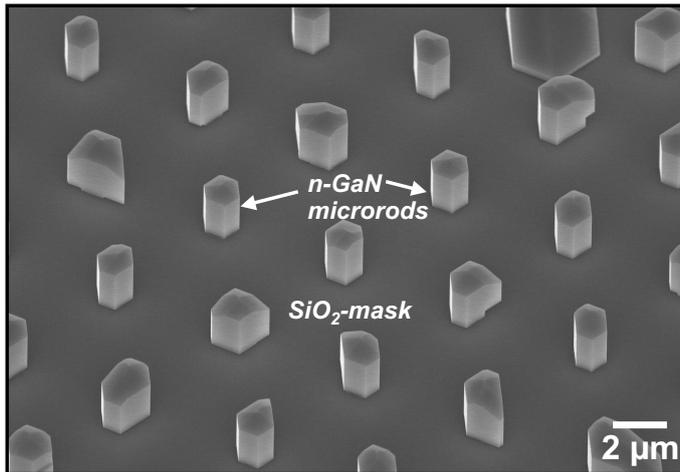


Abbildung 5.1: Schematischer Wachstumsprozess der dreidimensionalen Mikrosäulen: (a) Photolithographische Strukturierung der SiO₂-Maske auf der GaN-Pufferstruktur; (b) MOVPE-Wachstum der Si-dotierten GaN-Mikrosäulen aus den Lochmasken heraus entlang der [0001]-Richtung.

Im folgenden MOVPE-Wachstumsprozess, dargestellt in Abb. 5.1(b), wurden Trimethylgallium (TMG) sowie Ammoniak (NH₃) als Prekursoren verwendet. Zu Beginn des Epitaxieprozesses fand eine bevorzugte Nukleation des GaN innerhalb der Öffnungen der SiO₂-Maske statt. Typischerweise wird zum Anfang des Wachstums die Ausbildung einer Nukleationspyramide beobachtet [22, 24]. Die Entstehung und das Wachstumsverhalten dieser pyramidalen Nanostrukturen wurde von Dubrovskii *et al.* ausführlich in Referenz [155] im Rahmen eines thermodynamischen Wachstumsmodells der selbstinduzierten Nukleation theoretisch beschrieben. Bei weiterer Deposition von GaN tritt bevorzugt ein vertikales Wachstum entlang der [0001]-Richtung auf, während das laterale Wachstum unterdrückt wird. Um das dreidimensionale Wachstum von Mikrosäulen zu erreichen, wurde im Reaktor bei einer Wachstumstemperatur von $T = 1050^\circ\text{C}$ unter hohen Silanflüssen (900 nmol/min) und einem Stickstoff-zu-Gallium-Verhältnis von 50 gearbeitet [89]. Durch den hohen SiH₄-Fluss wurde das laterale Wachstum unterdrückt und die vertikale Wachstumsrate forciert [82, 214]. Das Verhältnis von vertikaler zu lateraler Wachstumsrate liegt für MOVPE-gewachsene Mikrosäulen typischerweise im Bereich von ca. 1000 [77]. Das Wachstum unter hohem Silan-Fluss bewirkt zusätzlich eine n-Dotierung der GaN-Mikrosäulen [104]. Für planare Strukturen würde ein Silan-Fluss von 900 nmol/min eine Dotierkonzentration oberhalb von $N_D = 10^{19}\ \text{cm}^{-3}$ bewirken [24].

In der rasterelektronenmikroskopischen Übersichtsaufnahme der Probenoberfläche in Abb. 5.2(a) ist die homogene Anordnung der Mikrosäulen auf dem GaN-Puffer klar sichtbar. Die SEM-Untersuchungen belegen, dass das MOVPE-Wachstum ausschließlich aus den Öffnungen der SiO₂-Maske stattgefunden hat. Auf der SiO₂-Schicht ist kein parasitäres Wachstum zu beobachten.

**Abbildung 5.2:**

Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahme der GaN-Mikrosäulen auf der Pufferoberfläche.

Aus SEM-Übersichtsmessungen der Probenoberfläche wurde die mittlere Dichte der Mikrosäulen zu $5 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$ bestimmt. Der Abstand zwischen den hexagonal angeordneten Säulen beträgt $5 \mu\text{m}$. Die Mikrosäulen zeigen eine gleichmäßige Höhe von etwa $3,0 \mu\text{m}$ und einen Breite von rund $1,3 \mu\text{m}$ von Facette zu Facette. Hieraus ergibt sich in erster Näherung ein Aspekt-Verhältnis von 2,3 für die dreidimensionalen Strukturen. Jedoch finden sich lokal auch ungleichförmige Mikrosäulen auf der Probenoberfläche wieder, bei denen sich die streng symmetrische hexagonale Symmetrie nicht gleichmäßig ausgebildet hat. Für eine gleichmäßige Ausbildung der Mikrosäulen mit hoher Symmetrie müssen drei Aspekte zusammenkommen:

- uniforme Abscheidung des Maskenmaterials
- gleichmäßiger Photolithographie-Prozess mit Ausbildung einer kreisrunden Lockmaske
- homogene Wachstumsbedingungen im Reaktor, die eine einheitliche Kristallorientierung am Anfang des Säulenwachstums ermöglichen.

Die Detailaufnahme einer einzelnen Säule in Bild 5.3(a) zeigt deutlich die Ausbildung von non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Oberflächen im unteren Bereich, wohingegen sich im Bereich der Spitze semi-polare Facetten ausgebildet haben. Wie schematisch in Abb. 5.3(c) gezeigt, lassen sich aus den Winkelorientierungen der Oberflächen zur c-Richtung die Indizes der semi-polaren Facetten ableiten. Demzufolge wird die Spitze der Mikrosäule von semi-polaren $\{1\bar{1}02\}$ -Facetten terminiert. Die Ausbildung von pyramidalen Facetten ist ein Hinweis auf ein Ga-polares Wachstum der Mikrosäulen [91, 215]. Im Gegensatz dazu wird in der Literatur für N-polare Strukturen häufig die Ausbildung von ebenen (0001)-orientierten Oberflächen berichtet [116, 216].

Die Polarität der Mikrosäulenoberflächen hat aufgrund unterschiedlicher chemischer Eigenschaften (z. B. Differenzen in den Bindungsenergien) entscheidende Einflüsse auf den Einbau von Dotieratomen wie auch auf die Morphologie der folgenden Mantel-Schichten [217, 218]. Zur näheren Analyse der Oberflächenpolarität der GaN-Mikrosäulen wurden nasschemische Ätzverfahren mittels Kaliumhydroxid-Lösung eingesetzt. Beim Ätzprozess findet ein effektives Ätzen nur bei Stickstoffterminierten Oberflächen statt [219]. Grund hierfür sind die verschiedenen Zustände der Oberflächen. N-polares Galliumnitrid kann mit seinen freien Bindungen der Oberfläche (engl. *dangling bonds*)

leichter eine chemische Reaktion mit den Hydroxid-Ionen eingehen als Ga-polares GaN [220]. Die Morphologie der GaN-Mikrosäulen wurde mittels Rasterelektronenmikroskopie vor dem Ätzvorgang und nach 15 min im KOH-Ätzbad analysiert (siehe Abb. 5.3(a, b)).

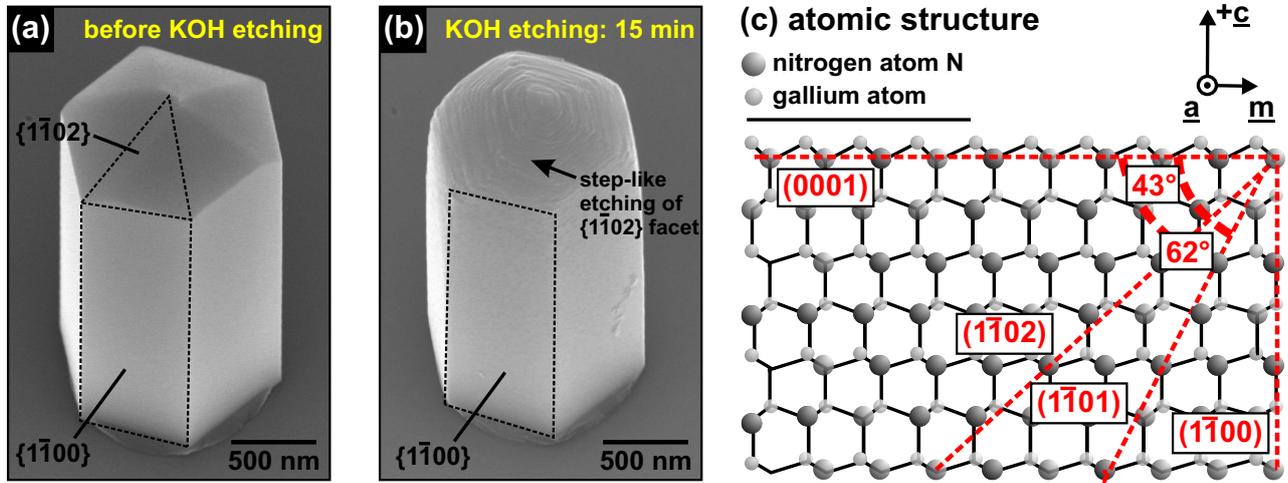


Abbildung 5.3: (a) Detailaufnahme einer einzelnen GaN-Mikrosäule und Indizierung der Facetten-Orientierung vor dem Ätzen (a) und nach 15 Minuten im KOH-Ätzbad; (c) schematische Darstellung der atomaren Stapelfolge für (0001)-orientiertes GaN entlang der $[11\bar{2}0]$ -Richtung [24].

Nach dem Ätzvorgang lässt sich ein stufenförmiges Profil im Bereich der semi-polaren Spitze erkennen, was auf eine gemischte Polarität der $\{1\bar{1}02\}$ -Facetten zurückzuführen ist. Der Ätzprozess wirkt nur auf die lokal vorhandene, jedoch periodische Stickstoff-Terminierung und sorgt dort für eine Änderung der Morphologie, wohingegen die Ga-polaren Ebenen nur wenig verändert wurden [215]. Im Gegensatz dazu wurden die non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten vom Ätzprozess nicht beeinflusst, da hier keine freien Bindungen vorhanden sind, um eine chemische Reaktion auszulösen.

Die Ergebnisse der Ätzexperimente belegen die Ga-Polarität der Mikrosäulen. Nasschemische KOH-Ätzprozesse an N-polaren Strukturen würden hingegen wie von Li *et al.* gezeigt zu einer deutlichen Aufrauung der Säulen bzw. zu einem kompletten Wegätzen der dreidimensionalen Strukturen führen [215]. Demzufolge übernehmen die Mikrosäulen die Polarität der unterliegenden GaN-Pufferschicht im selektiven Wachstumsprozess.

5.1.2 Mikroskopische Lumineszenzverteilung

Zur Korrelation der Lumineszenzeigenschaften mit der Realstruktur der Mikrosäulen wurden ortsaufgelöste Kathodolumineszenz-Spektroskopie-Messungen im Rasterelektronenmikroskop angefertigt ($U_{\text{acc}} = 5 \text{ kV}$; $I_B = 500 \text{ pA}$). Abbildung 5.4 zeigt die SEM-Aufnahme der Si-dotierten GaN-Mikrosäulen auf der c -planaren Oberfläche der Pufferstruktur (a), das spektral-integrale Intensitätsbild der Kathodolumineszenz (b) sowie das korrespondierende orts-integrale Spektrum bei $T = 6 \text{ K}$ (c). Im SEM-Bild ist der GaN-Puffer mit der darauf abgeschiedenen SiO_2 -Maske als dunklerer Kontrast sichtbar. Auf diesem stehen regelmäßig angeordnet die dreidimensionalen Mikrosäulen, welche als hellerer Grauton erkennbar sind.

Im Intensitätsbild in Abb. 5.4(b) wird die höchste CL-Intensität von der GaN-Pufferstruktur emittiert. Der Farbkontrast weist auf eine homogene Emissionscharakteristik der Pufferschicht hin. Von den Si-dotierten GaN-Mikrosäulen wird hingegen eine über zwei Größenordnungen schwächere panchromatische Lumineszenzintensität detektiert. Die reduzierte Quantenausbeute in den Säulen weist auf eine Zunahme nicht-strahlender Rekombinationsprozesse durch eine Abnahme der Materialqualität im dreidimensionalen Wachstumsprozess hin.

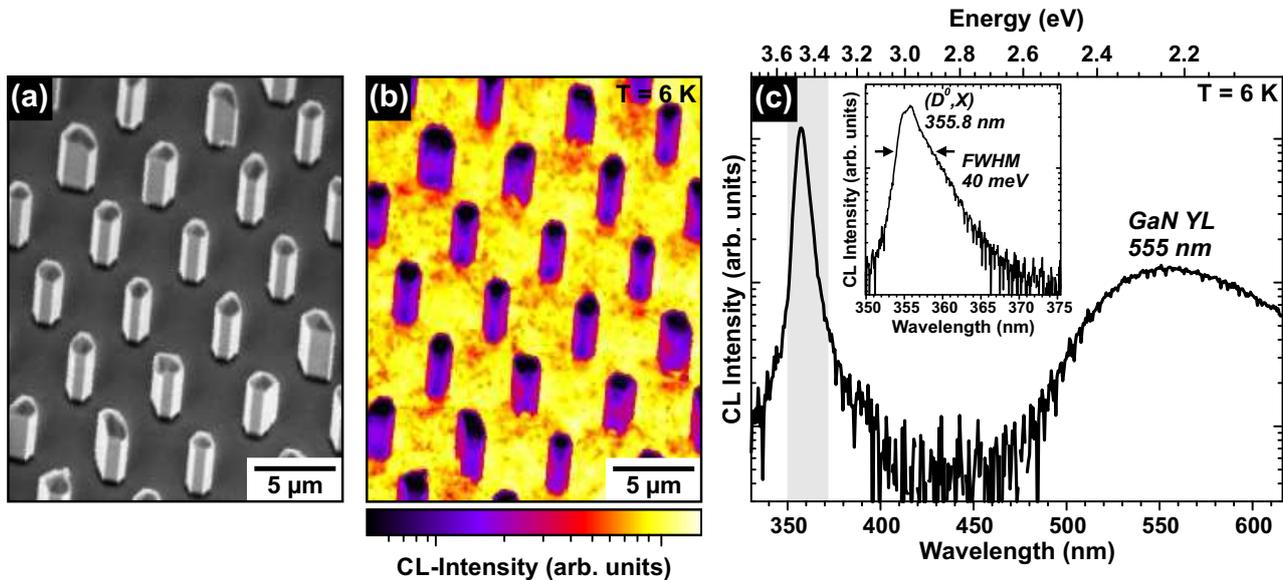


Abbildung 5.4: (a) SEM-Bild des untersuchten Probenbereichs; (b) korrespondierendes spektral-integrales Intensitätsbild der Kathodolumineszenz und (c) das orts-integrale Spektrum bei $T = 6$ K.

Dementsprechend können im Übersichtsspektrum (Abb. 5.4(c)) die bandkannennahe Lumineszenz (engl. *near band-edge* — NBE) sowie die breite Emissionsbande der gelben Defektlumineszenz (engl. *yellow luminescence* — YL) bei 555 nm dem GaN-Puffer zugeordnet werden.

Die detaillierte Analyse der Linienform der bandkannennahen Lumineszenz zeigt eine intensive Emission bei 355,8 nm mit einer niederenergetischen Schulter. Die Linienbreite der Emission beträgt $\text{FWHM} = 40$ meV. Ordnet man den Übergang bei 355,8 nm dem an einen neutralen Donator gebundenen Exziton zu, so zeigt sich hier als Folge der kompressiven Verspannung durch die epitaktische Abscheidung des GaN-Puffers auf Saphir eine blauverschobene Linienlage im Vergleich zu dem Wert von relaxierten GaN um 15 meV [187]. Wie in Kap. 2.3 erläutert, hängt die Linienlage des Donator gebundenen Exzitons im GaN jedoch auch stark von der Konzentration der Dotieratome ab. Die asymmetrische Verbreiterung der niederenergetischen Flanke könnte auf die Bandkantenrenormalisierung aufgrund des Silizium-Dotierprofils innerhalb der GaN-Pufferstruktur zurückzuführen sein. Dieser Vielteilcheneffekt sorgt dafür, dass die Abstoßung der Valenzband- und Leitungsbandelektroden im Halbleiter bei großen Ladungsträgerkonzentrationen abgeschirmt wird. In dessen Folge wird die effektive Verteilung der Elektronen beeinflusst, wodurch es zu einer energetischen Absenkung der Leitungsbandkante bzw. einer Anhebung der Valenzbandkante und damit zu einer Verringerung der Bandlückenenergie kommt [69, 221]. Lokale Schwankungen in der Dotierkonzentration auf mikroskopischer Skala können zusätzlich eine Verbreiterung der Lumineszenzbande bewirken [222, 223].

Im Gegensatz zu den in Kapitel 4 behandelten GaN-Nanosäulen ist im Spektrum kein Hinweis für die Emission von Basalflächenstapelfehlern zu finden.

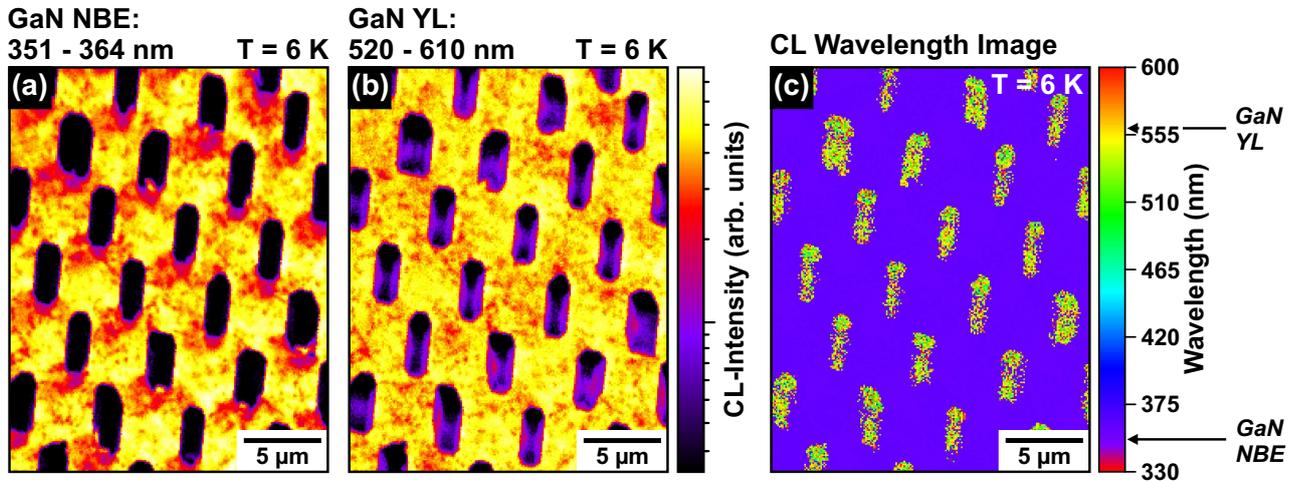


Abbildung 5.5: Monochromatische CL-Intensitätsbilder der bandkantennahen Emission von 351 - 364 nm (a) und der gelben Defekt-Lumineszenz von 520 - 610 nm (b) in logarithmischer Darstellung; vergleichend dazu das CL-Wellenlängenbild (c).

Die Intensitätsverteilungen der bandkantennahen und gelben Defekt-Lumineszenz sind vergleichend in Abb. 5.5(a, b) gegenübergestellt. Die bandkantennahe Emission im Wellenlängenbereich von 351 - 364 nm tritt dominant im planaren GaN-Puffer auf, wohingegen die Intensität in den Mikrosäulen stark reduziert ist.

Das monochromatische Intensitätsbild der gelben Defekt-Lumineszenz im Spektralbereich von 520 - 610 nm zeigt wiederum eine intensive Emission vom GaN-Puffer, jedoch auch eine schwache CL-Intensität von den Mikrosäulen. Das CL-Wellenlängenbild (Abb. 5.5(c)) visualisiert deutlich die unterschiedlich dominanten Rekombinationskanäle in der planaren Pufferstruktur und den darauf gewachsenen dreidimensionalen GaN-Mikrosäulen. Im Bereich des GaN-Puffers tritt exklusiv ein blauer Farbkontrast der bandkantennahen Emission auf. Im Gegensatz dazu wird von den Si-dotierten GaN-Mikrosäulen nur eine intensitätsschwache gelbe Defekt-Lumineszenz detektiert (grün-gelber Farbkontrast).

Die Materialqualität und der kristalline Aufbau der Probe wurde mittels Transmissionselektronenmikroskopie näher analysiert. Abbildung 5.6(a) zeigt eine STEM-ADF-Aufnahme einer GaN-Mikrosäule im Querschnitt. Im unteren Bildbereich befindet sich die GaN-Pufferschicht. Aus dem Maskenloch in der SiO₂-Schicht ist die Mikrosäule kohärent entlang der [0001]-Richtung gewachsen. Die kristallographischen Orientierungen der non-polaren Seitenfacetten und der semi-polaren Spitze sind im Bild indiziert. Die STEM-Aufnahme bestätigt, dass unter den gewählten Wachstumsbedingungen die vertikale Wachstumsrate erheblich größer ist als die laterale Wachstumsrate und folglich nur ein geringer Teil der Maske überwachsen wird. Der Durchmesser der Mikrosäule beträgt im mittleren Bereich 1,3 µm von Facette zu Facette.

Die „Filterwirkung“ im selektiven Wachstumsprozess hat zur Folge, dass nur vereinzelt Versetzungen aus dem Puffer kommend in die Mikrosäulen propagieren und so eine klare Reduktion der Versetzungs-

dichte auftritt. Wie bereits in Kapitel 4.3 beschrieben, werden Versetzungen, die in die Mikrosäulen propagieren, wiederum lateral zu den non-polaren Oberflächen abgelenkt (Abb. 5.6(b)). Im mittleren und oberen Bereich sind die Mikrosäulen komplett frei von Versetzungen und Basalfächenstapelfehlern. Demnach können Versetzungen als nicht-strahlende Rekombinationszentren in den Mikrosäulen als Ursache für die niedrige CL-Intensität in Abb. 5.4 und 5.5 ausgeschlossen werden.

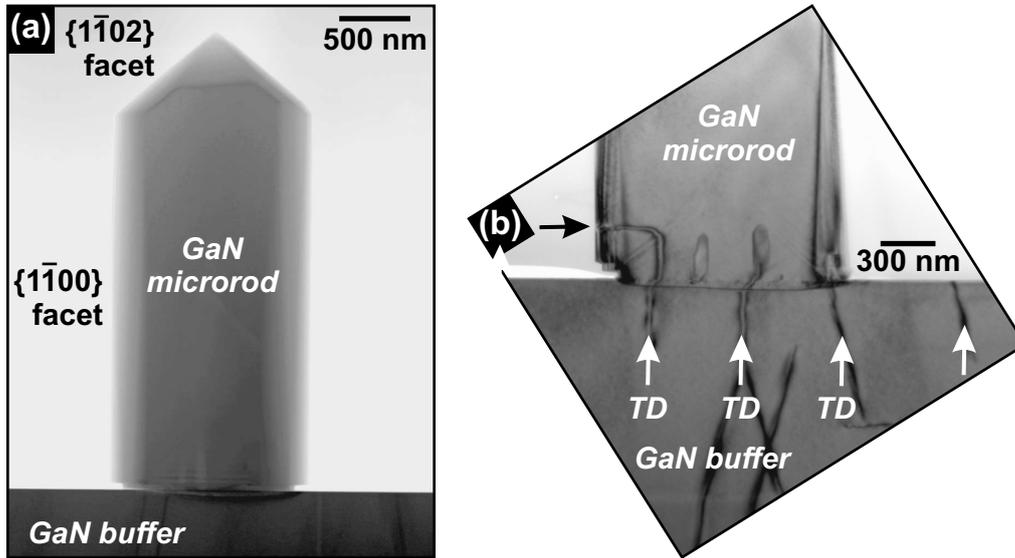


Abbildung 5.6: STEM-ADF-Bild einer GaN-Mikrosäule im Querschnitt; (b) TEM-Aufnahme am Übergang vom GaN-Puffer zur Mikrosäule.

Bildung von Punktdefekten in Si-dotierten GaN-Mikrosäulen

Sowohl die schwache CL-Intensität als auch das Auftreten der gelben Defekt-Lumineszenz in den Mikrosäulen sowie die niedrige Versetzungsdichte sind ein Hinweis auf einen vermehrten Einbau von Punktdefekten während des dreidimensionalen Wachstums. Durch die Bildung von Punktdefekten entstehen neue Energiezustände innerhalb der Bandlücke, die als nicht-strahlende Rekombinationszentren wirken können.

Nach Schottky, Read und Hall führt der Übergang eines Elektrons vom Leitungsband über diesen neuen Energiezustand ins Valenzband zur Emission von Phononen (siehe Abb. 5.7) [224]. Die Rekombinationsrate dieser Prozesse hängt insbesondere von der energetischen Lage des Einfangenergieniveaus ab. Demnach besitzt eine tiefe Störstellen in der Mitte der Bandlücke die höchste nicht-strahlende Rekombinationsrate. Untersuchungen von Chichibu *et al.* zeigen auf, dass vor allem Gallium-Vakanzen als nicht-strahlende Rekombinationszentren im GaN dienen können [225].

Generell gilt für die Bildungsenergie von Punktdefekten $E^f(x^q)$ nach van-de-Walle *et al.* [226]:

$$E^f(x^q) = E_{ref}(x^q) - \sum_i n_i \mu_i + q(E_F - E_V). \quad (5.1)$$

Der Term $E_{ref}(x^q)$ beschreibt die Differenz der freien Energie eines Kristalls mit einem einzigen Punktdefekt in Referenz zu einem perfekten defektfreien Kristall. Der zweite Term beinhaltet das chemische Potential μ_i und beschreibt die Energie die nötig ist, um Atome innerhalb des Kristalls

auszutauschen. Im letzten Term wird die Elektronen-Wechselwirkungsenergie des System berücksichtigt, welche vom Fermi-Level E_F und dem Valenzbandmaximum E_V abhängt. Die Abhängigkeit der Bildungsenergie für Punktdefekte in GaN vom Fermi-Level ist in Darstellung 5.7(c) gezeigt. Nach van-de-Walle nimmt die Bildungsenergie von intrinsischen Punktdefekten in Form von Ga-Vakanzen (V_{Ga}) mit Erhöhung der Fermi-Energie deutlich ab [226]. Da die energetische Lage der Fermi-Energie wiederum von der freien Ladungsträgerkonzentration im Material abhängt, beeinflusst die Si-Dotierung von GaN folglich die Bildungswahrscheinlichkeit von Punktdefekten. Mit zunehmender Si-Dotierung der Mikrosäulen wird demnach das Fermi-Level angehoben, sodass Ga-Vakanzen energetisch stabiler werden und als nicht-strahlende Rekombinationszentren wirken können [226].

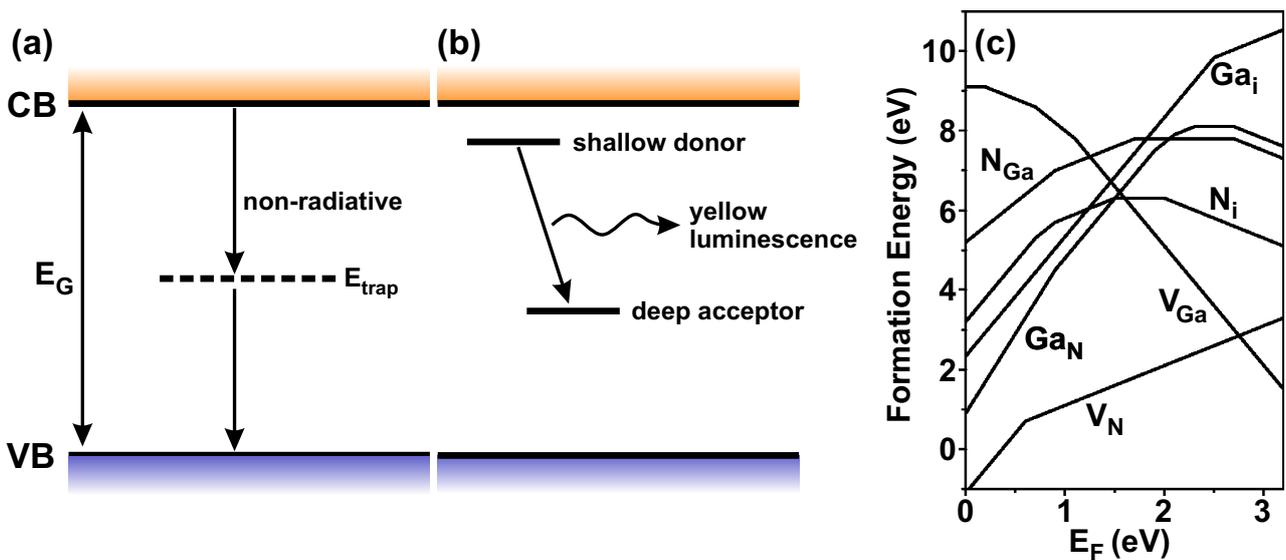


Abbildung 5.7: (a) Modell zur nicht-strahlenden Rekombination über eine tiefe Störstelle mit der Energie E_{trap} und (b) Modell zur Rekombination von einem flachen Donator zu einem tiefen Akzeptor unter Emission der gelben Defekt-Lumineszenz; (c) Bildungsenergie von intrinsischen Punktdefekten in GaN als Funktion der Fermi-Energie nach van-de-Walle *et al.* [226].

Punktdefekte bilden auch die Ursache für die gelbe Defekt-Lumineszenz im GaN. Theoretische Modelle beschreiben die gelbe Defekt-Lumineszenz als optische Übergänge unter Beteiligung von flachen Donatoren und tiefen Akzeptoren (siehe Abb. 5.7(b)). Isolierte Ga-Vakanzen (V_{Ga}) werden hierbei als intrinsische Akzeptoren und $(V_{Ga}-O_N)$ -, $(V_{Ga}-Si_{Ga})$ und $(V_{Ga}-Si_H)$ -Komplexe als flache extrinsische Donatoren angenommen [227–230].

Eine Auswertung des Intensitätsverhältnisses von gelber Defekt-Lumineszenz zu bandkantennaher Emission (I_{YL}/I_{GaN}) ist in den lokalen Spektren (Abb. 5.8(b, c)), wie auch als Mapping in Abb. 5.5(a) gezeigt. Die gelbe Defekt-Lumineszenz ist in den Mikrosäulen im Verhältnis zur bandkantennahen Emission deutlich intensiver als im unterliegenden Puffer. Der Großteil der strahlenden Rekombination in den Mikrosäulen findet demnach durch den optischen Übergang der Überschuss-Ladungsträger über tiefe Störstellen statt. Dies wird auch in den lokalen Spektren (Abb. 5.8(b, c)) deutlich: Für die Si-dotierten Mikrosäulen ist das Verhältnis der Peak-Intensitäten $I_{YL}/I_{GaN} = 0,91$ deutlich größer als für die GaN-Pufferschicht mit 0,09.

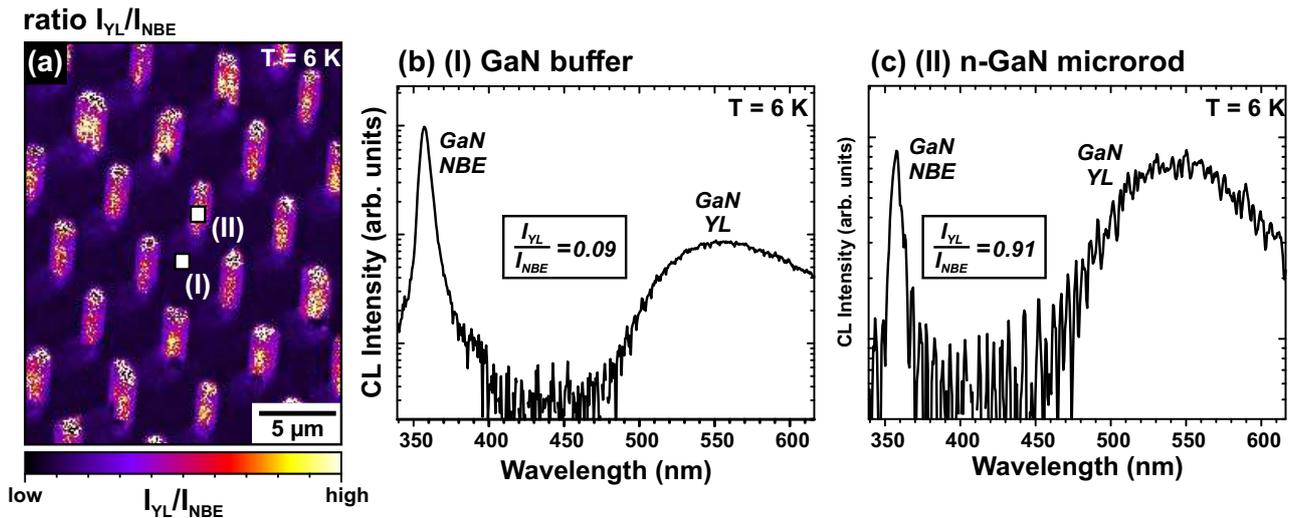


Abbildung 5.8: (a) Intensitätsverhältnis von gelber Defekt-Lumineszenz und bandkantennaher Emission sowie lokale Spektren (b) von der GaN Pufferschicht und (c) einer n-GaN Mikrosäule bei $T = 6$ K.

Wie von Kaufmann *et al.* und Schubert *et al.* berichtet, skaliert die Intensität der gelben Defekt-Lumineszenz in planaren GaN-Schichten mit einer zunehmenden Si-Dotierkonzentration [103, 222]. Eine weitere Erklärung für die Zunahme der gelben Defekt-Lumineszenz im Verhältnis zur NBE-Emission könnte auch ein zusätzlicher Einbau von Fremdatomen aus der SiO_2 -Maske durch Diffusionsprozesse in die Wachstumsfront der Mikrosäulen sein [231]. Dementsprechend können durch den Einbau von Fremdatomen ($\text{V}_{\text{Ga}}\text{-O}_{\text{N}}$)- und ($\text{V}_{\text{Ga}}\text{-Si}_{\text{Ga}}$)-Komplexe als extrinsische Donatoren gebildet werden.

Zusammenfassend lässt sich aus Kathodolumineszenz- und STEM-Untersuchungen ableiten, dass das dreidimensionale Wachstum von Si-dotierten GaN-Mikrosäulen im MOVPE-Prozess durch einen vermehrten Einbau von Punktdefekten gekennzeichnet ist. Diese Punktdefekte bewirken als nicht-strahlende Rekombinationszentren eine Abnahme der Quantenausbeute, wohingegen sie als strahlende Rekombinationszentren die Emission der gelben Defekt-Lumineszenz fördern.

5.2 Koaxiale InGaN/GaN Mikrosäulen

5.2.1 Mikroskopische Analyse der morphologischen und optischen Eigenschaften

Wie zu Beginn dieses Kapitels erläutert, wird als optisch aktive Zone ein InGaN/GaN-Quantenfilm als Mantel-Schicht epitaktisch auf die komplette dreidimensionale GaN-Mikrosäule abgeschieden. Auf diese Weise bildet sich eine sogenannte „Core-Shell“-Struktur aus. Abbildung 5.9 zeigt schematisch den Probenaufbau der untersuchten InGaN/GaN-Mikrosäulen.

Die Wachstumsbedingungen aus Kapitel 5.1 wurden für die Si-dotierten GaN-Mikrosäulen, in Abb. 5.9 als n-GaN core bezeichnet, beibehalten. Das anfängliche Wachstum der Mikrosäulen unter hohem Silan-Fluss begünstigt jedoch die Entstehung von SiN-Passivierungsschichten auf den Oberflächen der Säulen [70, 232]. Nach Mohajerani *et al.* und Griffiths *et al.* können diese Passivierungsschichten zur Bildung von Versetzungen und Stapelfehlern während des Wachstums der koaxialen Mantel-Schichten führen [233, 234]. Zur Vermeidung des Defekteinbaus wurde im ersten Schritt eine AlGaN-Anpassungsschicht auf die Mikrosäulen gewachsen. An die AlGaN-Schicht anschließend wurde eine moderat Si-dotierte GaN-Schicht gefolgt vom InGaN/GaN-Quantenfilm (engl. *quantum well* — QW) epitaktisch abgeschieden.

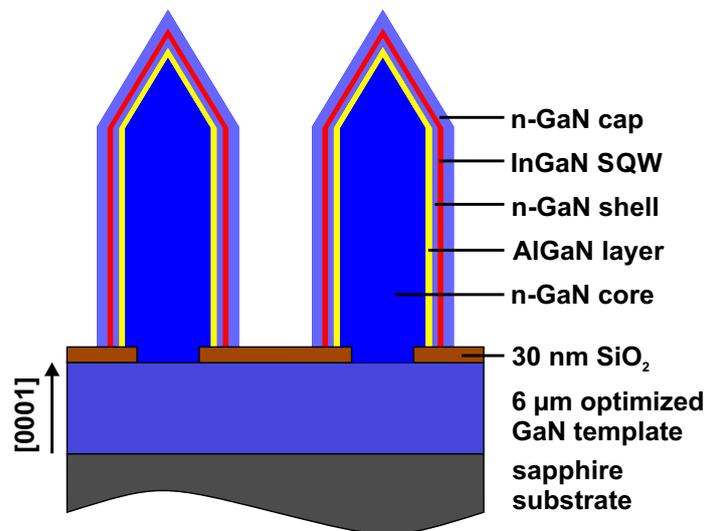


Abbildung 5.9: Schematischer Probenaufbau der koaxialen InGaN/GaN Mikrosäulen.

Anders als zur Züchtung der n-dotierten GaN-Mikrosäulen wurden für das Wachstum der Mantel-Schichten stickstoffreiche Bedingungen verwendet, sodass das V/III-Verhältnis um zwei Größenordnungen erhöht wurde, was den Wachstumsparametern für planare, zweidimensionale Schichten entspricht. Die Abscheidung des InGaN-QW bzw. der n-GaN-Barrieren erfolgte bei einer Temperatur von 750°C bzw. 850°C [89]. Da sowohl der Indiumeinbau wie auch die Wachstumsrate des Quantenfilms stark von der Kristallorientierung der Oberflächen abhängt [235], wurden die Epitaxiebedingungen für die sechs non-polaren Seitenfacetten optimiert. Die nominelle Dicke des InGaN-Quantenfilms beträgt 5 nm bei einer mittleren Indiumkonzentration von 20%.

In Abb. 5.10 ist eine SEM-Aufnahme von der Probenoberfläche (a) sowie einer einzelnen Mikrosäule mit aufgewachsenem InGaN-QW in höherer Vergrößerung (b) dargestellt. Im Vergleich mit der in

Kapitel 5.1 vorgestellten Probe ist die Dichte der Mikrosäulen mit $1,3 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$ deutlich angestiegen. Der Grund hierfür ist eine Veränderung des SiO_2 -Maskenlayouts für das ortsselektive Zonenwachstum. Die Deposition der Maske wie auch der Wachstumsprozess wurden in diesem Fall besser kontrolliert, sodass nur noch sehr vereinzelt Säulen von ihrer idealen hexagonalen Symmetrie abweichen. Der Durchmesser sowie die Höhe betragen $1,3 \mu\text{m}$ beziehungsweise $3,1 \mu\text{m}$.

Die strukturelle Untersuchung einer einzelnen, repräsentativen Mikrosäule in höherer Vergrößerung (Abb. 5.10(b)) belegt, dass während des Überwachsens der dreidimensionalen Basis (GaN-Kern) die non-polare Facetten-Orientierung für die Mantel-Schichten übernommen wird. Im Bereich der Spitze bilden sich jedoch im Gegensatz zur Referenzstruktur in Kapitel 5.1 zwei unterschiedliche semi-polare Facetten aus. Im unteren Bereich wird die Spitze von $\{1\bar{1}01\}$ - und im oberen Bereich von $\{1\bar{1}02\}$ -Facetten terminiert.

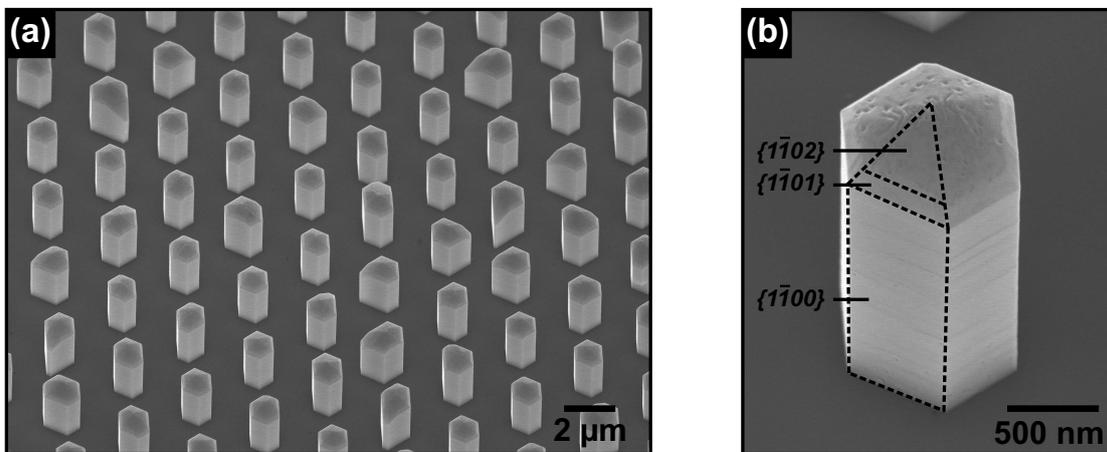


Abbildung 5.10: Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahmen der InGaN/GaN-Mikrosäulen: (a) Übersichtsaufnahme des Mikrosäulen-Ensembles; (b) Detailaufnahme einer einzelnen Mikrosäule mit der Indizierung der Facetten-Orientierung.

Zur Analyse der Ensemble-Lumineszenz wurden SEM-CL-Messungen über einen Probenbereich mit 70 Mikrosäulen durchgeführt. Die Untersuchungen haben bei einer Beschleunigungsspannung von $U_{\text{acc}} = 5 \text{ kV}$ und einem Strahlstrom von $I_B = 500 \text{ pA}$ stattgefunden. Die Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahme, die Peakwellenlängenverteilung und das korrespondierende orts-integrale Spektrum bei Tieftemperatur ($T = 6 \text{ K}$) sind in Abb. 5.11 gezeigt. Zum Vergleich der Proben ist im Hintergrund (grau) das integrale CL-Spektrum der Referenzstruktur ohne InGaN-QW aus Kapitel 5.1 dargestellt. Beide Spektren wurden auf die bandkannennahe Emission vom GaN normiert. Wie auch schon bei der Referenzprobe beobachtet, treten im Spektrum die bandkannennahe Lumineszenz bei 356 nm sowie die gelbe Defekt-Lumineszenz bei 555 nm auf, die vorwiegend der Anregung des GaN-Puffers zugeordnet werden.

Ein weiterer intensiver Rekombinationskanal tritt bei einem Lumineszenzmaximum von 432 nm auf und kann der Emission des InGaN-Quantenfilms zugeschrieben werden. Das Spektrum zeigt eine zu längeren Wellenlängen hin ausgeprägte asymmetrische Verbreiterung der Lumineszenzbande des Quantenfilms. Die Linienbreite der InGaN-Emission wurde zu $\text{FWHM} = 230 \text{ meV}$ bestimmt und ist vergleichbar mit den von Tchernycheva *et al.* und Jung *et al.* berichteten Linienbreiten von InGaN/GaN

„Core-Shell“-Mikrosäulen [25, 27]. Im Gegensatz dazu zeigen planare InGaN/GaN-Quantenfilme eine deutliche niedrigere Halbwertsbreite. Typische Werte für c-planare InGaN/GaN-Quantenfilme liegen im Bereich zwischen 30 - 80 meV bzw. für m-planare Quantenfilme zwischen 70 - 140 meV [235–240].

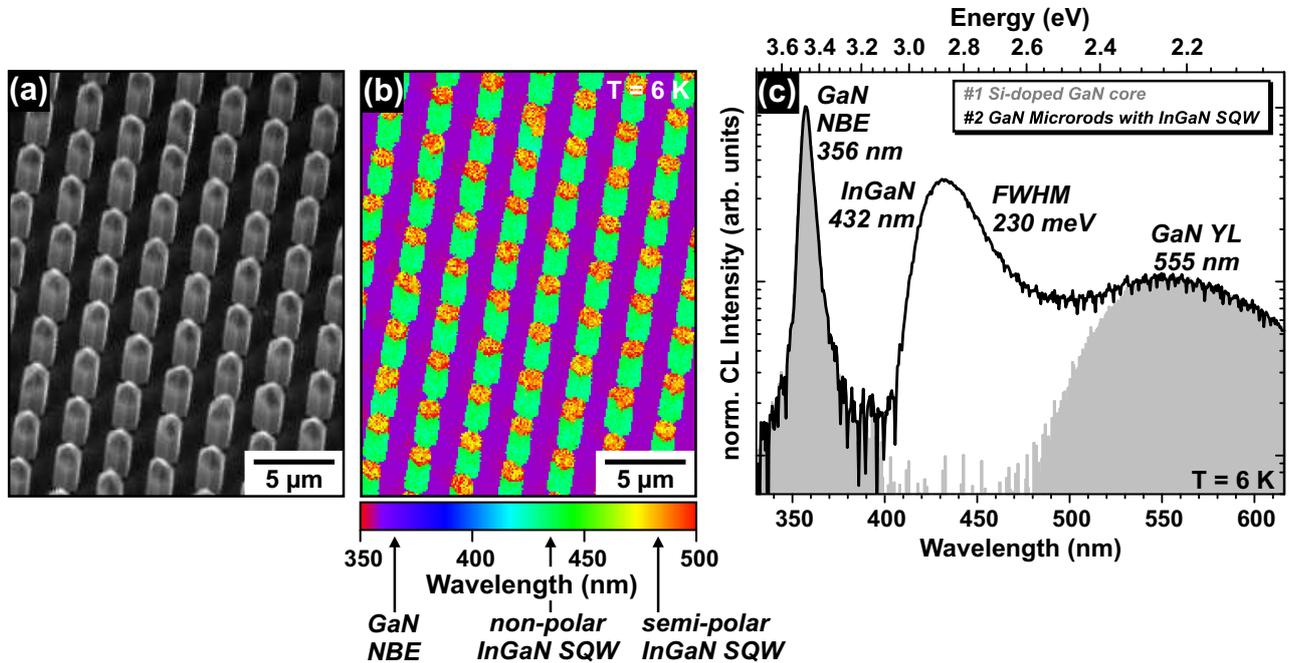


Abbildung 5.11: (a) SEM-Aufnahme der Probenoberfläche und (b) CL-Wellenlängenbild; (c) orts-integrales CL-Spektrum der InGaN/GaN-Mikrosäulen (schwarz). Im Vergleich dazu ist das integrale CL-Spektrum der Si-dotierten GaN-Säulen in grau hinterlegt (T = 6 K).

Das CL-Wellenlängenbild in Abb. 5.11(b) weist eine uniforme Emissionscharakteristik der Mikrosäulen auf. Alle Mikrosäulen zeigen eine vergleichbare Peakwellenlängenverteilung, sodass angenommen werden kann, dass eine inhomogene Ensembleverbreiterung der QW-Lumineszenz als Folge lokal inhomogener Wachstumsprozesse von Säule-zu-Säule gering ist (siehe auch Abb. 5.12). Jedoch identifiziert das Wellenlängenbild zwei örtlich disjunkte Emissionsbereiche der InGaN-Lumineszenz bei 432 nm und 490 nm. Die Seitenfacetten emittieren demnach bei 432 nm, wohingegen die Peakwellenlänge der semi-polaren Sitze bei 490 nm liegt. Wie anschließend in Kapitel 5.2.2 gezeigt sind die Ursachen für die spektrale Verschiebung der QW-Lumineszenz unterschiedliche Einbaueffizienzen und verschiedene Wachstumsraten vom InGaN auf den semi-polaren und non-polaren Facetten. Im weiteren können nanoskopische Potentialfluktuationen des Bandverlaufs die Rekombinationskinetik des Quantenfilms stark beeinflussen und eine Verbreiterung der Lumineszenz bewirken. So führen vor allem Indium-Konzentrationsfluktuationen wie auch QW-Dickenfluktuationen zu einer örtlichen Modulation des Bandverlaufs [61, 241, 242]. Da die Fluktuationen statistisch verteilt sind, resultiert aus der Superposition einer Vielzahl lokalisierter Exzitonen eine Gauss-förmige Verbreiterung der Emission. In diesem Kapitel soll zuerst der Einfluss der Facetten-Orientierung auf die Quantenfilm-Emission untersucht werden bevor in Kapitel 6 die Auswirkung von Potentialfluktuationen innerhalb des Quantenfilms näher analysiert wird.

5.2.2 Einfluss der Facetten-Orientierung auf die InGaN-Quantenfilm-Lumineszenz

Die detaillierte Korrelation der Lumineszenzmechanismen mit der Realstruktur einzelner Mikrosäulen soll hier an einem örtlich höher aufgelösten Mapping auf Submikrometer-Skala stattfinden. In Abb. 5.12 ist das (a) Sekundärelektronenbild, (b) das Intensitäts- wie auch (c) das Wellenlängenbild von drei Mikrosäulen vergleichend gegenübergestellt. Die drei Mikrosäulen erscheinen im SEM-Bild (Abb. 5.12(a)) auf der planaren Pufferstruktur in einem helleren Kontrast.

Auffällig ist, dass das integrale CL-Intensitätsbild in Abb. 5.12(b) eine differenzierte Intensitätsverteilung als die zuvor in Kapitel 5.1 diskutierten Si-dotierten GaN-Mikrosäulen ohne InGaN-QW zeigt. Die panchromatische CL-Intensität von den non-polaren Seitenfacetten der Mikrosäulen ist um mehr als eine Größenordnung höher als die Emission vom planaren GaN-Puffer. Ursache hierfür ist die Veränderung der Wachstumsparameter für die aktive Zone. Anders als während des dreidimensionalen Wachstums der GaN-Säulen wird für die Deposition der Mantel-Schichten der Silan-Fluss deutlich reduziert und das V/III-Verhältnis erhöht. Unter diesen Bedingungen werden weniger Punktdefekte in den Mantel-Schichten inkorporiert, sodass die durch den Elektronenstrahl erzeugten Überschussladungsträger zum Quantenfilm diffundieren und dort strahlend rekombinieren können.

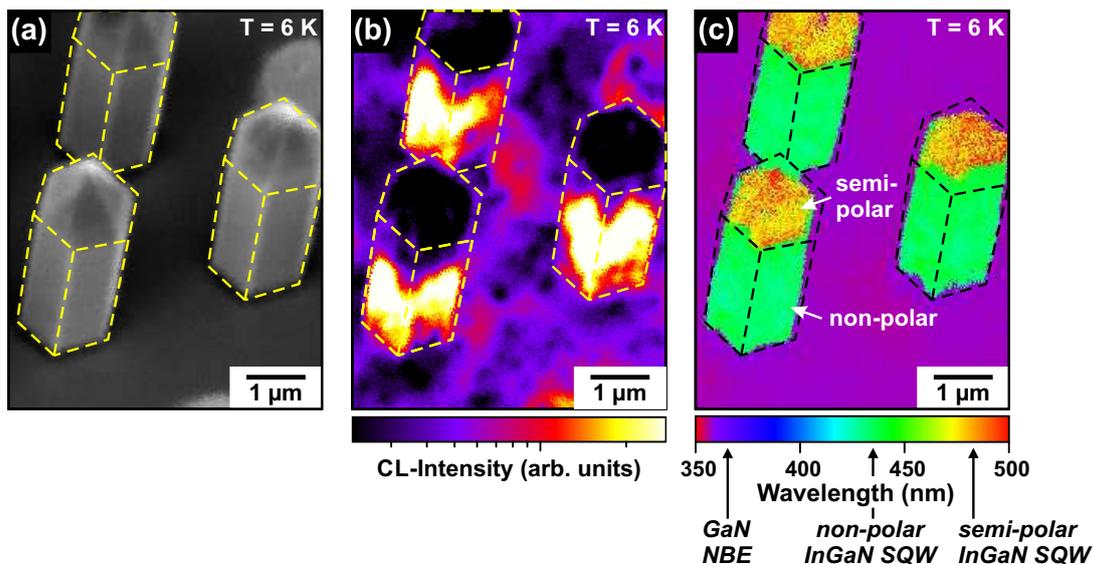


Abbildung 5.12: SEM-CL-Mapping bei $T = 6$ K von drei einzelnen InGaN/GaN-Mikrosäulen: (a) Sekundärelektronenbild, (b) integrales Intensitätsbild und (c) Wellenlängenbild.

Entlang der $[0001]$ -Richtung der Mikrosäule wird eine Reduktion der Lumineszenzintensität detektiert. Grund hierfür könnte eine erhöhte Anzahl an Defekten im oberen Bereich der Mantel-Schicht sein, die erzeugte freie Ladungsträger einfangen und als nicht-strahlende Rekombinationszentren wirken. Betrachtet man die semi-polaren $\{1\bar{1}01\}$ - und $\{1\bar{1}02\}$ -Facetten der Mikrosäulenspitze, wird auch hier eine deutlich niedrigere Quantenausbeute im Vergleich zur non-polaren Oberfläche beobachtet. Das Wellenlängenbild im Spektralbereich von 350 - 500 nm visualisiert eine sehr markante Verteilung der Emissionswellenlängen. Wie auch für die Referenzstruktur in Kap. 5.1 beobachtet, tritt im Gebiet der Pufferschicht ausschließlich die bandkanten nahe Emission bei 356 nm als dominanter Rekombinationskanal auf (lila Kontrast). Auf den Mikrosäulen dominiert die InGaN-QW-Emission, wobei sich

hier ein deutlicher Unterschied zwischen den non- und semi-polaren Facetten zeigt. Von Säule zu Säule sind nur sehr kleine Unterschiede zwischen den Emissionscharakteristika zu beobachten. Wie eingehend erwähnt, lässt sich deshalb daraus schlussfolgern, dass der Grund für die große Halbwertsbreite im orts-integralen Spektrum nicht in einer inhomogenen Ensembleverbreiterung liegt. Viel mehr tritt schon bei einzelnen Mikrosäulen eine breite Emissionsbande auf.

So weisen die non-polaren Seitenfacetten ein Emissionsmaximum des InGaN-QWs bei 432 nm (grüner Kontrast) auf, wohingegen auf den semi-polaren Facetten eine rotverschobene InGaN-Lumineszenz zwischen 470 - 500 nm beobachtbar ist (gelb-roter Kontrast). Die verschiedenen Emissionswellenlängen des InGaN-QWs sind bereits ein Hinweis darauf, dass ein Unterschied innerhalb der Schichtdicken und Indiumkonzentrationen auf den $\{1\bar{1}00\}$ -, $\{1\bar{1}01\}$ - und $\{1\bar{1}02\}$ -Seitenfacetten vorliegt. Eine Veränderung der Verspannung beim Wachstum von InGaN auf non-polare und semi-polare Oberflächen führt tendenziell zu einer kleineren spektralen Verschiebung und kann die unterschiedliche Emissionscharakteristik alleine nicht erklären.

Zusätzlich muss der Einfluss der inhärenten Polarisationsfelder auf den semi-polaren Facetten berücksichtigt werden. Wie in Kapitel 2.2 einleitend diskutiert führen Polarisationsfelder zu einer Verkipfung von Leitungs- und Valenzband und konsequenterweise zu einer örtlichen Separation von Elektron- und Lochwellenfunktion, wodurch eine Rotverschiebung der InGaN-QW-Emission auftritt. Gleichzeitig damit verbunden ist eine Abnahme der Oszillatorstärke, sodass die Reduzierung der Übergangswahrscheinlichkeit eine Verringerungen der internen Quantenausbeute als Folge hat.

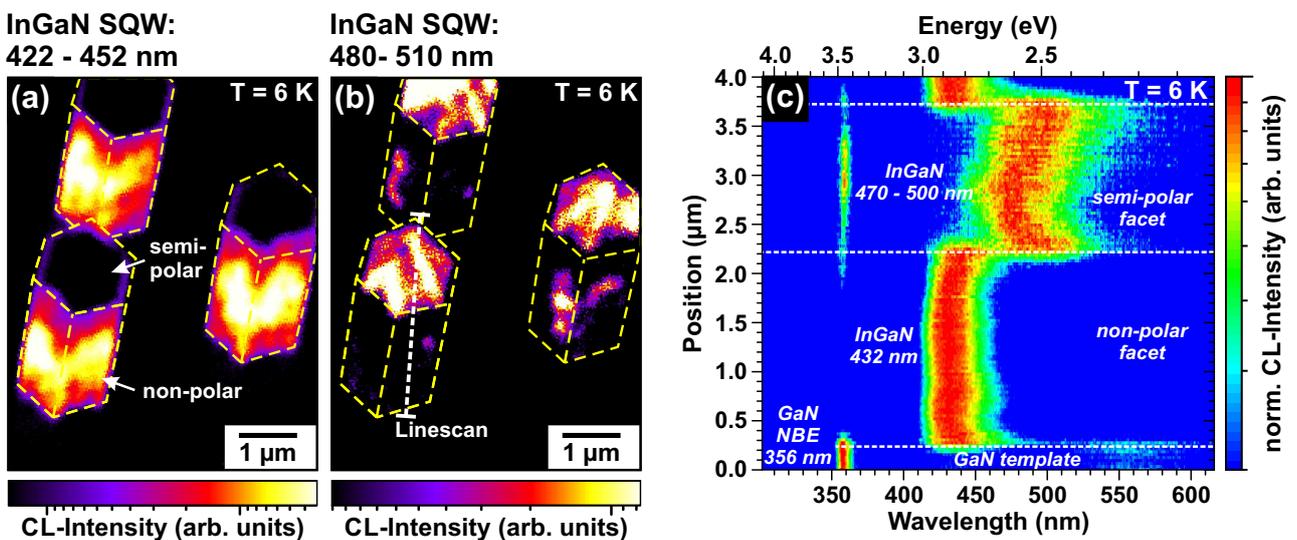


Abbildung 5.13: Monochromatische Intensitätsbilder der InGaN-QW-Emission im Wellenlängenbereich von (a) 422 - 452 nm und (b) 480 - 510 nm; (c) CL-Linescan vom GaN-Puffer über die komplette InGaN/GaN-Mikrosäule zur Spitze bei $T = 6$ K.

Einen tieferen Einblick in die örtliche Verteilung der einzelnen Rekombinationskanäle geben die in Abb. 5.13(a,b) dargestellten monochromatischen Intensitätsbilder der QW-Lumineszenz. Im CL-Intensitätsbild des InGaN-QW im Spektralbereich von 422 nm bis 452 nm findet ausschließlich eine Emission von den $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenoberflächen der Mikrosäulen statt, nicht jedoch von den semi-polaren Facetten der Spitze. Die InGaN-QW-Emission weist auf den non-polaren Facetten jedoch deutli-

che Inhomogenitäten auf, verbunden mit einer Reduktion der Lumineszenzintensität in Richtung der Spitze. Das CL-Intensitätsbild des InGaN-QW im Wellenlängenbereich von 480 nm bis 510 nm (siehe Abb. 5.13(b)) weist eine eindeutige Antikorrelation zur kurzwelligeren InGaN-Lumineszenz auf. Der langwelligere Lumineszenz-Beitrag des InGaN-QW tritt ausschließlich auf den semi-polaren Facetten auf. Ein vergleichbares Emissionsverhalten von ortsselektiv gewachsenen MOVPE-Mikrosäulen wird auch in der Literatur berichtet [243–245].

Die spektrale Entwicklung der InGaN-Emission entlang einer einzelnen Mikrosäule ist im CL-Linescan in Bild 5.13(c) gezeigt. Im Linescan ist die normierte Intensität an der zugehörigen spektralen Position in Falschfarben und in Abhängigkeit von der Position abgebildet. Im Bereich von $x = 0 - 0,25 \mu\text{m}$ befindet sich der Elektronenstrahl noch auf der Pufferstruktur. Wie zu erwarten, emittiert der GaN-Puffer die bandkantennahe Lumineszenz bei 356 nm.

Wird nun der Elektronenstrahl entlang der non-polaren Oberfläche gerastert, wird die Lumineszenz vom InGaN-QW bei 432 nm detektiert. Die Auswertung der lokalen Spektren offenbart bereits auf Submikrometer-Längenskala eine vergleichsweise große Halbwertsbreite der QW-Lumineszenz von $\text{FWHM} = 200 \text{ meV}$. Daraus lässt sich schlussfolgern, dass die hier ermittelte lokale Halbwertsbreite bereits ein Maß für die Größe der Potentialfluktuationen des Quantenfilms ist. Wie später in Kapitel 6.1.1 gezeigt, führen lokale Indium-Konzentrationschwankungen innerhalb des non-polaren Quantenfilms zu einer deutlichen Verbreiterung der Emissionslinie. Entlang der $\{1\bar{1}00\}$ -Oberfläche bis zu einer Höhe von $x = 1,8 \mu\text{m}$ ist die spektrale Position der QW-Lumineszenz unverändert. Ab $x = 1,8 \mu\text{m}$ wird jedoch eine leichte Rotverschiebung der InGaN-Emission zu 440 nm beobachtet. Eine Ursache für die spektrale Verschiebung könnte sowohl eine leichte Zunahme der QW-Dicke wie auch der mittleren Indiumkonzentration sein (siehe Kap. 6.1.1).

Während des Wechsels von der $\{1\bar{1}00\}$ - zur $\{1\bar{1}01\}$ -Facette bei $x = 2,2 \mu\text{m}$ tritt ein abrupter Sprung in der Emissionswellenlänge des InGaN QW um $\Delta\lambda \approx 50 \text{ nm}$ zu längeren Wellenlängen bis auf 492 nm auf. Dies verdeutlicht, dass auf Grund der verschiedenen Wachstumsraten und Einbaueffizienzen auf der non- und semi-polaren Oberfläche zwei disjunkte Emissionsbereiche existieren. Die Auswertung lokaler Spektren aus dem Bereich der Spitze zeigt zudem eine deutliche Vergrößerung der Halbwertsbreite der QW-Lumineszenz zu $\text{FWHM} = 380 \text{ meV}$.

Hochortsaufgelöste STEM-CL-Analyse der Mikrosäule im Querschnitt

Zur Analyse der morphologischen Struktur und Materialqualität der InGaN/GaN-Mantel-Schichten wurden weiterführende STEM- und STEM-CL-Untersuchungen angefertigt. In Abb. 5.14(a) ist eine STEM-Aufnahme einer Mikrosäule im HAADF-Kontrast entlang der $[11\bar{2}0]$ -Richtung gezeigt. Wie auch für die GaN-Mikrosäulen in Kapitel 5.1.2 berichtet, treten nur im Fußbereich vereinzelt Versetzungen auf die zu den non-polaren Oberflächen abknicken, sodass die Mikrosäule im oberen Bereich frei von Versetzungen ist.

Ausgehend vom GaN-Kern ist im STEM-Bild die komplette Schichtabfolge der Mantel-Struktur sichtbar. Da die Intensität der Streukontraste in der Weitwinkelstreuung proportional zur effektiven Ordnungszahl des Materials ist, erscheint der InGaN-Quantenfilm in der HAADF-Aufnahme als hellerer Kontrast als das umgebende GaN-Barrierenmaterial. Die strukturelle STEM-Analyse beweist, dass die Mantel-Schichten (AlGaIn, GaN und InGaIn) auf die komplette dreidimensionale Struktur abge-

schieden wurden. Die Schichtabfolge innerhalb des Säule erscheint homogen mit glatten Grenzflächen und hoher Materialqualität.

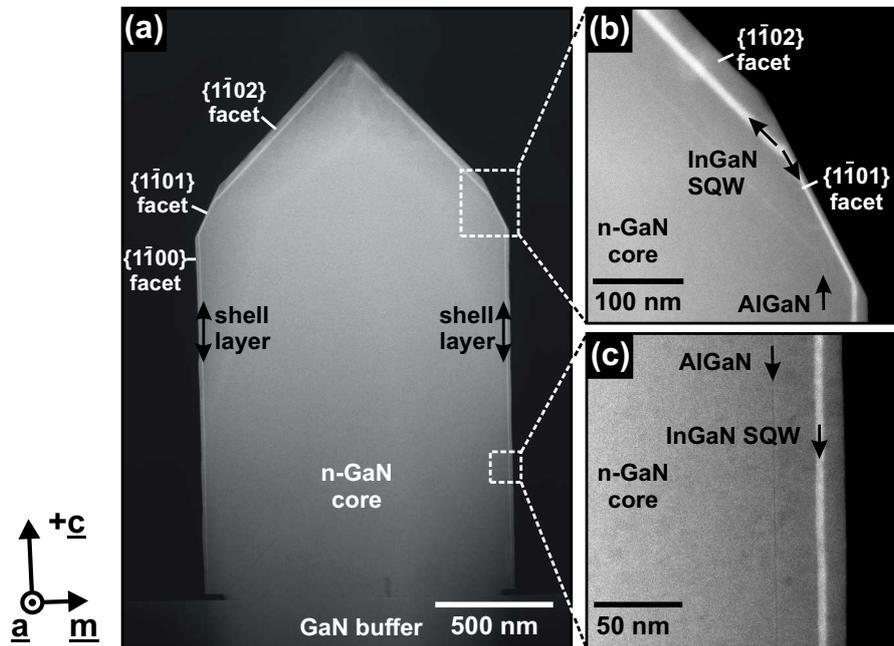


Abbildung 5.14: STEM-Aufnahmen im HAADF-Kontrast in $[11\bar{2}0]$ -Richtung: (a) komplette Mikrosäule; (b) Detailaufnahmen der semi-polar gewachsenen Mantel-Schichten sowie (c) der non-polar gewachsen Mantel-Schichten.

Deutlich erkennbar ist der Wechsel der kristallographischen Oberflächenorientierung von den non- zu den semi-polaren Ebenen. In Übereinstimmung mit den SEM-Untersuchungen lassen sich aus den Winkelorientierungen der Oberflächen zur c -Richtung die Indizes der semi-polaren Facetten im Bereich der Spitze bestimmen. Im unteren Bereich der Spitze bildet sich über eine Länge von 175 nm die $\{1\bar{1}01\}$ -Facette aus. Die Länge der $\{1\bar{1}02\}$ -Facette wurde zu 600 nm bestimmt. Ursache für den teilweisen Übergang von der $\{1\bar{1}02\}$ - auf die $\{1\bar{1}01\}$ -Kristallebene ist der Wechsel von dreidimensionalen auf zweidimensionale Wachstumsbedingungen.

Tabelle 5.1: Schichtdicke des InGaN-QW und äußeren GaN-Schicht, Peakwellenlänge der InGaN-Lumineszenz λ_{peak} (aus STEM-CL-Messungen) und die aus den Simulationen bestimmte Indiumkonzentration für die jeweilige Oberflächenorientierung:

Facette	InGaN-QW	GaN-Deckschicht	λ_{peak}	In-Konzentration
$\{1\bar{1}00\}$	$(6,1 \pm 0,8)$ nm	$(13,3 \pm 0,8)$ nm	440 nm	$(21 \pm 2)\%$
$\{1\bar{1}01\}$	$(3,8 \pm 0,8)$ nm	$(5,4 \pm 0,8)$ nm	517 nm	$(35 \pm 2)\%$
$\{1\bar{1}02\}$	$(11,1 \pm 0,8)$ nm	$(25,7 \pm 0,8)$ nm	498 nm	$(12 \pm 2)\%$

In Abb. 5.14(b) und (c) sind Detailaufnahmen der Mantel-Schichten aus dem mittleren Bereich der Seite und dem unteren Bereich der semi-polaren Facette dargestellt. Die STEM-Aufnahmen belegen, dass sowohl für die GaN-Deckschicht wie auch für den InGaN-Quantenfilm eine eindeutige Änderung

der Schichtdicke auf der $\{1\bar{1}00\}$ -, $\{1\bar{1}01\}$ - und $\{1\bar{1}02\}$ -Kristalloberfläche auftritt. In Tabelle 5.1 sind die Schichtdicken der äußeren GaN-Deckschicht und des InGaN-Quantenfilms auf den verschiedenen Facetten zusammengefasst.

In Übereinstimmung mit der Literatur sind die Wachstumsraten der GaN-Schicht und des InGaN-QW auf der $\{1\bar{1}01\}$ -Oberfläche deutlich niedriger als auf der non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Oberfläche [23, 246]. Demgegenüber wird die höchste Wachstumsrate unter den hier gewählten Epitaxiebedingungen auf der $\{1\bar{1}02\}$ -Oberfläche beobachtet.

Das Vorhandensein unterschiedlicher Facetten-Typen kann zur Folge haben, dass die Wachstumskinetik einer Facette direkt durch eine benachbarte Facette beeinflusst werden kann. Wie von Fang *et al.* berichtet ist die Ursache für diese Oberflächen-Migrations-Prozesse eine unterschiedliche Lebensdauer der Adatome auf verschiedenen kristallographischen Facetten [247]. Konkurrierende Wachstumsmechanismen auf den $\{1\bar{1}00\}$ -, $\{1\bar{1}01\}$ - und $\{1\bar{1}02\}$ - Facetten können so zu unterschiedlichen QW-Dicken und In-Konzentration beitragen [248, 249]. Vergleichbare Resultate berichten auch Yeh *et al.* und Liao *et al.* an selektiv gewachsenen Nanostrukturen [250, 251] bzw. Wunderer *et al.* für μm -große GaN-Streifenstrukturen [252].

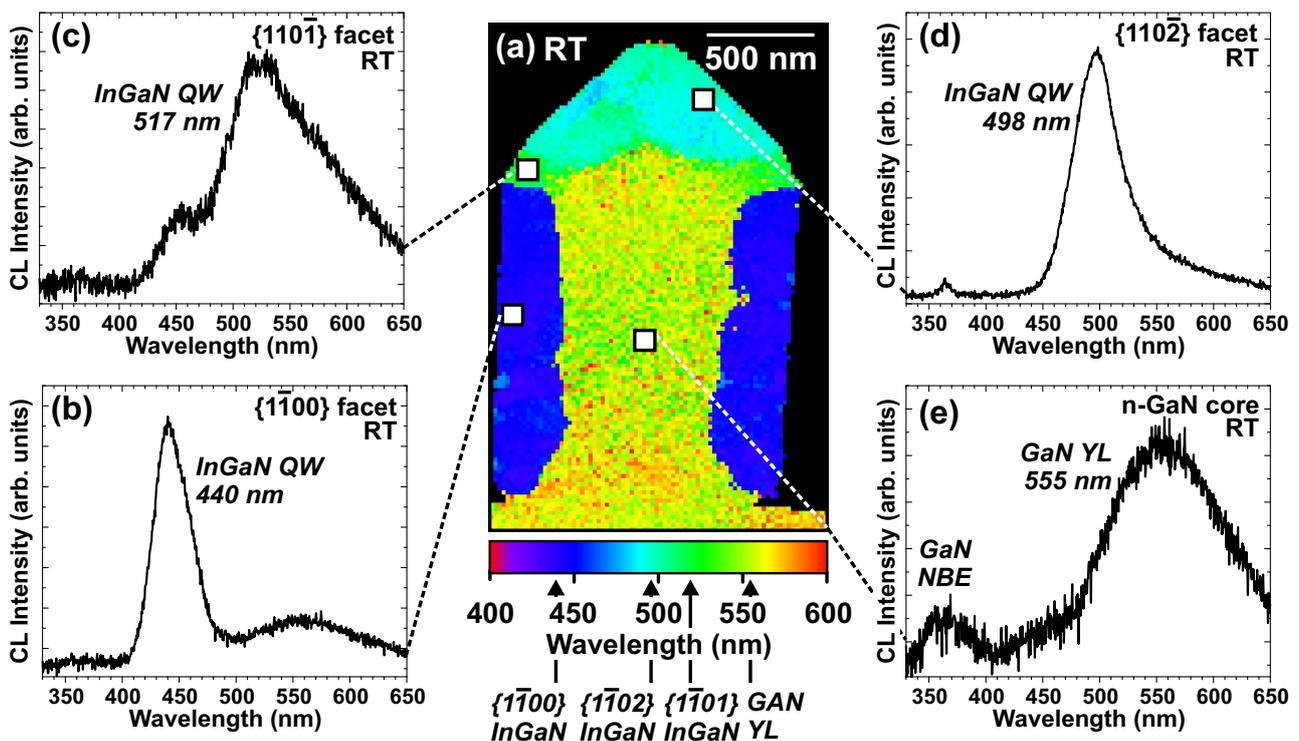


Abbildung 5.15: (a) STEM-CL Wellenlängenbild der InGaN/GaN-Mikrosäule im Querschnitt; (b) - (d) lokale Spektren vom InGaN-QW auf den verschiedenen Kristalloberflächen und (d) aus dem GaN-Kern.

Um die Auswirkung der QW-Dicke und der In-Konzentration in Abhängigkeit von der Facetten-Orientierung näher zu charakterisieren ist in Abb. 5.15(a) die zum STEM-Bild (Abb. 5.14) korrespondierende CL-Wellenlängenverteilung im Querschnitt gezeigt. Die STEM-CL-Untersuchungen wurden bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und einem einem Strahlstrom von 270 pA bei Raumtemperatur durchgeführt. Im inneren Bereich der Struktur, dem Si-dotierten GaN-Kern,

dominiert die gelbe Defekt-Lumineszenz bei 555 nm (siehe auch lokales Spektrum 5.15(e)). Dies unterstützt die Ergebnisse der CL-Untersuchungen in Kapitel 5.1 an den Si-dotierten GaN-Mikrosäulen ohne Mantel-Schicht.

Auf beiden $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten wird eine homogene Lumineszenz des InGaN-QW bei 440 nm emittiert (siehe auch lokales Spektrum 5.15(b)). Die Änderung der Oberflächenorientierung von non-polar zu semi-polar wird deutlich am Sprung der Peakwellenlänge sichtbar. Vom $\{1\bar{1}01\}$ -orientierten InGaN-Quantenfilm wird eine Emission bei 517 nm detektiert. Im Vergleich dazu zeigt sich wiederum eine blauverschobene Emission bei 498 nm vom $\{1\bar{1}02\}$ -orientierten Quantenfilm.

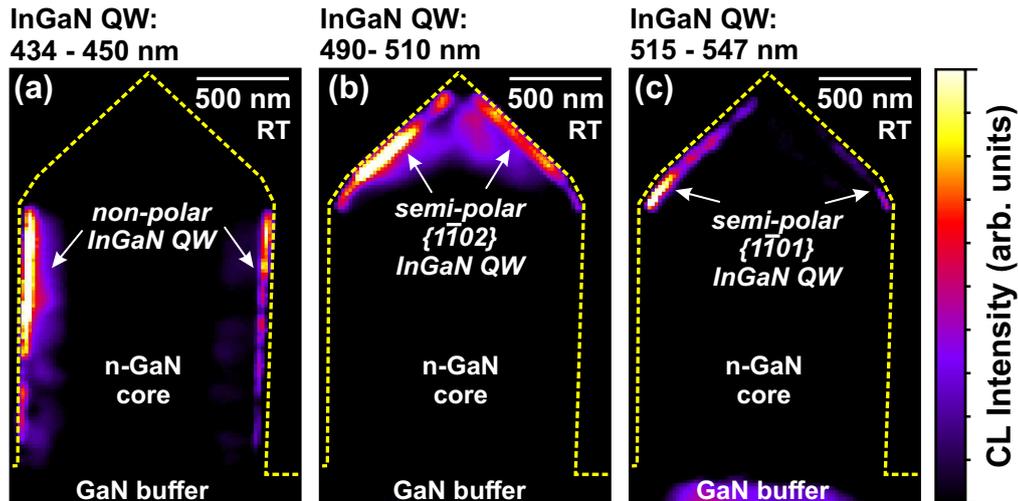


Abbildung 5.16: CL-Intensitätsbilder des Quantenfilm-Lumineszenz im Spektralbereich von: (a) 434 - 450 nm; (b) 490 - 510 nm und (c) 515 - 547 nm.

Die Intensitätsverteilung der QW-Lumineszenz auf den non- und semi-polaren Facetten ist in Abb. 5.16 vergleichend gegenübergestellt. Im kurzwelligen Wellenlängenbereich von 434 - 450 nm tritt ausschließlich eine Emission von den non-polaren Seitenwänden auf. Durch Ladungsträgerdiffusion gelangen die generierten Exzitonen bereits aus der GaN-Mantel-Schicht zum Quantenfilm, sodass eine Zunahme der Intensität in Richtung des QW detektiert wird. Ausgehend vom InGaN-QW nimmt die Intensität zu den Oberflächen wiederum auf Grund von nicht-strahlenden Oberflächenrekombinationen ab. Im Spektralbereich von 490 - 510 nm tritt exklusiv eine InGaN-QW-Emission von den $\{1\bar{1}02\}$ -Facetten auf. Demgegenüber wird von den $\{1\bar{1}01\}$ -Facetten eine rotverschobene InGaN-Lumineszenz zwischen 515 - 547 nm detektiert.

Mit Hilfe der erhaltenen QW-Dicken aus den STEM-Messungen wurde die Übergangsenergie des Grundzustands durch die numerische Lösung der Poisson- und Schrödinger-Gleichung mit der Simulationssoftware **TiberCAD** für die non- und semi-polaren Orientierungen berechnet (Elektronen-Loch-Wechselwirkung vernachlässigt) [253]¹. Abbildung 5.17(a) zeigt den Einfluss der Indiumkonzentration auf die Übergangsenergie bei konstanter QW-Dicke für die verschiedenen kristallographischen Facetten. Mit zunehmender Indiumkonzentration verschiebt die Übergangsenergie für alle drei Fälle zu längeren Wellenlängen. Die durch die Polarisationsfelder verursachte Bandverkipfung führt für die semi-polaren Quantenfilme zu einer zusätzlichen Rotverschiebung des Emissionsspektrums. Da

die Auswirkung des QCSE mit zunehmender Schichtdicke des Quantenfilms stärker wird, ist dieser Effekt besonders für den dicken InGaN-Quantenfilm auf der $\{1\bar{1}02\}$ -Facette ausgeprägt.

Aus dem Vergleich der Simulationsergebnisse mit den CL-Peakwellenlängen (Abb. 5.15) lässt sich in erster Näherung eine Indiumkonzentration von $(21 \pm 2)\%$ für den non-polaren InGaN-QW abschätzen. Der auf der semi-polaren $\{1\bar{1}02\}$ -Oberfläche gewachsene InGaN-QW weist hingegen einen deutlich niedrigeren Indiumgehalt von $(12 \pm 2)\%$ auf. Aus dem Verhältnis zwischen den Schichtdicken und der Indiumkonzentration auf der $\{1\bar{1}02\}$ - und $\{1\bar{1}00\}$ -Facette lässt sich ableiten, dass die absolute Menge des verbauten Indiums nahezu gleichbleibend ist. Für den dünnsten InGaN-QW auf der $\{1\bar{1}01\}$ -Facette folgt aus den Simulationen eine deutlich erhöhte Indiumkonzentration von $(35 \pm 2)\%$. Potentialfluktuationen durch nanoskopische Kompositionsveränderungen wurden in den Berechnungen nicht berücksichtigt, sodass die erhaltenen Werte ein oberes Maß für den mittleren Indiumgehalt im QW darstellen.

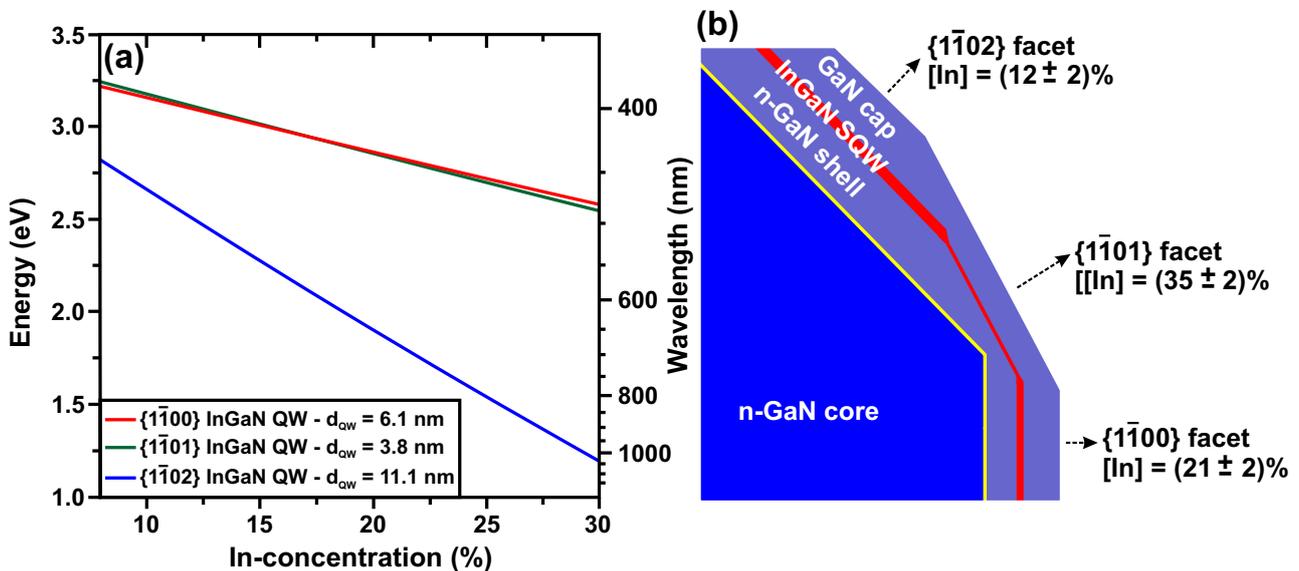


Abbildung 5.17: (a) Übergangsenergie des InGaN-Quantenfilms bei fester Schichtdicke in Abhängigkeit von der Indiumkonzentration für verschiedene Oberflächenorientierungen; (b) schematisches Wachstumsmodell des InGaN-QW auf der Mikrosäule.

Aus den STEM- und CL-Untersuchungen wurde in Abb. 5.17(b) ein schematisches Modell zum Wachstum des InGaN-Quantenfilms auf der Mikrosäulenoberfläche abgeleitet. Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass die Ausbildung unterschiedlicher Facetten-Typen auf der Mikrosäule die Wachstumskinetik des InGaN-QWs und damit die QW-Dicke, Komposition und Emissionscharakteristik maßgeblich beeinflusst.

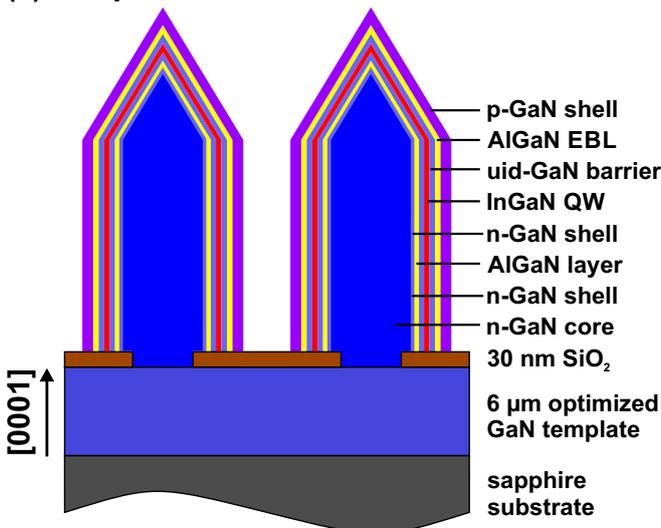
¹Die Berechnung der Übergangsenergien mit TiberCAD wurden von Steffen Westerkamp an der TU Berlin durchgeführt.

5.3 InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED

Aufbauend auf den Ergebnissen der InGaN/GaN-Mikrosäulen in Kapitel 5.2 werden in diesem Abschnitt mikroskopische Lumineszenzcharakterisierungen von coaxialen Mikrosäulen-LEDs mit Hilfe der Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop diskutiert.

Als Basis für die LED dienen wiederum n-dotierte GaN-Mikrosäulen. Um eine hohe Grenzflächenqualität zwischen Kern- und Mantel-Schichten zu erhalten, wurden auf die Mikrosäulen eine GaN-Anpassungsschicht und ein AlGaN-Film unter erhöhten V-III-Verhältnis (angepasst für das zweidimensionale Schichtwachstum) abgeschieden [89]. Anschließend daran wurde eine GaN-Mantel-Schicht mit einer nominellen n-Dotierung von $N_D = 2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ auf die Säulen gewachsen (siehe Abb. 5.18(a)). Auf die n-GaN-Seite folgt die aktive Zone, bestehend aus einem Einfach-InGaN-Quantenfilm, und eine äußere nominell undotierte GaN-Barriere. Als äußere Mantel-Schicht schließen ein AlGaN-Film als Elektronenbarriere (engl. *electron blocking layer* — EBL) und eine Magnesium-dotierte p-GaN-Schicht die Struktur ab. Die Wachstumsparameter für die Kern- und Mantel-Schichten sind nominell identisch zu den Proben in Kapitel 5.1 und 5.2. Die äußere AlGaN-EBL und p-GaN-Schicht wurden bei einer Temperatur von 950°C abgeschieden.

(a) sample structure



(b) active zone band structure

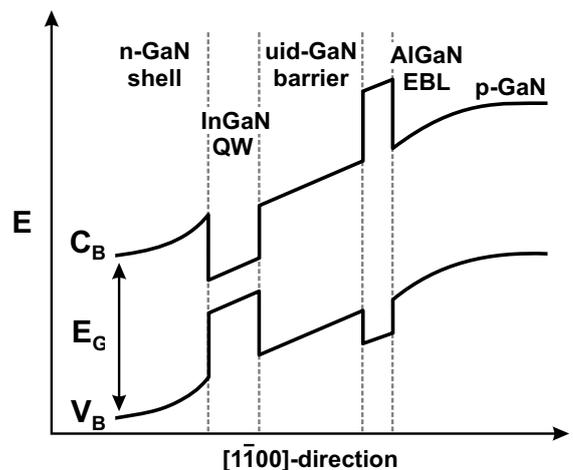


Abbildung 5.18: (a) Schematischer Probenaufbau der InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED; (b) Bandstruktur der aktiven Zone mit n-GaN-Schicht, InGaN-QW, AlGaN-EBL und p-GaN-Deckschicht.

Die Bandstruktur der aktiven Zone der Leuchtdiode ist schematisch in Bild 5.18(b) dargestellt. Der AlGaN-EBL stellt eine Potenzialbarriere für die Ladungsträger dar, sodass die in der inneren n-GaN-Schicht generierten Elektronen nicht in das p-Gebiet diffundieren können. Dementsprechend wird eine unerwünschte Ladungsträgerrekombinationen außerhalb der aktiven Zone minimiert.

5.3.1 Elektronenmikroskopische Untersuchungen der coaxialen Mikrosäulen-LED

Die SEM-Übersichtsaufnahme der Probenoberfläche in Abb. 5.19(a) belegt ein homogenes Wachstum der dreidimensionalen LED-Strukturen mit einer Dichte von $5 \cdot 10^6$ Säulen/ cm^2 . Die morphologischen

Untersuchungen beweisen eine hohe Uniformität der Säulen in Bezug auf Höhe und Durchmesser. Im Gegensatz zu den beiden vorhergehend untersuchten Proben ist die Morphologie der Mikrosäulen-LED jedoch leicht verändert. Die Höhe der Mikrosäulen beträgt rund $4 \mu\text{m}$, der Durchmesser bemisst sich zu $2,5 \mu\text{m}$. Die zusätzlichen coaxialen Mantel-Schichten haben zur Folge, dass die Säulen sowohl höher als auch breiter werden. Betrachtet man eine einzelne Mikrosäule (Abb. 5.19(b)), erkennt man deutlich, dass die Seitenfacetten nicht senkrecht zur Oberfläche verlaufen. Wie die TEM-Untersuchungen im Querschnitt in Abb. 5.20 offenbaren, ist dies auf einen Dickengradienten der Mg-dotierten Deckschicht entlang der $[0001]$ -Richtung zurückzuführen. Von der Basis der Säule bis zum Übergang zu den semi-polaren Facetten nimmt die Dicke der p-GaN-Schicht um rund 100 nm ab. Verglichen mit der Referenzstruktur (Kap. 5.1) wie auch den InGaN/GaN-Mikrosäulen (Kap. 5.2) zeigt die pyramidale Spitze der LED-Struktur eine andere Orientierung der Facetten. Während des Wechsels der Wachstumsparameter für die GaN-Anpassungsschicht findet ein Übergang von der $\{1\bar{1}02\}$ - auf die $\{1\bar{1}01\}$ -Facette an der Spitze statt [89].

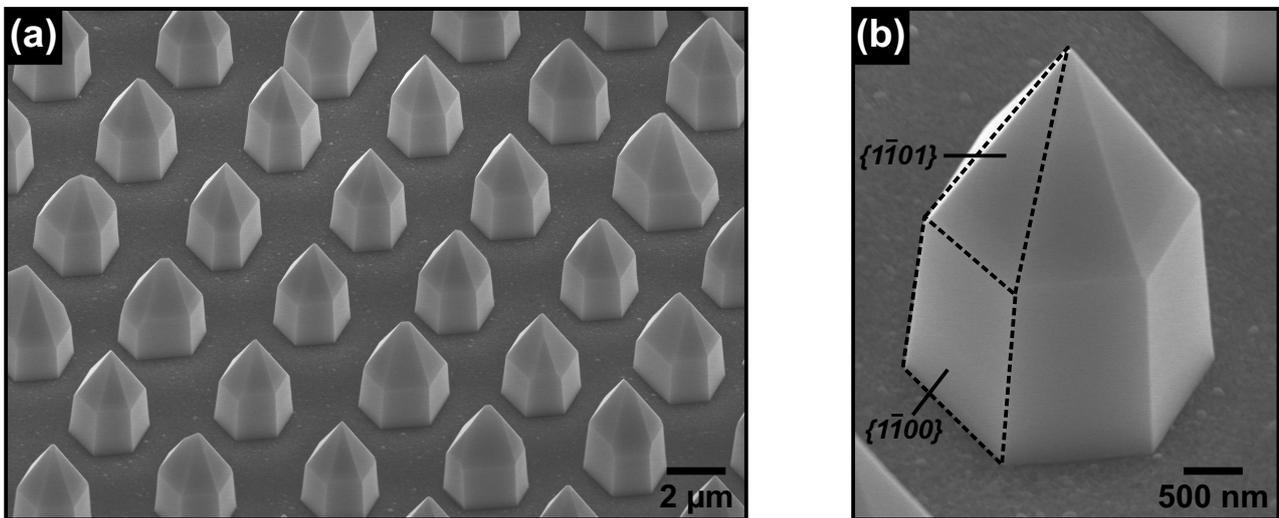


Abbildung 5.19: (a) Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme der ortsselektiv gewachsenen InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED; (b) Vergrößertes SEM-Bild einer einzelnen Mikrosäule.

Eine STEM-Aufnahme vom Querschnitt einer kompletten Mikrosäule entlang der $[11\bar{2}0]$ -Richtung ist in Abbildung 5.20(a) dargestellt. In der Hellfeld-Aufnahme ist sichtbar, dass das anfängliche, selektive GaN-Wachstum zur Entstehung einer hexagonalen Nukleationspyramide mit $\{1\bar{1}02\}$ -Seitenflächen in den SiO_2 -Lochmasken führt (im Bild gekennzeichnet). Anschließend an die Ausbildung der Nukleationspyramide findet ein vertikales Wachstum entlang der $[0001]$ -Richtung statt, sodass die Höhe und Durchmesser des fertigen GaN-Kerns $3,2 \mu\text{m}$ und $1,1 \mu\text{m}$ betragen.

Im unteren Bereich der Mikrosäule treten vereinzelt dunklere Kontraste von Versetzungslinien im Hellfeld-Bild auf. Die Versetzungen verlaufen parallel zur Wachstumsrichtung aus der unterliegenden GaN-Pufferschicht durch das Loch in der SiO_2 -Schicht in die Mikrosäule. Wie auch für die vorherigen Proben beobachtet, knicken die Versetzungen im Fuß der Säule um 90° ab und verlaufen lateral entlang der $[1\bar{1}00]$ -Richtung zu den non-polaren Oberflächen, sodass der obere Bereich des GaN-Kerns frei von Versetzungen ist.

An der Grenzfläche zur inneren AlGaN-Schicht werden jedoch lokal neue Defekte generiert. Diese Defekte erscheinen in der Hellfeld-Aufnahme als dunklere Kontraste und verlaufen senkrecht zur [0001]-Richtung zu den Oberflächen der Säule und werden dort terminiert. In der gewählten STEM-Projektion können sowohl Teilversetzungen wie auch damit verbundene Basalflächenstapelfehler auftreten. Strukturelle TEM-Untersuchungen von Griffiths *et al.* bestätigten die Bildung von Basalflächenstapelfehlern in vergleichbaren koaxialen Kern-Mantel Strukturen [254]. Wie in der Literatur berichtet, führt das Wachstum von Mikrosäulen unter hohen Silan-Flüssen zur Ausbildung einer Si-reichen Passivierungsschicht, wie auch einer Aufrauung der Oberfläche des GaN-Kerns [70, 232, 255]. Beide Effekte können zur Nukleation neuer Defekte im Mantel-Bereich führen [99]. Zusätzlich kann die Formierung von Teilversetzungen und Stapelfehlern durch eine Spannungsrelaxation entlang der c-Richtung begünstigt werden [256, 257].

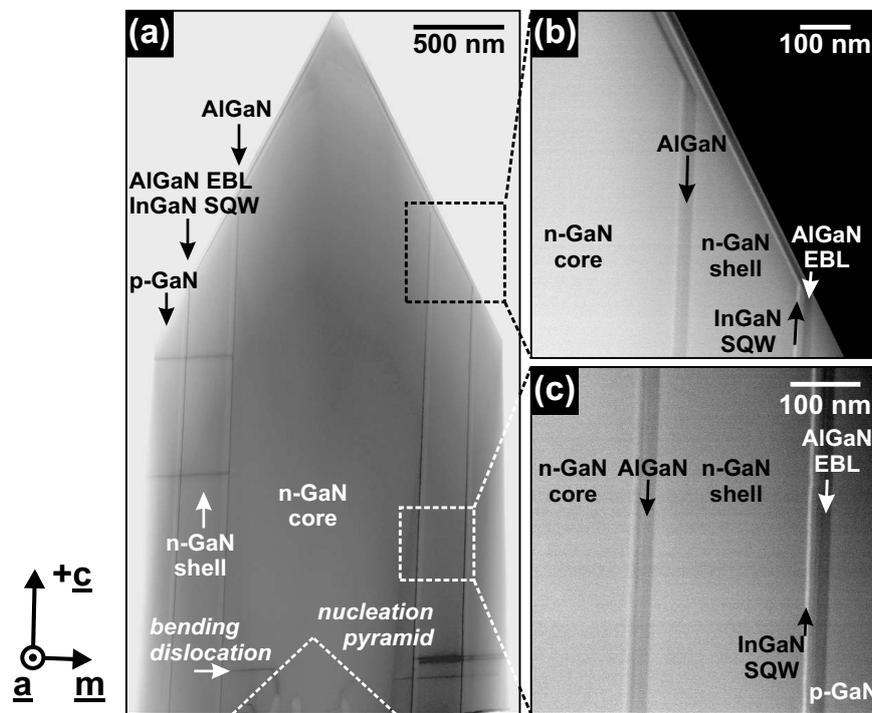


Abbildung 5.20: (a) STEM-Querschnittsaufnahme der gesamten Mikrosäule im Hellfeld-Kontrast; HAADF-Aufnahmen der Mantel-Schichten aus dem Gebiet der (b) semi-polaren und (c) non-polaren Facette.

In den STEM-HAADF-Aufnahmen in Abb. 5.20(b) und (c) ist die komplette Folge der koaxialen Mantel-Schichten klar zu erkennen. Die AlGaN-Schichten erscheinen aufgrund der geringeren mittleren Ordnungszahl als dunklerer Kontrast, bzw. der InGaN-Quantenfilm durch die größere mittlere Ordnungszahl als hellerer Kontrast im Vergleich zu GaN. Die Schichtdicke der inneren und äußeren AlGaN-Schicht auf der non-polaren Seitenwänden betragen (23 ± 1) nm und (16 ± 1) nm. Beide AlGaN-Schichten wurden nominell unter gleichen Bedingungen gewachsen. Jedoch führt die zunehmende Dicke der Mikrosäule zu einer vergrößerten Fläche, sodass bei gleicher Wachstumsdauer und gleichem Materialangebot die äußere AlGaN-Schicht folglich dünner sein muss. Sowohl an den Grenzflächen der inneren AlGaN-Schicht, wie auch der äußeren AlGaN-Schicht lässt sich

ein scharfer HAADF-Kontrastwechsel zum umgebenden GaN-Material erkennen. Im Weiteren belegt das HAADF-Bild ein homogenes Wachstum des InGaN-QW mit scharfen Grenzflächen zum umgebenden Barrierenmaterial und einer Schichtdicke von (6 ± 1) nm. Strukturelle Untersuchungen entlang der [0001]-Richtung weisen keinen Schichtdickengradienten des Quantenfilms auf. Demgegenüber verjüngt sich die äußerste Mg-dotierte GaN-Schicht vom unteren Fußbereich von (270 ± 5) nm auf (170 ± 5) nm vertikal entlang der c-Richtung, bevor die semi-polare Spitze beginnt. Wie von Schimpke *et al.* berichtet, könnte eine Ursache für den Dickengradienten eine geringe Gasphasen-Diffusion der Trägergase zwischen den Mikrosäulen beziehungsweise entlang der Mikrosäulen-Oberflächen sein [258]. Der Schichtdickengradient des p-dotierten GaN-Schicht hat im elektrischen Betrieb der Mikrosäulen-LED einen negativen Einfluss auf die Strominjektion in den Quantenfilm, da lokal eine Änderung der Stromdichte auftritt.

Tabelle 5.2: Oberflächenorientierung und dazugehörige Schichtdicke der Mantel-Schichten:

Facette	innere AlGaIn	n-GaN	InGaIn QW	äußere AlGaIn	p-GaN
{1 $\bar{1}$ 00}	(23 ± 1) nm	(215 ± 5) nm	(6 ± 1) nm	(16 ± 1) nm	$(270 - 170 \pm 5)$ nm
{1 $\bar{1}$ 01}	(11 ± 1) nm	(12 ± 1) nm	(4 ± 1) nm	(9 ± 1) nm	(3 ± 1) nm

Wie bereits in Kapitel 5.2.2 erläutert, bewirkt die Änderung der Oberflächenorientierung von der {1 $\bar{1}$ 00}- zur {1 $\bar{1}$ 01}-Facette eine Abnahme der Wachstumsraten unter den gewählten Epitaxiebedingungen. Dementsprechend sind die Schichtdicken der Mantel-Schichten auf den semi-polaren Oberflächen deutlich niedriger als auf den non-polaren Seitenfacetten. Die Dicken der coaxialen Mantel-Schichten sind in Tabelle 5.2 für die non- und semi-polare Oberflächenorientierung zusammenfassend gegenübergestellt.

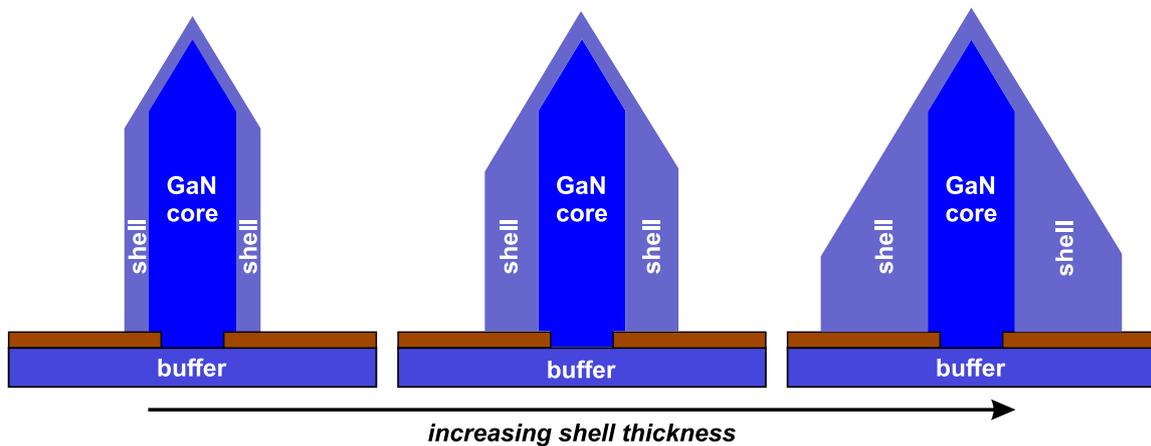


Abbildung 5.21: Veränderung der Mikrosäulengeometrie mit zunehmender Mantel-Dicke.

Die STEM-Untersuchungen an den mit Mantel-Schichten überwachsenen Mikrosäulen (Abb. 5.14 und 5.20) belegen, dass die unterschiedlichen Wachstumsraten auf den non- und semi-polaren Oberflächen die Form der Mikrosäulen grundlegend bestimmen. In Abb. 5.21 ist schematisch die Veränderung der Mikrosäulengeometrie mit fortschreitendem Mantel-Wachstum illustriert. Nach der Curie-Wulff-Regel wird die Form der Mikrosäule von der am langsamsten wachsenden Kristallfacette bestimmt [259].

Dies hat direkt zur Folge, dass mit wachsender Mantel-Dicke die semi-polare Wachstumsdomäne die Mikrosäulenoberfläche dominiert.

5.3.2 Mikroskopische Korrelation der Lumineszenzeigenschaften mit der kristallinen Realstruktur

Die Kathodolumineszenz-Untersuchungen im Rastertransmissionselektronenmikroskop am Querschnitt der InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED erfolgten bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und einem Strahlstrom von 270 pA bei Tieftemperatur ($T = 14$ K). In Abb. 5.22 ist das zur STEM-Aufnahme in Bild 5.20(a) korrespondierende orts-integrale STEM-CL Spektrum halblogarithmisch dargestellt. Vergleichend dazu ist das CL-Spektrum der GaN-Mikrosäulen mit InGaN-Quantenfilm aus Kapitel 5.2 abgebildet.

Das Spektrum der Mikrosäule mit coaxialer LED-Schicht zeigt einen intensiven Lumineszenzbeitrag des InGaN-Quantenfilm bei 435 nm mit einer Halbwertsbreite von $\text{FWHM} = 320$ meV. Das Emissionsmaximum und die Linienform der QW-Lumineszenz sind vergleichbar mit der Probe ohne äußere p-GaN-Schicht. Wiederum zeigt sich zu längeren Wellenlängen eine ausgeprägte niederenergetische Schulter der InGaN-Lumineszenz in Folge der rotverschobenen QW-Emission von den semi-polaren Facetten.

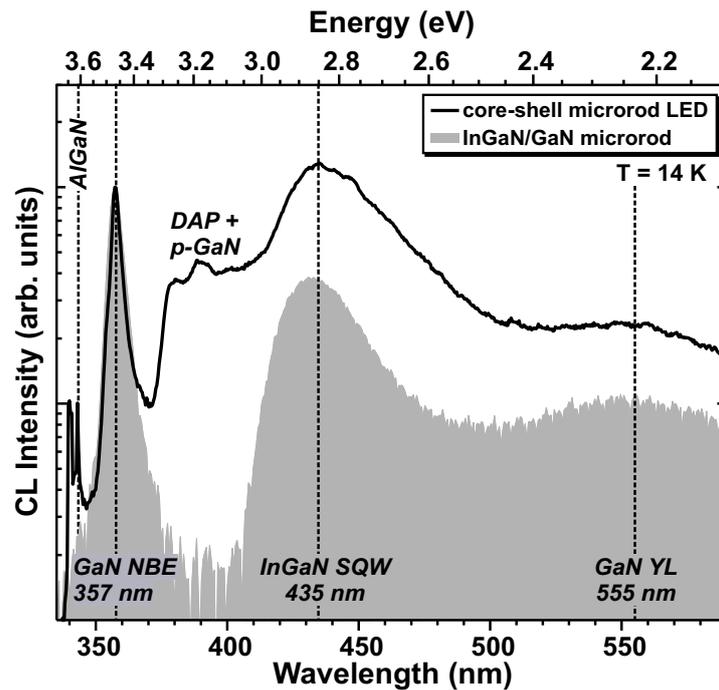


Abbildung 5.22: Orts-integrales STEM-CL-Spektrum einer einzelnen Mikrosäulen-LED-Struktur im Querschnitt bei $T = 14$ K (korrespondierende STEM-Aufnahme in Abb. 5.20(a)); vergleichend dazu ist das CL-Spektrum der GaN-Mikrosäulen mit InGaN-Quantenfilm aus Kap. 5.2 in grau hinterlegt (normiert auf die bandkantennahe Emission vom GaN).

Auf der hochenergetischen Seite der InGaN-Emission tritt zusätzlich zur Donator-Akzeptor-Paar-Rekombination (engl. *donor-acceptor pair* — DAP) bei 378 nm die blaue Defekt-Lumineszenz (engl. *blue luminescence* — BL) bei 400 nm auf. Typischerweise wird die blaue Defekt-Lumineszenz in

hoch Magnesium-dotierten GaN-Filmen beobachtet [260–264], sodass dieser Rekombinationskanal der äußersten p-dotierten GaN-Deckschicht zugeordnet werden kann.

Wie das nachfolgende CL-Wellenlängenbild in Abb. 5.23 beweist, stammt die bandkanten nahe Emission bei 357 nm von der inneren Si-dotierten Mantel-Schicht. Im Vergleich dazu ist gelbe Defekt-Lumineszenz bei 550 nm vom GaN-Kern um eine Größenordnung intensitätsschwächer. Im Spektrum treten zusätzlich zwei scharfe Emissionslinien der AlGaIn-Schichten bei 340 nm und 343 nm auf.

Eine lokale Zuordnung der Rekombinationskanäle mit der Realstruktur erfolgt in Abbildung 5.23 über ein STEM-CL-Mapping, aufgenommen bei $T = 14$ K. Gegenübergestellt ist (a) das panchromatische Intensitätsbild und (b) die Peakwellenlängenverteilung. In der Mitte ist der Si-dotierte GaN-Kern zu erkennen, auf den Seitenfacetten folgt darauf die Schichtreihenfolge aus AlGaIn, n-GaN-Mantel, InGaIn-Quantenfilm, AlGaIn-Elektronenbarriere und die äußerste p-GaN-Deckschicht. Die Korrelation des panchromatischen Intensitätsbildes und der dazugehörigen STEM-Aufnahme in Abb. 5.20 zeigt die höchste CL-Intensität in den koaxial gewachsenen Mantel-Schichten. Vom hoch Si-dotierten GaN-Kern wird eine um mehr als zwei Größenordnungen schwächere CL-Intensität detektiert. Wie für die Referenzprobe in Kapitel 5.1.2 erläutert, ist die Ursache für niedrige Quantenausbeute vom GaN-Kern eine hohe Dichte an nicht-strahlenden Punktdefekten.

Interessanterweise wird im Bereich der Nukleationspyramide eine intensivere Emission als vom Kern beobachtet. Auf dieses Verhalten soll im folgenden Kapitel 5.3.3 näher eingegangen werden. Versetzungen die aus dem unterliegenden GaN-Puffer in die Nukleationspyramide propagieren, führen dort als nicht-strahlende Rekombinationszentren zu einem lokalen Einbruch der CL-Intensität.

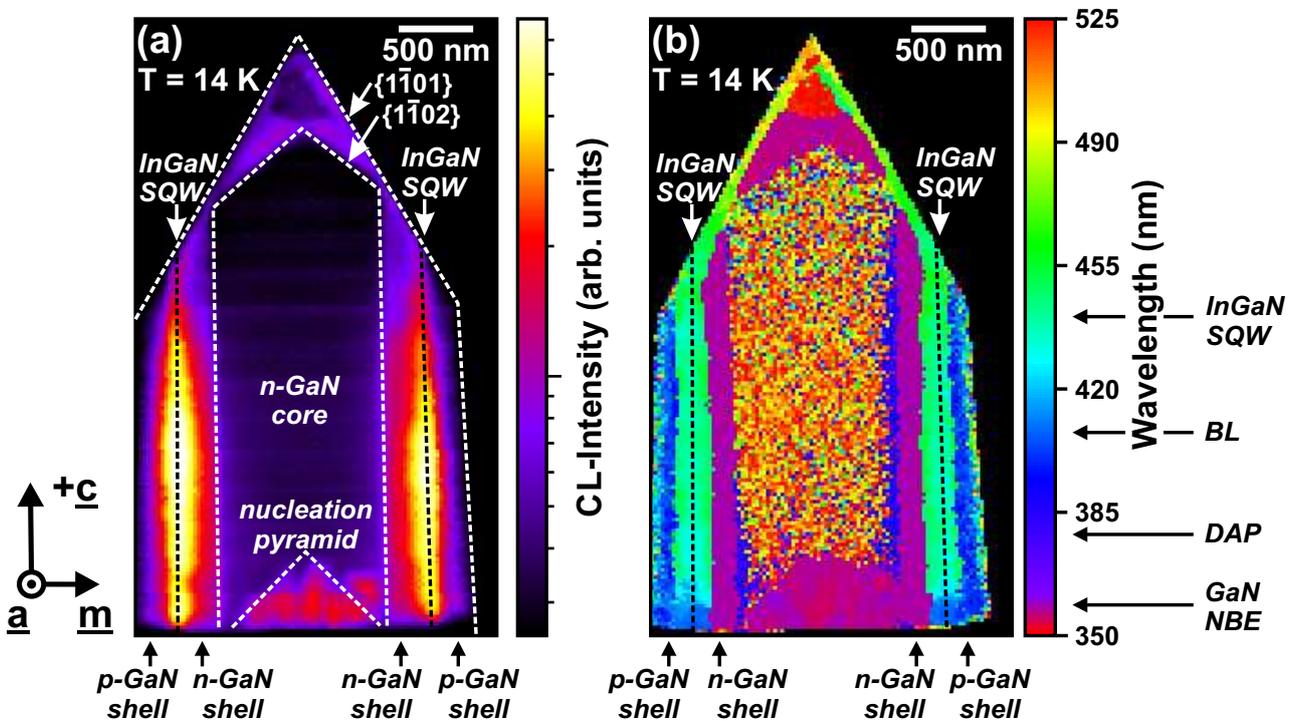


Abbildung 5.23: Hochauflösendes STEM-CL-Mapping der coaxialen InGaIn/GaN-Mikrosäule im Querschnitt bei $T = 14$ K: (a) panchromatisches CL-Intensitätsbild, (b) spektral-aufgelöstes CL-Wellenlängenbild.

Im panchromatischen Intensitätsbild wird durch die abrupte Zunahme der Lumineszenz-Intensität an der Grenzfläche vom Kern zum Mantel die Änderung der semi-polaren Oberflächenorientierung an der Mikrosäulen-Spitze klar sichtbar. Durch das Überwachsen des GaN-Kerns mit den Mantel-Schichten findet ein Übergang von $\{1\bar{1}02\}$ - auf die $\{1\bar{1}01\}$ -Facette statt. Kristallographisch sind die $\{1\bar{1}02\}$ - und $\{1\bar{1}01\}$ -Ebenen um einen Winkel von 43° und 62° zur c-Ebene angeordnet [24]. Ursache für die abrupte Zunahme der Quantenausbeute in den Mantel-Schichten ist eine verringerte Dichte an nicht-strahlenden Rekombinationszentren durch die Veränderung der Wachstumsparameter, wie ein erhöhtes V/III-Verhältnis, ein verringerter Silan-Fluss und eine niedrigere Wachstumstemperatur. Beginnend an der Grenzfläche vom Kern zum Mantel nimmt die CL-Intensität entlang der $[1\bar{1}00]$ -Richtung monoton um anderthalb Größenordnungen bis zum InGaN-Quantenfilm auf einen Maximalwert zu und fällt anschließend in der p-GaN-Schicht zu den non-polaren Oberflächen ab. Nahe der Oberfläche steigt die Rate an nicht-strahlenden Oberflächenrekombinationen signifikant an, so dass die panchromatische Intensität reduziert wird. Der Einfluss von nicht-strahlenden Prozessen an der Oberfläche ist für den semi-polar gewachsenen Quantenfilm erheblich größer, da die Dicken der äußeren AlGaIn-Schicht und p-GaN-Deckschicht wesentlich dünner sind. Als Folge dessen wird eine um eine Größenordnung niedrigere Lumineszenz-Intensität von den semi-polaren Mantel-Schichten im Vergleich zu den non-polaren Gebieten detektiert.

Abbildung 5.23(b) zeigt die Verteilung der maximalen Emissionswellenlänge im Spektralbereich von 350 nm bis 525 nm. Im Gebiet der Nukleationspyramide tritt als Folge einer hohen freien Ladungsträgerkonzentration eine bzgl. der (D^0, X) -Emission zu kürzeren Wellenlängen verschobene Band-Band -Rekombination bei 354 nm auf (siehe Kapitel 5.3.3). Im inneren Bereich der non- und semi-polaren GaN-Mantel-Schicht ist die exzitonische Emission bei 357 nm vorherrschend. Das Emissionsmaximum und die Linienform der exzitonischen Lumineszenz (siehe Abb. 5.26(d)) weisen auf eine verbesserte Materialqualität und einen deutlich verringerten Einbau von Fremdatomen aus der Maske während des Mantel-Wachstums hin.

Das Gebiet höchster Intensität korreliert mit einer Peakwellenlänge bei 435 nm (im Wellenlängenbild in grünem Kontrast) und kann dem non-polar orientierten InGaIn-Quantenfilm eindeutig zugeordnet werden. Bereits bei der Anregung in der GaN-Mantel-Schicht können die generierten Überschussladungsträger bzw. Exzitonen durch Transportprozesse innerhalb ihrer Diffusionslänge und Lebensdauer zum energetischen günstigeren InGaIn-Quantenfilm gelangen und dort strahlend rekombinieren. Ausgehend vom unteren Bereich der semi-polaren Facette zur Spitze verschiebt die InGaIn-Quantenfilm-Lumineszenz von 443 nm zu längeren Wellenlängen auf 490 nm. Die Rotverschiebung der Lumineszenz muss durch eine graduelle Zunahme der Indiumkonzentration bedingt sein, da die Quantenfilmdicke hingegen konstant bleibt (siehe Kap. 5.3.3).

Bei direkter Anregung der Mg-dotierten GaN-Schicht tritt auf beiden $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten die blaue Defekt-Lumineszenz bei 400 nm auf. Demgegenüber wird von den semi-polaren Facetten keine blaue Defekt-Lumineszenz detektiert. Ursache dafür ist die kleinere Schichtdicke vom p-GaN auf den semi-polaren Oberflächen und dem damit verstärkten Einfluss von nicht-strahlenden Oberflächenrekombinationprozessen.

5.3.3 Auswirkung der Wachstumsdomänen auf die LED

Strukturelle und optische Eigenschaften der Nukleationspyramide

In Abb. 5.24(a) ist ein HAADF-Bild aus dem Fußbereich der Mikrosäule gezeigt. In Übereinstimmung mit Untersuchungen von Mandl *et al.* in Referenz [24], bildet sich zu Beginn des MOVPE-Wachstums innerhalb der Öffnung der SiO₂-Maske eine Nukleationspyramide mit semi-polaren {1 $\bar{1}$ 02}-Facetten. Ausgehend von dieser Nukleationspyramide beginnt das Wachstum der GaN-Mikrosäulen vertikal und kohärent entlang der [0001]-Richtung.

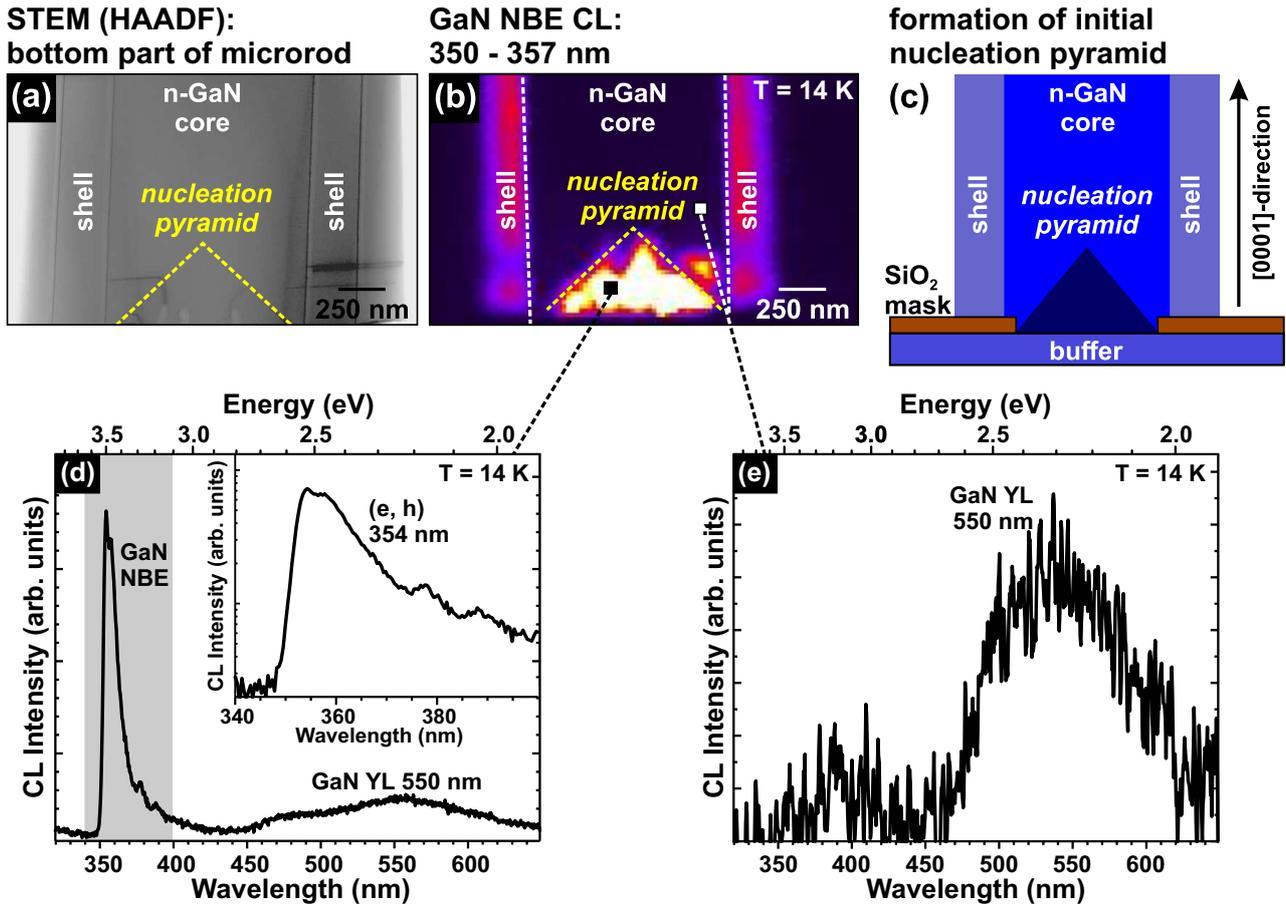


Abbildung 5.24: (a) HAADF-Bild aus dem Fußbereich der Mikrosäule (die Nukleationspyramide ist farblich markiert); (b) monochromatisches Intensitätsbild der bandkantennahen Emission im Wellenlängenbereich von 350 - 357 nm bei T = 14 K, (c) schematisches Wachstumsmodell des Si-dotierten GaN-Kerns, lokale Spektren aus Bereich (d) der Nukleationspyramide und (e) dem GaN-Kern.

Das monochromatische Intensitätsbild im Wellenlängenbereich von 350 - 357 nm in 5.24(b) bildet die Intensitätsverteilung der bandkantennahen Rekombinationsprozesse bei T = 14 K ab. Im Intensitätsbild lassen sich die zwei Wachstumsdomänen klar unterscheiden. Im Bereich der Nukleationspyramide, innerhalb Maskeneröffnung, wird eine intensive Lumineszenz detektiert. Mit dem Übergang von der Nukleationspyramide zum vertikalen Wachstum der GaN-Mikrosäulen ist ein drastischer Abfall der CL-Intensität zu verzeichnen.

Wie an Hand des lokalen Spektrums in Abb. 5.24(d) ersichtlich ist, wird die Nukleationspyramide durch eine intensive bandkantennahe Emission charakterisiert. Innerhalb des GaN-Kerns hingegen

wird keine NBE-Emission detektiert (Abb. 5.24(e)). Hier tritt nur eine schwache Intensität der gelben Defekt-Lumineszenz bei 550 nm mit einer Halbwertsbreite von 500 meV auf. In Folge der erhöhten Akkumulation an Punktdefekten im vertikalen Wachstumsprozess der GaN-Mikrosäulen (siehe Kap. 5.1.2) rekombiniert die Mehrheit der generierten Überschussladungsträger in diesem Gebiet über tiefe Störstellenniveaus als Defekt-Lumineszenz oder nicht-strahlend nach Schottky-Read-Hall.

Die Analyse der Linienform und Halbwertsbreite der bandkantennahe Rekombinationsprozesse innerhalb der Nukleationspyramide (siehe 5.24(d)) offenbart eine breite, gegenüber der (D^0,X)-Position blauverschobene Lumineszenzbande (FWHM = 120 meV), die sich als Band-Band-Übergang (e,h) identifizieren lässt. Wie in Kapitel 2.3 erläutert, führt die n-Dotierung von GaN zu einer Verkleinerung des Bandabstands durch die Bandabstandsrenormalisierung. Gleichzeitig bedingt eine Erhöhung der Elektronenkonzentration im Halbleiter eine Verschiebung des Fermi-Niveaus in Richtung des Leitungsbands. Wird die freie Ladungsträgerkonzentration im Halbleiter so weiter erhöht, dass die Exziton-Mott-Dichte überschritten wird, findet ein Übergang von der exzitonischen Emission zur Band-Band-Rekombination statt. Ist das Fermi-Niveau oberhalb des Leitungsbands angehoben, werden konsequenterweise die Zustände im Leitungsband aufgefüllt und die Band-Band-Rekombination zu kürzeren Wellenlängen verschoben.

Konsequenterweise kann aus der Analyse der Linienform und Übergangsenergie der Band-Band-Rekombination in Abb. 5.24 geschlossen werden, dass die freie Ladungsträgerkonzentration in der Nukleationspyramide größer ist als die Exziton-Mott-Dichte im GaN von $1,5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ [71]. Grund für die hohe freie Ladungsträgerkonzentration ist zum einen der hohe Silan-Fluss während des dreidimensionalen Wachstumsprozesses. Zum anderen kann die Diffusion von Maskenmaterial, in diesem Fall Si- oder O-Atome, in die Nukleationspyramide zu einem parasitären Einbau von extrinsischen Donatoren führen. Dergleichen wurde auch im epitaktisch lateralen Wachstumsprozess von GaN mit SiO_2 -Masken von Kaschner *et al.* beobachtet [231].

Charakterisierung der Domänenbildung beim Überwachsen von GaN-Mikrosäulen

Der Wechsel der Wachstumsparameter vom Kern- zum Mantel-Wachstum hat entscheidende Einflüsse auf die optischen und elektronischen Eigenschaften der LED. Abbildung 5.25 veranschaulicht dies anhand der Intensitätsverteilung der verschiedenen Rekombinationskanäle. Der Bereich des GaN-Kerns ist durch weiße Striche markiert. Zur näheren Analyse der Linienform und Halbwertsbreiten der Rekombinationsmechanismen sind lokale Spektren aus den Mantel-Schichten in Abb. 5.26 dargestellt. Im ersten Intensitätsbild in Abb. 5.25(a) ist die Lumineszenzverteilung der AlGaIn-Emission im Spektralbereich von 338 - 343 nm dargestellt. Die Lumineszenz tritt ausschließlich von der inneren, non-polaren AlGaIn-Schicht auf, nicht jedoch von der semi-polaren Schicht. Aus den STEM-Untersuchungen kann dies eindeutig mit der reduzierten Schichtdicke auf der semi-polaren Oberfläche erklärt werden. Das lokale Spektrum in 5.26(b)) zeigt eine scharfe Emissionslinie der AlGaIn-Schicht bei 343 nm mit einer Halbwertsbreite von FWHM = 50 meV.

Das monochromatische Intensitätsbild im Wellenlängenbereich von 355 - 360 nm in 5.25(b) visualisiert die Intensitätsverteilung der bandkantennahen Rekombinationsprozesse. Wie bereits diskutiert, tritt in dem hoch Si-dotierten GaN-Kern keine NBE-Emission auf. Mit dem Wechsel vom Kern- zum Mantel-Wachstum bilden sich laterale Wachstumsfronten an den $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten und dazu

verkippte Wachstumsfronten an der semi-polaren Spitze. Generell ist am Übergang vom Kern zum Mantel ein drastischer Anstieg der CL-Intensität um zwei Größenordnungen zu verzeichnen. Dies ist auf eine signifikante Verringerung der Dichte von nicht-strahlenden Defekten beim Überwachen des GaN-Kerns zurückzuführen.

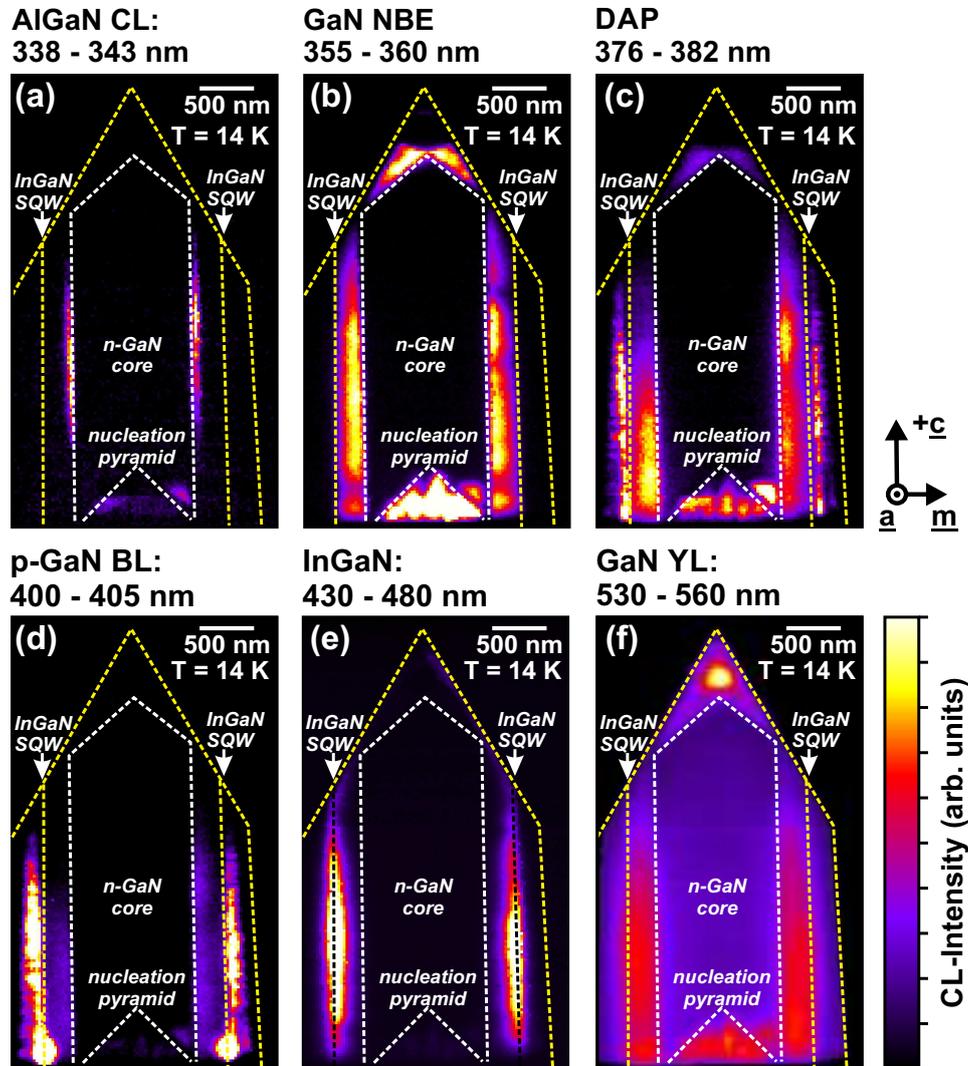


Abbildung 5.25: Normierte, monochromatische Kathodolumineszenz-Intensitätsbilder an der spektralen Position der (a) AlGaIn-Lumineszenz (338 - 343 nm); (b) bandkantennahe Emission (355 - 360 nm); (c) DAP-Rekombination (376 - 382 nm); (d) blauen Defekt-Lumineszenz (400 - 405 nm); (e) InGaIn-Quantenfilm-Lumineszenz (430 - 480 nm) und (f) gelben Defekt-Lumineszenz (530 - 560 nm) bei $T = 14$ K.

Im lokalen Spektrum in Abb. 5.26(c) ist sichtbar, dass die innere GaN-Mantel-Schicht durch eine schmalbandige, exzitonische Lumineszenz bei 357 nm charakterisiert ist ($\text{FWHM} = 40$ meV). Das Auftreten der exzitonischen Lumineszenz weist darauf hin, dass die Materialqualität deutlich verbessert ist gegenüber dem GaN-Kern. Neben der exzitonischen Lumineszenz tritt in der GaN-Schicht die Donator-Akzeptor-Paar-Rekombination auf. Auf der niederenergetischen Seite der DAP-Rekombination sind die erste und zweite longitudinale-optische (LO) Phononenreplik sichtbar (Abb. 5.26(d)). Die energetische Differenz von 91 meV ist in guter Übereinstimmung mit den in Literatur

berichteten Werten für die energetischen Abstände der LO Phononenrepliken im GaN [101, 208]. Die auftretende DAP-Rekombination liefert einen Hinweis auf einen zusätzlichen Störstelleneinbau von Akzeptoren während des Überwachsens des GaN-Kerns.

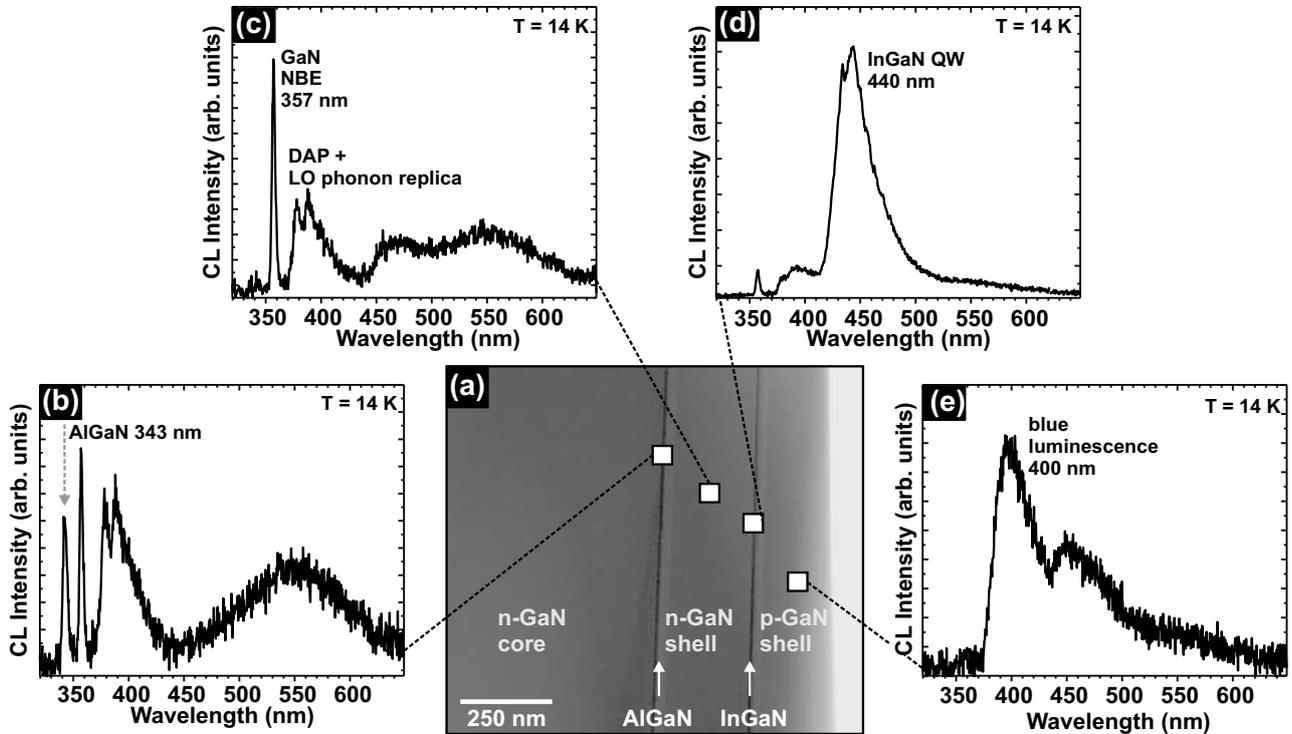


Abbildung 5.26: (a) STEM-Hellfeld-Aufnahme aus dem mittleren Bereich der Mikrosäule; (b) - (e) lokale Spektren von den coaxialen Mantel-Schichten bei $T = 14$ K.

Sowohl das Intensitätsbild der NBE-Emission wie auch der DAP-Rekombination weist entlang der $[1\bar{1}00]$ -Richtung eine Abnahme der CL-Intensität zum InGaN-Quantenfilm auf. Gleichzeitig nimmt die Intensität der Quantenfilm-Lumineszenz (siehe Abb. 5.25(e)) durch die Diffusion der generierten Minoritätsladungsträger und Exzitonen monoton um zwei Größenordnungen zu. Dagegen wird ein deutlich schwächere Quantenfilm-Lumineszenz von den semi-polaren Facetten detektiert. Eine ausführliche Korrelation der strukturellen und optischen Eigenschaften des Quantenfilms geschieht im nächsten Abschnitt.

An der Grenzfläche vom Quantenfilm zum p-GaN wird wiederum eine Intensitätszunahme der DAP-Rekombination beobachtet (Abb. 5.25(c)). Die Korrelation von DAP- und blauer Defekt-Lumineszenz (Abb. 5.25(d)) zeigt einen Übergang der Rekombinationsmechanismen vom inneren Bereich zum äußeren Bereich der p-GaN-Deckschicht als Folge einer erhöhten Mg-Dotierkonzentration zu den Oberflächen. Die spektrale Charakteristik der p-GaN-Schicht wurde anhand eines lokalen Spektrums in Abb. 5.26(e) untersucht. Das Intensitätsmaximum der blauen Defekt-Lumineszenz tritt bei 400 nm mit Halbwertsbreite von $\text{FWHM} = 280$ meV auf. Ursache für die blaue Defekt-Lumineszenz sind optische Übergang zwischen einem tiefen Donator und dem flachen Akzeptor (Mg_{Ga}) [262, 263]. Als Folge der Selbstkompensation bei hoher Mg-Dotierung können sich bevorzugt $(V_{\text{N}}\text{-Mg}_{\text{Ga}})$ -Komplexe als tiefe Donatoren im p-GaN bilden. Dieser Effekt tritt wie in der Literatur berichtet ab einer Magnesium-Dotierkonzentration von $> 2 \cdot 10^{19} \text{cm}^{-3}$ auf [102, 103]. Dementsprechend ist die

blaue Defekt-Lumineszenz als Folge der Selbstkompensation ein Zeichen dafür, dass die Magnesium-Dotierkonzentration in der p-GaN-Schicht höher als $2 \cdot 10^{19} \text{cm}^{-3}$ ist. Die Selbstkompensation hat jedoch als negative Auswirkung, dass die Löcherdichte im Mg-dotierten GaN-Mantel nach oben limitiert ist.

Die in den STEM-Untersuchungen nachgewiesene Verringerung der Mg-GaN-Schichtdicke von der non- zur semi-polaren Wachstumsdomäne ist verbunden mit einer drastischen Intensitätsabnahme der blauen-Defekt-Lumineszenz. Die Anisotropie der non- und semi-polaren p-GaN-Schicht stellt auch ein grundlegendes Problem für eine homogene Strominjektion dar. Wie Elektrolumineszenz-Untersuchungen an vergleichbaren Strukturen zeigen, dominiert bei niedrigen Strömen die Emission vom semi-polaren Quantenfilm, wohingegen die Emission des non-polaren Quantenfilme bei höheren Strömen eintritt [23, 89]. So kann direkt aus den STEM-CL-Untersuchungen geschlossen werden, dass die Homogenität der Mg-dotierten GaN-Schicht für LED-Anwendungen in Zukunft optimiert werden muss.

Hochauflösende Analyse der Quantenfilm-Lumineszenz

Wie bereits in Kapitel 5.2.2 gezeigt, beeinflussen die unterschiedlichen Wachstumsraten und Indiumkonzentrationen auf der non- und semi-polaren Facette die Emissionscharakteristik des InGaN-Quantenfilms. Folgend soll näher auf die optischen Eigenschaften des InGaN-QW innerhalb der LED-Struktur eingegangen werden. Abbildung 5.27 zeigt dazu die spektrale Entwicklung QW-Emission entlang der non-polaren Seite der Mikrosäule.

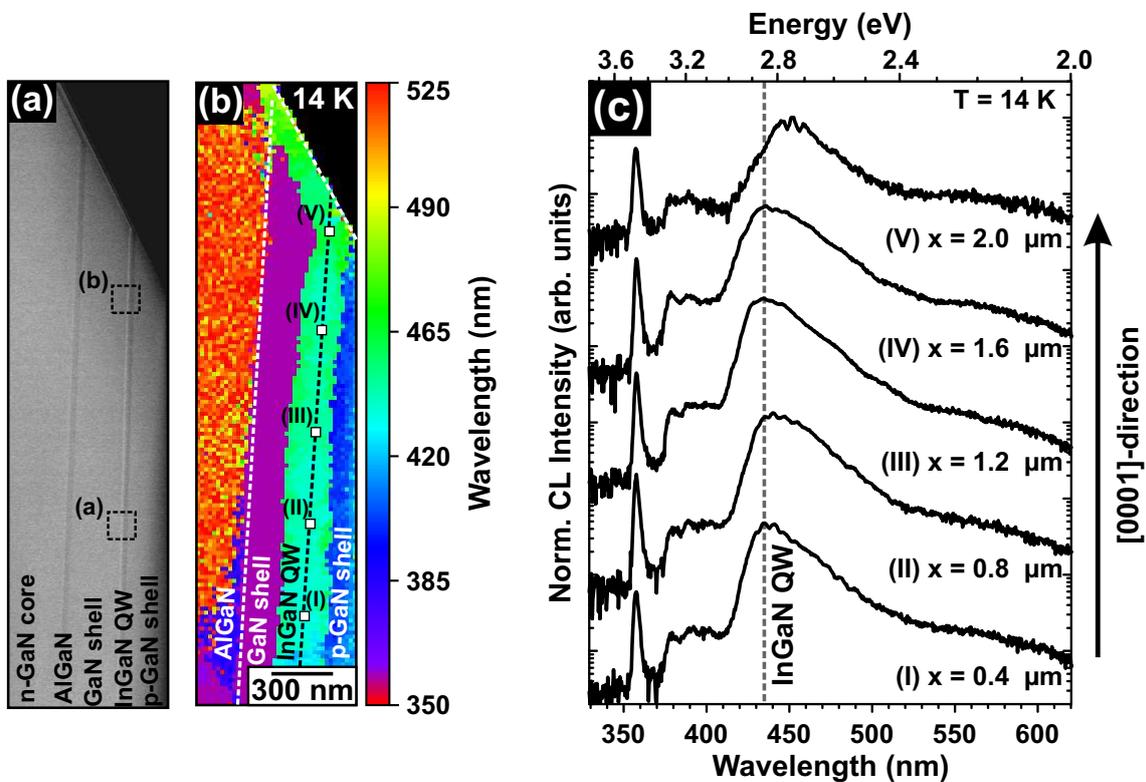


Abbildung 5.27: QW-Lumineszenz auf der $\{1\bar{1}00\}$ -Facette: (a) STEM-HAADF-Bild; (b) lokale Verteilung der Peakwellenlängen und (c) lokale Spektren des Quantenfilms bei $T = 14 \text{ K}$.

Die Korrelation der STEM-Aufnahme (Abb. 5.27(a)) und des Wellenlängenbilds (Abb. 5.27(b)) offenbart, dass die InGaN-Lumineszenz in einem weiten Bereich um die eigentliche Position des QWs dominant ist. Die Ausdehnung des Gebiets ist maßgeblich durch die Diffusionslänge der Minoritätsladungsträger und Exzitonen innerhalb der umgebenden GaN-Barrieren bestimmt (siehe Kap. 5.3.4). Charakteristisch für den non-polaren orientierten Quantenfilm ist eine homogene Emission von der Basis der Mikrosäule bis zum Übergang zur semi-polare Facette. Ausgehend vom Fuß wurden entlang der Seitenfacette lokale Spektren dem CL-Mapping entnommen und normiert in Abb. 5.27(c) dargestellt. Auf der QW-Lumineszenz sind in den Spektren schwache Oszillationen zu erkennen, die höchst wahrscheinlich auf Vielstrahl-Interferenzen durch die Reflexion an den Grenzflächen der TEM-Folie zurückzuführen sind. Die lokalen Spektren entlang der $\{1\bar{1}00\}$ -Facette (Position I - IV) weisen eine nahezu konstante QW-Lumineszenz bei 435 nm nach. Erst am Übergang zur semi-polaren Facette (Position V) tritt durch die Veränderung der QW-Dicke und Komposition eine Rotverschiebung der QW-Lumineszenz zu 451 nm auf.

Die homogene InGaN-Emission entlang der non-polaren Seitenfacetten korreliert mit der konstanten Schichtdicke des Quantenfilms in den strukturellen STEM-Untersuchungen. In Abbildung 5.28 sind dazu zwei HAADF-Aufnahmen des InGaN-QWs aus dem (a) mittleren und (b) oberen Bereich der non-polaren Facette vergleichend gegenübergestellt (die Positionen der Aufnahmen sind in Abb. 5.27(a) markiert). Im Z-Kontrast des HAADF-Bilds erscheinen die GaN-Schichten und AlGaN-EBL als dunklerer Kontrast bzw. der InGaN-Quantenfilm als hellerer Kontrast. In beiden Aufnahmen wurde eine konstante QW-Schichtdicke von (6 ± 1) nm bestimmt. Wiederum lässt sich aus dem Vergleich der CL-Daten mit den Simulationen der Übergangsenergie mittels TiberCAD (siehe Kapitel 5.2.2) für einen idealen, 6 nm dicken InGaN-QW eine mittlere Indium-Konzentration von $(21 \pm 2)\%$ abschätzen. Jedoch weist die große Halbwertsbreite der QW-Lumineszenz von $\text{FWHM} = 260$ meV bereits auf lokale Inhomogenitäten in der nanoskopischen Potentiallandschaft des InGaN-QWs hin, die näher in Kapitel 6.2 behandelt werden sollen.

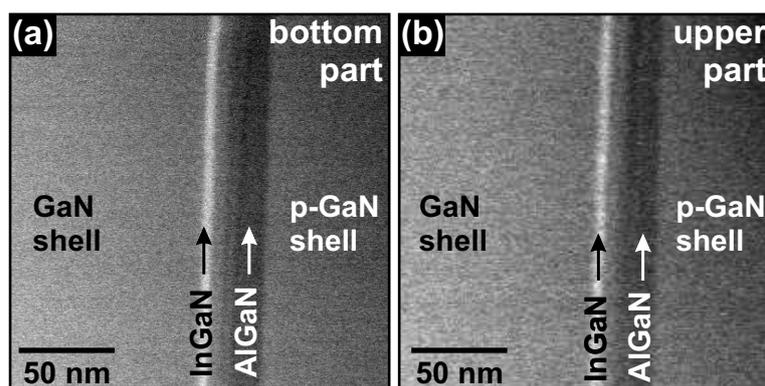


Abbildung 5.28: STEM-HAADF-Bilder der Mantel-Schichten aus: (a) dem unteren Bereich der non-polaren Facette und (b) dem oberen der non-polaren Facette (Positionen in Abb. 5.27(a) markiert).

Als Folge einer reduzierten Quantenfilm-Dicke und gleichzeitig erhöhten Indiumkonzentration des Quantenfilms, sowie des Einflusses von Polarisationsfeldern resultiert eine Rotverschiebung der InGaN-Lumineszenz am Übergang von der non- zur semi-polaren Facette (siehe lokales Spektrum in Abb.

5.27(c) (Position V)). Um die spektrale Entwicklung der QW-Emission entlang der semi-polaren $\{1\bar{1}01\}$ -Facette zu quantifizieren ist in Abb. 5.29 ein Linescan (SEM-CL) über eine Mikrosäule in Aufsicht dargestellt. Im Bereich von $x = 0 - 0,25 \mu\text{m}$ befindet sich der Elektronenstrahl noch der auf äußeren p-GaN-Schicht, sodass die blaue Defekt-Lumineszenz im Spektrum dominiert. Wird nun der Elektronenstrahl weiter in Richtung der Spitze geführt, wird bei $x = 0,7 \mu\text{m}$ die Lumineszenz des non-polar orientierten InGaN-QW bei 443 nm detektiert. Ausgehend vom Übergang des non-polar zum semi-polar orientierten Quantenfilm verschiebt das Intensitätsmaximum der InGaN-Lumineszenz sukzessiv zu längeren Wellenlängen, bis auf 498 nm am Apex der Säule bei $x = 1,5 \mu\text{m}$. Dies entspricht einer betragsmäßigen Energieverschiebung von rund 310 meV. Anschließend tritt symmetrisch wiederum eine Blauverschiebung der QW-Emission zur non-polaren Seitenfacette ein.

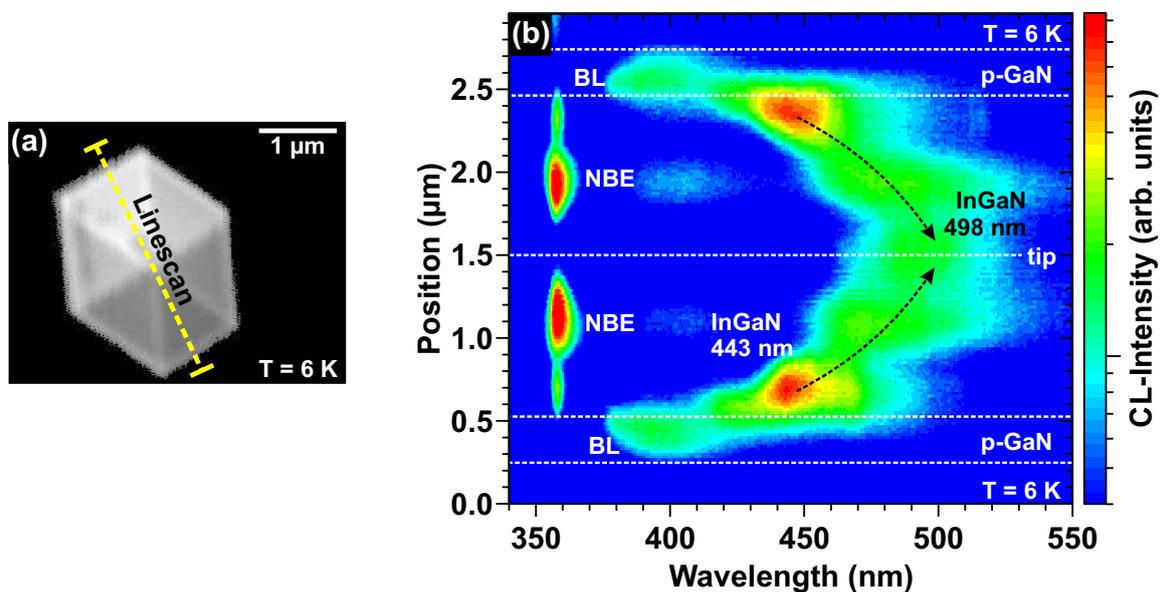


Abbildung 5.29: (a) SEM-Aufnahme einer einzelnen Mikrosäule in Aufsicht; (b) spektrale Entwicklung der Quantenfilm-Lumineszenz über die semi-polaren Facetten im CL-Linescan bei $T = 6 \text{ K}$ (Position markiert in (a)).

Vergleichend dazu sind in Abbildung 5.29 zwei HAADF-Aufnahmen vom Querschnitt der Mikrosäulenspitze gezeigt. Die Mantel-Schichten haben sich entlang der kompletten semi-polaren $\{1\bar{1}01\}$ -Facette ausgebildet. Die leichte Kontrastveränderung in Abb. 5.29(a) vom unteren Bereich zum Apex hin ist auf eine Abnahme der Lamellendicke als Folge der dreidimensionalen Geometrie der Säule zurückzuführen. Die STEM-Aufnahmen offenbaren, dass sich während des Überwachsens des GaN-Kerns mit der inneren GaN- und AlGaIn-Anpassungsschicht eine c-planare Oberfläche an der Spitze ausbildet. Im weiteren Wachstum der GaN-Mantel-Schichten überwächst die semi-polare Facette wiederum die polare Facette, sodass die aktive Zone komplett auf die $\{1\bar{1}01\}$ -Oberfläche gewachsen wird. Die Analyse der STEM-Aufnahmen belegt eine homogene Schichtdicke des Quantenfilms im unteren und oberen Bereich von $(4 \pm 1) \text{ nm}$. Demnach weist die Rotverschiebung der InGaN-Lumineszenz auf eine graduelle Zunahme des Indiumgehalts entlang der $\{1\bar{1}01\}$ -Facette zum Apex hin. Wie in der Literatur berichtet, könnte dieser Effekt durch einen Gradienten in der Gasphasenkonzentration des

Indium-Precursors während des Wachstums hervorgerufen sein [247, 252]. Demnach nimmt die Konzentration an Indium in der Gasphase zum oberen Bereich der Säule leicht zu. Auf diesen Aspekt soll im folgenden Kapitel 6.1.2 für Mikrosäulen mit hohem Aspekt-Verhältnis näher eingegangen werden.

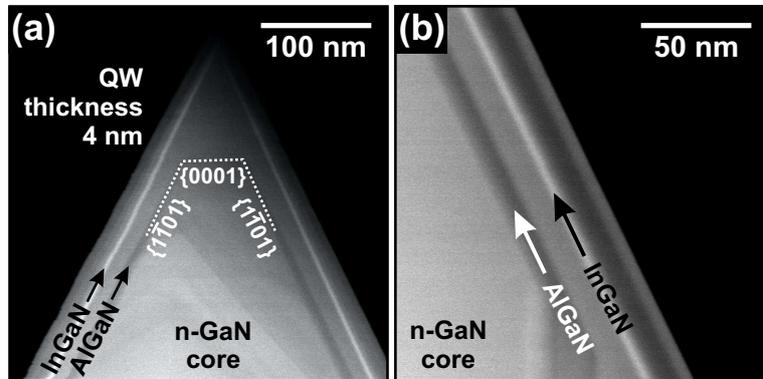


Abbildung 5.30: STEM-HAADF-Aufnahmen vom Querschnitt von Säule: (a) Apex der Mikrosäule; (b) Übergang von der non- zur semi-polaren Facette.

Besonders der Apex der Mikrosäule bildet einen topologisch bevorzugten Bereich zur Nukleation von InGaN auf Grund der dreidimensionalen Geometrie der Nanostruktur. Infolgedessen kann sich direkt an der hexagonalen Spitze ein räumlich stark begrenztes Gebiet mit einem erhöhten Indiumgehalt formieren [265, 266]. Wie von Edwards *et al.* und Solorzano *et al.* nachgewiesen, kann dies zur Bildung von Quantenpunkt-artigen Zuständen mit scharfen Emissionslinien führen [267, 268].

Um einen genaueren Aufschluss über die Emissionseigenschaften der Spitze zu erhalten, ist in Abbildung 5.31 die (a) Peakwellenlängenverteilung ($T = 14$ K) und das dazugehörige STEM-Bild in Hellfeld-Kontrast im Querschnitt der Struktur dargestellt. Der Vergleich von STEM- und Wellenlängenbild beweist eine stark rotverschobene Quantenfilm-Emission im direkten Bereich des Apex.

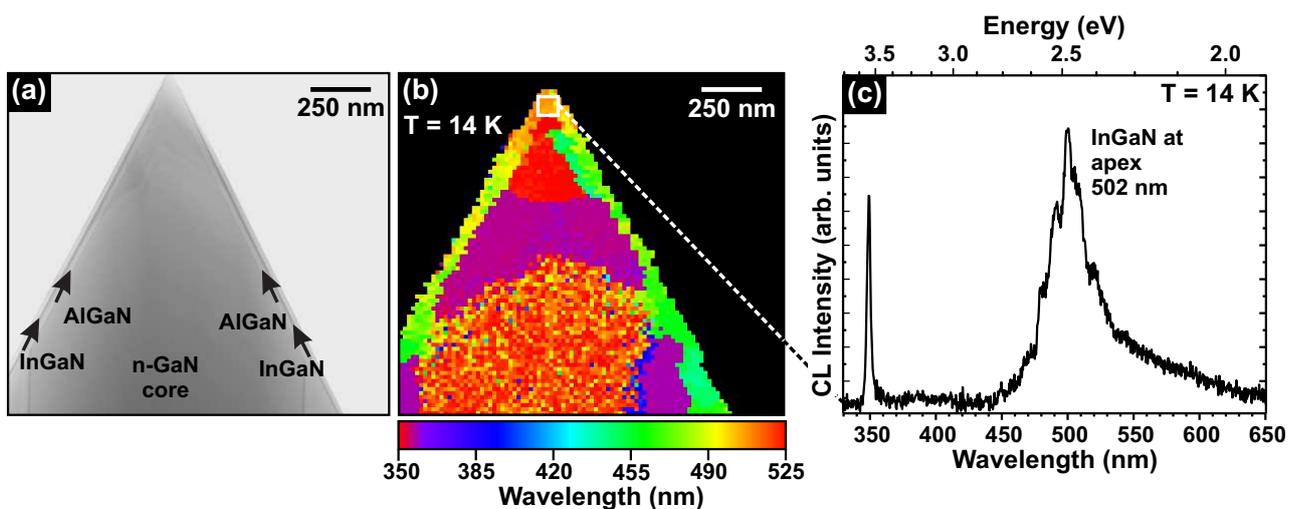


Abbildung 5.31: STEM-CL-Mapping bei Tieftemperatur von der Mikrosäule-Spitze bei $T = 14$ K: (a) STEM-Aufnahme im Hellfeld-Kontrast; (b) Peakwellenlängenverteilung und (c) lokales Spektrum vom Apex der Mikrosäule.

Die spektrale Charakteristik dieser InGaN-Lumineszenz wurde anhand eines lokalen Spektrums in Abb. 5.31(c) untersucht. Das lokale Spektrum weist eine schmalbandige InGaN-Emission mit einem Intensitätsmaximum bei 502 nm auf. Zusätzlich sind auf der InGaN-Lumineszenz Oszillationen zu erkennen, die durch Interferenzen der Lichtwellen nach der Reflexion an den Oberflächen der Säule gebildet werden könnten. Diese Oszillationen führen zu einer spektralen Verbreiterung der eigentlichen Emissionslinie. Die Halbwertsbreite der Emissionslinie bei 502 nm ist mit $\text{FWHM} = 50 \text{ meV}$ wesentlich schmäler als die Lumineszenz des non-polaren InGaN-Quantenfilms. Im Vergleich dazu berichten aktuelle Literaturarbeiten jedoch deutlich niedrigere Halbwertsbreiten (unterhalb von 1 meV) von selektiv gewachsenen InGaN-Quantenpunkten auf pyramidenförmigen Strukturen [269, 270]. So weist die schmalbandige Emissionslinie auf die Formierung eines In-reichen Gebiets am Apex der Mikrosäule hin. Ist dieses Gebiet nun in der Größendimension des Bohr-Exziton-Radius, findet ein dreidimensionaler Einschluss der Ladungsträger statt. Um die Formierung von Quantenpunkten und der damit verbundenen Einzelphotonen-Emission eindeutig nachzuweisen, müssen zukünftig Photon-Korrelation-Messungen an den Mikrosäulen angefertigt werden.

Es lässt sich aus den STEM-CL-Messungen festhalten, dass die non- und semi-polaren Wachstumsdomänen der Mikrosäule die Emissionscharakteristik der LED grundlegend beeinflussen. Als Folge unterschiedlicher Wachstumsraten und Indium-Konzentrationen auf den verschiedenen Facetten folgt eine polychromatische Quantenfilm-Lumineszenz. Gleichzeitig können die nachgewiesenen Veränderungen in der Schichtdicken der Mg-dotierten GaN-Deckschicht zu einer inhomogenen Strominjektion im elektrischen Betrieb der LED führen.

5.3.4 Ladungsträgertransport in den Mantel-Schichten

Im letzten Abschnitt des Kapitels soll auf den Ladungsträgertransport zum Quantenfilm in den non-polaren Mantel-Schichten näher eingegangen werden. Maßgeblich bestimmt wird der ambipolare Ladungsträgertransport durch den Diffusionsstrom, den Driftstrom und die Lebensdauer der durch den Elektronenstrahl erzeugten freien Ladungsträger und Exzitonen. Um den Ladungsträgertransport in den Mantel-Schichten zu visualisieren, ist in Abb. 5.32(a) die spektrale Lumineszenzentwicklung ausgehend vom Si-dotierten GaN-Kern zu den $\{1\bar{1}00\}$ -Oberflächen durch einen CL-Linescan in logarithmischer Intensitätsdarstellung abgebildet. Zur Verdeutlichung der Radialsymmetrie der Mikrosäule ist der Nullpunkt des Linescans in die Mitte des GaN-Kerns gelegt. Vergleichend dazu sind die Intensitätsprofile der jeweiligen Rekombinationskanäle in Abb. 5.32(b) gezeigt.

Im Bereich des Si-dotierten GaN-Kerns von $-0,56 \mu\text{m} < x < 0,54 \mu\text{m}$ tritt ausschließlich eine sehr schwache Intensität der gelben Defekt-Lumineszenz bei 550 nm auf. Wie in Kapitel 5.1.2 erläutert, werden durch den dreidimensionalen Wachstumsprozess und die hohe Si-Dotierung des GaN-Kerns vermehrt Punktdefekte eingebaut, die den Ladungsträgertransport im Kern stark beeinflussen können. EBIC-Untersuchungen von Chernyak *et al.* an Si-dotierten GaN haben nachgewiesen, dass sich die Diffusionslänge der Minoritätsladungsträger, in diesem Fall der Löcher, mit zunehmender Si-Dotierung von GaN durch die Streuung an geladenen Störstellen verringert. [271].

Erst bei direkter Anregung der inneren AlGaIn-Schicht tritt auf beiden non-polaren Seitenfacetten eine Emissionslinie bei 343 nm auf. Ausgehend von der AlGaIn-Mantel-Schicht setzen ab $x < -0,57 \mu\text{m}$

bzw. $x > 0,54 \mu\text{m}$ sowohl die bandkannennahe Emission vom GaN bei 357 nm sowie die Donator-Akzeptor-Paar-Rekombination bei 378 nm ein. Betrachtet man die Intensitätsverläufe der NBE- und DAP-Lumineszenz in Abb. 5.32(b), zeigt sich eine monotone Zunahme der Intensität bis zur örtlichen Position bei $x = -0,62 \mu\text{m}$ bzw. $x = 0,64 \mu\text{m}$ um danach wieder im Einflussbereich des Quantenfilms monoton an Intensität zu verlieren. Der Intensitätsverlauf der InGaN-Emission bei einer Wellenlänge von 440 nm weist ein komplementäres Verhalten zur NBE- und DAP-Lumineszenz auf. Während die Intensitäten der NBE- und DAP-Lumineszenz über einen örtlichen Bereich von $\Delta x = 200 \text{ nm}$ sinken, erreicht die InGaN-Emission an der Stelle des Quantenfilms bei $x = -0,82 \mu\text{m}$ bzw. $x = 0,84 \mu\text{m}$ ein Maximum. Dies verdeutlicht, dass die laterale Diffusion der generierten Ladungsträger zum Quantenfilm in direkter Konkurrenz zur Rekombination über die bandkannennahe Emission und DAP-Lumineszenz in der GaN-Schicht steht.

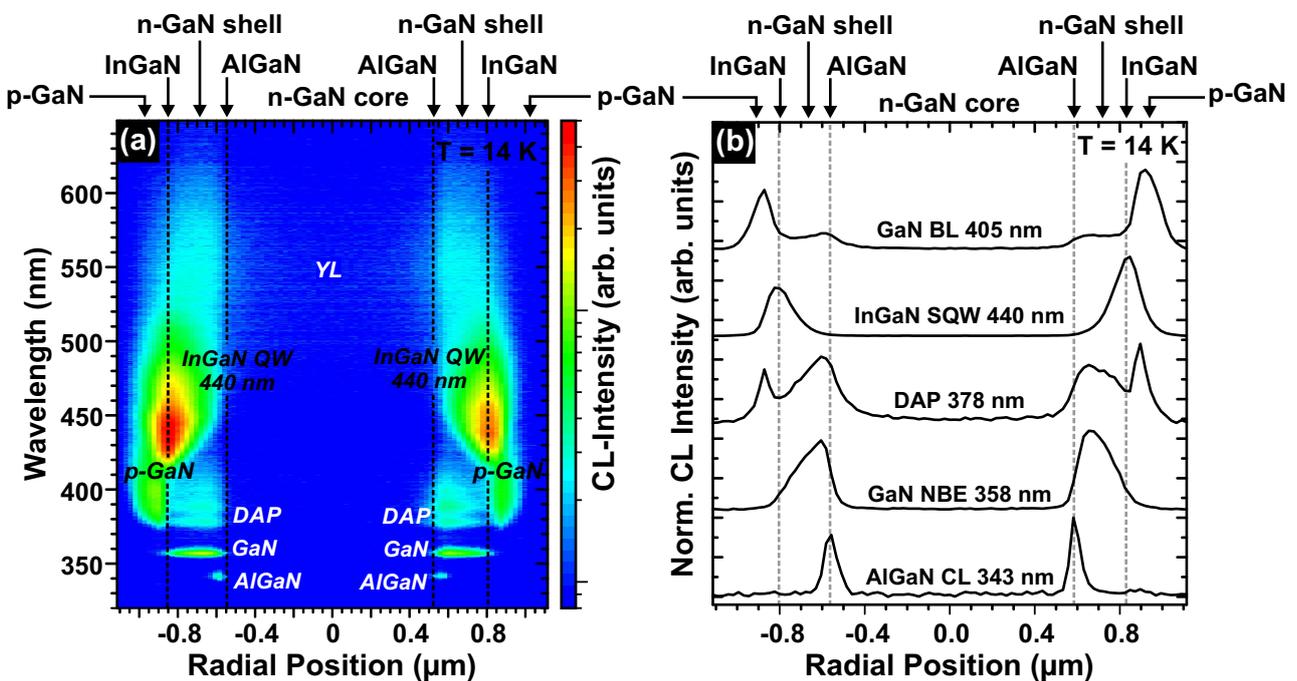


Abbildung 5.32: (a) STEM-CL-Linescan ausgehend vom Si-dotierten GaN-Kern zu den $\{1\bar{1}00\}$ -Oberflächen bei $T = 14 \text{ K}$; (b) normiertes Intensitätsprofil der einzelnen Rekombinationskanäle.

Ausgehend von der Position des Quantenfilms setzt in der Magnesium dotierten p-GaN-Deckschicht in Richtung der $\{1\bar{1}00\}$ -Oberfläche die blaue Defekt-Lumineszenz bei einer Wellenlänge von 400 nm ein und steigt monoton bis zu $x = -0,89 \mu\text{m}$ bzw. $x = 0,92 \mu\text{m}$ an. Gleichzeitig ist im Intensitätsverlauf der InGaN-Emission eine Intensitätsreduktion auf Normalniveau zu sehen.

Im Folgenden soll der Ladungsträgereinfang aus dem n-GaN und p-GaN zum InGaN-Quantenfilm analytisch näher betrachtet werden. Abbildung 5.33(a) zeigt die örtliche Änderung der InGaN-Lumineszenz im Spektralbereich von 435 - 445 nm senkrecht zum Quantenfilm bei $T = 14 \text{ K}$. Zur Bestimmung der Lage des Quantenfilms wurde das simultan erfasste STEM-Signal verwendet. Eine STEM-Aufnahme mit der Position des Intensitäts-Linescans ist in Abb. 5.33(a) dargestellt. Hier erscheint der InGaN-QW klar erkennbar im hellen HAADF-Kontrast.

Im CL-Intensitätsprofil ist sichtbar, dass die QW-Emission monoton im inneren Si-dotierten GaN-Mantel bis zur Position des Quantenfilms zunimmt und danach im Mg-dotierten GaN wieder an Intensität verliert. Der Intensitätsverlauf zeigt jedoch ein asymmetrisches Verhalten im n-GaN und p-GaN. Da die Rekombinationskinetik maßgeblich von den Minoritätsladungsträgern beeinflusst wird, muss hier in zwei Fälle unterschieden werden: Im Si-dotierten GaN tragen Löcher als Minoritätsladungsträger zum ambipolaren Ladungsträgertransport bei, wohingegen im Mg-dotierten Gebiet Elektronen die Minoritätsladungsträger bilden.

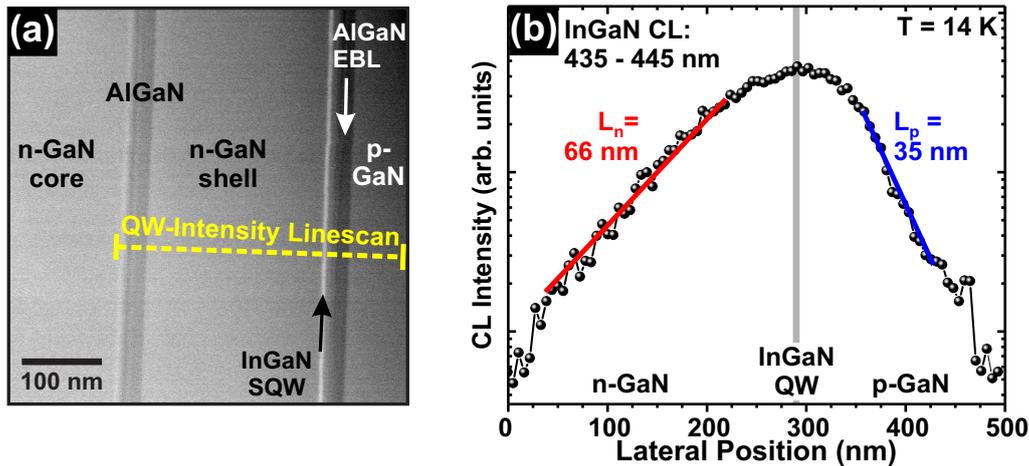


Abbildung 5.33: (a) STEM-HAADF-Aufnahme der Mantel-Schichten; (b) CL-Intensitätsprofil im Wellenlängenbereich bei 435 - 445 nm mit der exponentiellen Anpassung zur Bestimmung der Diffusionslängen im n-GaN und p-GaN.

In unmittelbarer Umgebung der Raumladungszone bedingt das elektrische Feld zusätzlich zur Diffusion einen Drift-Strom der Ladungsträger. Im Grenzfall weit entfernt von der Raumladungszone, also ohne elektrisches Feld, dominiert der Diffusionsstrom den Ladungsträgertransport. Dementsprechend wird zur Bestimmung der Einfanglänge L der Ladungsträger in den InGaN-Quantenfilm, nur der monoexponentielle Anstieg bzw. Abfall des Intensitätsverlaufs durch eine exponentielle Funktion vom Typ:

$$I_{QW}(x) = I_0 \cdot e^{-\frac{|x|}{L}} \quad (5.2)$$

angepasst. Auf diese Weise wird die Einfanglänge der Ladungsträger im n-GaN zu $L_n = (66 \pm 5)$ nm bestimmt. Demgegenüber wird im p-dotierten GaN hingegen eine deutlich niedrigere Einfanglänge von $L_p = (35 \pm 5)$ nm bestimmt. Da im defektfreien GaN die Elektronen-Mobilität größer ist als die Löcher-Mobilität [206], muss die kleinere Einfanglänge im p-GaN durch eine schlechtere kristalline Qualität der Schicht bedingt sein. So kann die Streuung an neutralen und ionisierten Störstellen durch einen verstärkten Einbau von Fremdatomen zu einer Abnahme der Diffusionslänge führen [272]. Sowohl die kleine Einfanglänge der Ladungsträger, wie auch die nachgewiesene blaue Defekt-Lumineszenz vom p-GaN deuten auf eine schlechte Materialqualität der Schicht hin, die für zukünftige Anwendungen erhöht werden muss.

5.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die strukturellen und optischen Eigenschaften von dreidimensionalen InGaN/GaN-Mikrosäulen systematisch analysiert. Erstmals wurde in diesem Kontext die hochauflösende STEM-CL-Mikroskopie an koaxialen Mikrosäulen mit Kern-Mantel-Geometrie erfolgreich demonstriert.

Die morphologischen Untersuchungen weisen ein homogenes und reguläres Wachstum von hexagonalen Mikrosäulen mit $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten und semi-polaren $\{1\bar{1}01\}$ - und $\{1\bar{1}02\}$ -Oberflächen an der Spitze nach. In strukturellen Analysen wurde weiterhin gezeigt, dass das ortsselektive Wachstum der Mikrosäulen mittels MOVPE eine Versetzungsreduktion mit dem Wachstumsverlauf bewirkt. Einzelne Versetzungen, die aus dem Puffer in die Mikrosäulen propagieren, werden im Fußbereich zu den non-polaren Oberflächen abgelenkt, sodass die obere Region des GaN-Kerns frei von Versetzungen ist. Jedoch beweisen die mikroskopischen Lumineszenz-Analysen, dass vermehrt Punktdefekte durch Fremdatome in die Si-dotierten GaN-Mikrosäulen eingebaut werden. Diese Punktdefekte bewirken als nicht-strahlende Rekombinationszentren eine starke Abnahme der exzitonischen Lumineszenzintensität. Des Weiteren führen die Punktdefekte zu einer intensitätsschwachen Emission der gelben Defekt-Lumineszenz.

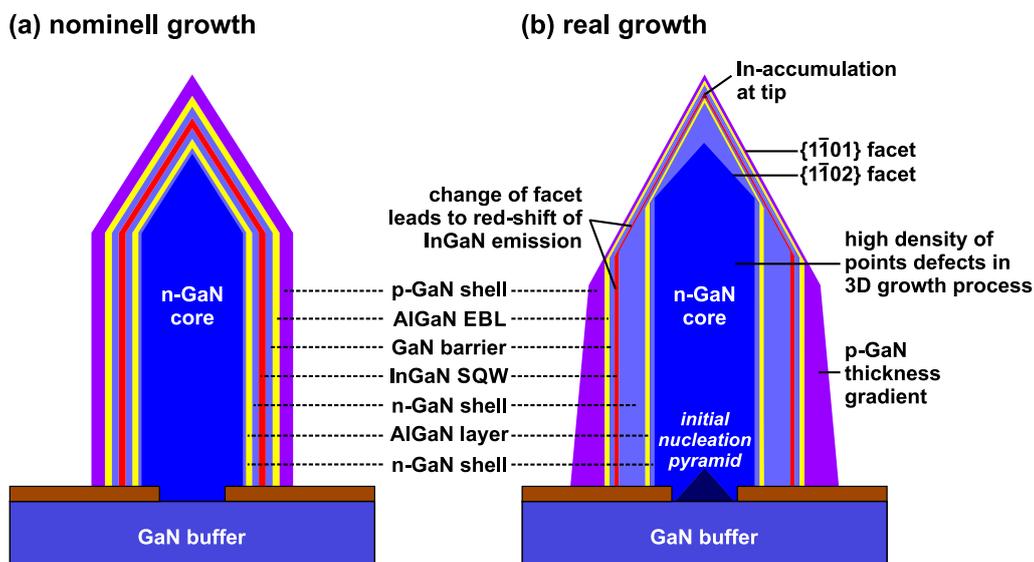


Abbildung 5.34: Vergleich des (a) nominellen und (b) realen Wachstumsmodells der InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED.

In STEM-Analysen wurde nachgewiesen, dass die aktive Schicht erfolgreich den kompletten GaN-Kern als Mantel umgibt. Mit Hilfe der STEM-CL-Mikroskopie wurden die spezifischen Wachstumsdomänen der einzelnen Mantel-Schichten im Querschnitt weitergehend charakterisiert. Die Ergebnisse belegen, dass die Materialqualität der Mantel-Schichten durch die Erhöhung des V-III-Verhältnis, sowie einer Reduktion des Silan-Flusses und einer verringerten Wachstumstemperatur wesentlich verbessert wird. Die Emission einer intensiven exzitonischen Lumineszenz in den GaN-Mantel-Schichten

beweist eine stark reduzierte Dichte von nicht-strahlenden Rekombinationszentren. Allerdings unterscheiden sich die Wachstumsraten der Mantel-Schichten auf den semi- und non-polaren Facetten signifikant. So bewirkt eine höhere Wachstumsrate auf den $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten gegenüber den $\{1\bar{1}01\}$ -Facetten eine erhebliche größere Schichtdicke der non-polaren Mantel-Schichten. Die Schichtdicke des InGa_N-Quantenfilms auf den sechs non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten wurde zu (6 ± 1) nm bzw. auf semi-polaren $\{1\bar{1}01\}$ -Facetten zu (4 ± 1) nm bestimmt. Folglich variiert die Emissionswellenlängen des koaxialen Quantenfilms je nach kristallographischen Orientierung der Wachstumsfacette. Die non-polaren Facetten weisen eine homogene Emission bei 435 nm auf. Demgegenüber wird für die semi-polaren Facetten eine rotverschobene Quantenfilm-Lumineszenz zwischen 460 nm und 520 nm beobachtet. Der Vergleich der strukturellen und optischen Messdaten mit einer Simulation der Übergangsenergie des Quantenfilms deutet zusätzlich auf einen Facetten-abhängigen Einbau von Indium hin. Aus den erhaltenen Ergebnissen konnte ein Wachstumsmodell für die dreidimensionalen Heterostrukturen in Abb. 5.34 abgeleitet werden.

Das Auftreten der blauen Defekt-Lumineszenz in der äußerten Mg-dotierten GaN-Schicht der Mikrosäulen-LED ist charakteristisch für die Bildung von Punktdefekten durch die Selbstkompensation. Da dieser Effekt typischerweise für eine Magnesium-Dotierkonzentration oberhalb von $2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ auftritt, erlaubt die Lumineszenzanalyse damit eine erste Abschätzung der p-Dotierung innerhalb der Mikrosäulen.

Im Weiteren wurde der laterale Ladungsträgertransport in den Mantel-Schichten von Mikrosäulen-LEDs durch die Auswertung des InGa_N-Lumineszenzintensitätsprofils untersucht. In der inneren n-dotierten GaN-Mantel-Schicht wurde die Einfanglänge der generierten Ladungsträger zu $L_n = (66 \pm 5)$ nm bestimmt. Dagegen führt die schlechtere Kristallqualität der p-GaN-Schicht zu einer wesentlich kürzeren Einfanglänge der Ladungsträger von $L_p = (35 \pm 5)$ nm.

Aus den Ergebnissen dieses Kapitels lässt sich ableiten, dass das Wachstum von InGa_N-Quantenfilmen auf Mikrosäulen mit niedrigem Aspekt-Verhältnis durch die Ausbildung von non- und semi-polaren Facetten zwangsläufig zu einer Verbreiterung der Quantenfilm-Lumineszenz gegenüber planaren Heterostrukturen führt. Zukünftige Anwendungen für Bauelemente mit einer schmalbandigen Emission sind damit ausgeschlossen. Die variierenden Dicken der n-GaN- und p-GaN-Schichten wirken sich zudem negativ auf die Strominjektion in den Quantenfilm im elektrischen Betrieb aus.

Die interne Quanteneffizienz der hier untersuchten Mikrosäulen-LED wurde in Referenz [89] bei einer Stromdichte von 400 mA/mm^2 zu 10 % bestimmt und ist somit wesentlich kleiner als die interne Quanteneffizienz aktueller, planarer LEDs. Eine Ursache für die niedrige Quanteneffizienz könnte die hohe Dichte an Punktdefekten im GaN-Kern und in der Mg-dotierten GaN-Schicht sein.

6 Analyse von Lumineszenz- und Kompositionsinhomogenitäten in InGaN/GaN-Mikrosäulen

In diesem abschließenden Kapitel wird die Auswirkung von Struktur- und Kompositionsinhomogenitäten auf die Lumineszenzeigenschaften von InGaN/GaN-Mikrosäulen mit hohem Aspekt-Verhältnis diskutiert. Durch die Kombination von quantitativer HAADF-Analyse und CL-Spektroskopie im Transmissionselektronenmikroskop wird eine direkte Korrelation zwischen der chemischen Zusammensetzung, den strukturellen und optischen Eigenschaften des InGaN-Quantenfilms hergestellt. Hierbei stehen zum einen die Untersuchung von mikroskopischen Emissionsinhomogenitäten entlang von Mikrosäulen und zum anderen nanoskopische Potentialfluktuationen im Vordergrund.

Vergrößerung des Aspekt-Verhältnisses von InGaN/GaN-Mikrosäulen

Da die im vorherigen Kapitel 5 vorgestellten Mikrosäulen-LEDs ein kleines Aspekt-Verhältnis aufweisen, ergibt sich nur ein geringer Vorteil bzgl. der Leuchtfläche gegenüber einer planaren LED. Um die optisch aktive Leuchtfläche des Bauelements zu vergrößern und somit die Stromdichte zu verringern, muss eine deutliche Steigerung des Verhältnisses zwischen Höhe und Durchmesser der Säulen stattfinden. Wie schematisch in Abb. 6.1 dargestellt, wird eine Steigerung des Aspekt-Verhältnisses durch ein längeres Wachstum des GaN-Kerns von nominell 8 μm Höhe erreicht.

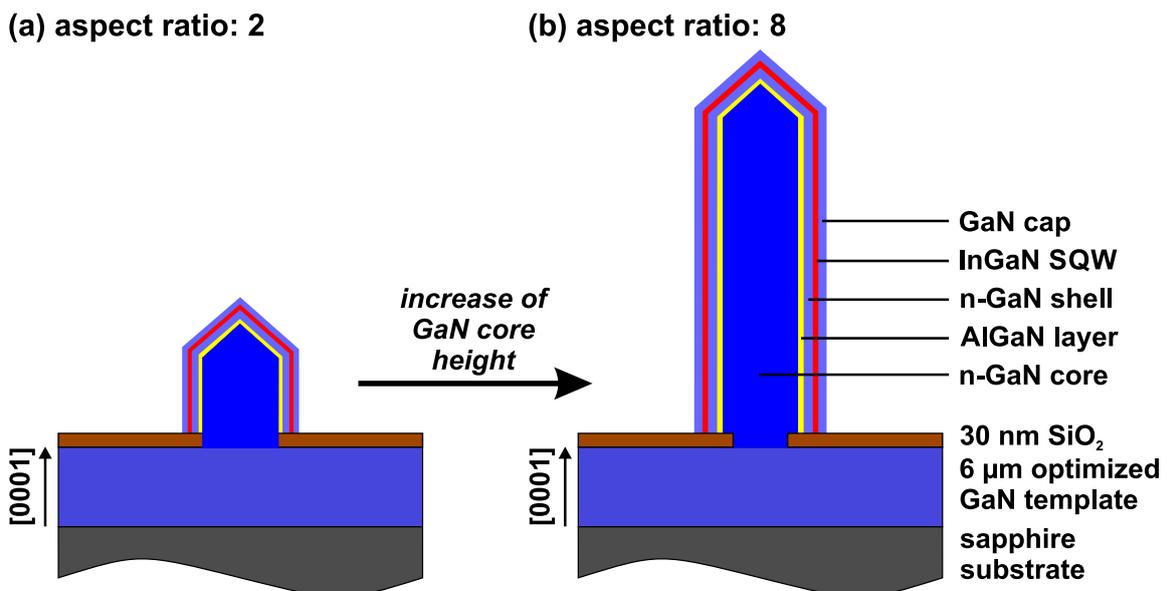


Abbildung 6.1: Schematischer Probenaufbau der InGaN/GaN-Mikrosäulen: Zur Erhöhung des Aspekt-Verhältnisses um den Faktor 4 gegenüber (a) den Proben aus Kapitel 5 wird in (b) der n-dotierte GaN-Kern nominell 8 μm entlang der [0001]-Richtung gewachsen.

Durch die Vergrößerung des Aspekt-Verhältnis ist vor allem ein homogenes, epitaktisches Wachstum des koaxialen InGaN-Quantenfilms vertikal entlang der non-polaren Oberfläche der dreidimensionalen Struktur eine wesentliche Bedingung.

Die hier untersuchten InGaN/GaN-Mikrosäulen mit hohem Aspekt-Verhältnis wurden wiederum durch die Arbeitsgruppe um Martin Strassburg von OSRAM Opto Semiconductors bereitgestellt. Der schematische Aufbau der Probe ist in Darstellung 6.1(b) abgebildet. Analog der in Kapitel 5 vorgestellten Strukturen wurden die Mikrosäulen mittels MOVPE auf eine $6\ \mu\text{m}$ dicke, optimierte GaN/Saphir-Pufferstruktur gewachsen. Für das selektive Wachstum der Mikrosäulen wurde im ersten Schritt eine $30\ \text{nm}$ dicke SiO_2 -Schicht mittels chemischer Gasphasenabscheidung auf den Puffer abgeschieden und anschließend mit Hilfe von Nanoimprint-Lithographie strukturiert. Hierbei wurden mittels Trockenätzverfahren kreisrunde Löcher mit einem Abstand von $3\ \mu\text{m}$ und einem Durchmesser von $800\ \text{nm}$ in die SiO_2 -Maske zum GaN-Puffer in hexagonaler Anordnung geätzt. Im folgenden MOVPE-Prozess wurden die n-dotierten GaN-Mikrosäulen unter einem Silanfluss von $450\ \text{nmol}/\text{min}$ und einem Stickstoff-zu-Gallium-Verhältniss von 100 bei einer Temperatur von $T = 1070^\circ\text{C}$ gewachsen. Unter den gewählten Wachstumsbedingungen werden, wie von Mohajerani *et al.* berichtet, freie Ladungsträgerkonzentrationen von bis zu $1 \cdot 10^{20}\ \text{cm}^{-3}$ im n-GaN-Kern erreicht [99]. Um eine hohe Grenzflächenqualität zwischen dem Kern und den Mantel-Schichten zu erhalten bzw. die Bildung einer Si-reichen Passivierungsschicht zu vermeiden, wurde die SiH_4 -Konzentration zum Ende des Wachstumsprozesses um eine Größenordnung verringert. Dementsprechend wird auch die freie Ladungsträgerkonzentrationen im Bereich der Spitze reduziert.

Für das weitere Wachstum der Mantel-Schichten wurde das V/III-Verhältnis um zwei Größenordnungen vergrößert. Auf den kompletten n-dotierten GaN-Kern wurde eine AlGaN-Anpassungsschicht epitaktisch abgeschieden. Anschließend daran wurde eine moderat Si-dotierte GaN-Mantel-Schicht gefolgt von einem InGaN-Quantenfilm sowie einer äußeren GaN-Deckschicht gewachsen. Die Abscheidung des InGaN-Quantenfilms bzw. der n-GaN-Barrieren erfolgte bei einer Temperatur von 750°C bzw. 850°C .

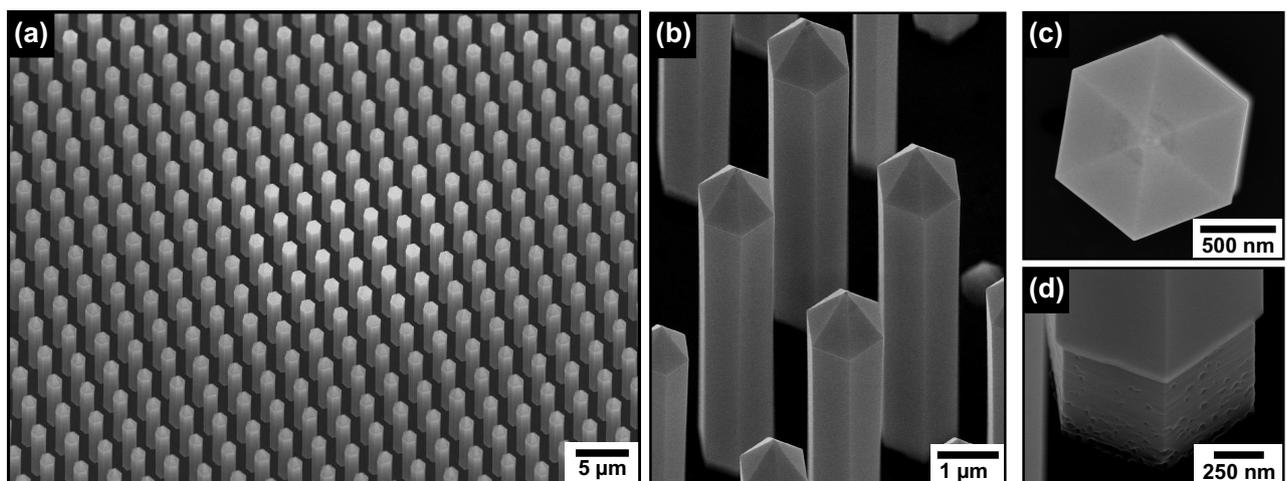


Abbildung 6.2: SEM-Aufnahmen der InGaN/GaN-Mikrosäulen: (a) Übersichtsbild der Probenoberfläche unter 30° Verkipfung; (b) vergrößerte SEM-Detailaufnahme der Mikrosäulen; (c) SEM-Bild in Aufsicht einer einzelnen Struktur und (d) SEM-Aufnahme aus dem Fußbereich einer Säule.

Die SEM-Übersichtsaufnahme der Probenoberfläche unter 30° Verkipfung ist in Abb. 6.2(a) dargestellt. Das ortsselektive Zonenwachstum durch die hier verwendete SiO_2 -Maske führt zu einer regulären und homogenen Anordnung der Mikrosäulen mit einer Dichte von $1,3 \cdot 10^7$ Säulen/ cm^2 , womit 10% der kompletten planaren Oberfläche des GaN-Puffers bedeckt sind. Wie in den SEM-Detailaufnahmen in Bild 6.2(b) und (c) ersichtlich, werden die hexagonalen Mikrosäulen durch non-polare $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten im unteren Bereich und semi-polare $\{1\bar{1}01\}$ -Oberflächen an der Spitze terminiert. Das Aspekt-Verhältnis ist deutlich vergrößert gegen über den Mikrosäulen in Kapitel 5. Die mittlere Höhe und Durchmesser der Säulen betragen $8,8 \mu\text{m}$, respektive $1,1 \mu\text{m}$. Aus dem daraus folgenden Aspekt-Verhältnis und der Dichte der Säulen ergibt sich eine ca. 3,5-fache Steigerung der optisch aktiven Leuchtfläche im Vergleich zu einer planaren Struktur.

Die SEM-Aufnahme aus dem unteren Bereich einer einzelnen Mikrosäule, dargestellt in Abb. 6.2(d), zeigt jedoch, dass die Mantel-Schichten nicht entlang der kompletten Struktur bis zum Fußbereich gewachsen sind. Erst ab einer Höhe von etwa $1 \mu\text{m}$ setzt das Mantel-Wachstum auf dem GaN-Kern ein. Ursache dafür könnte die Bildung einer Si-reichen Passivierungsschicht im unteren Bereich der Säule sein, die das Mantel-Wachstum unterdrückt hat.

6.1 Auswirkung von Schichtdicken- und Kompositionsgradienten auf die Quantenfilm-Lumineszenz

6.1.1 Ortsaufgelöste Charakterisierung der optischen Eigenschaften

Zur Analyse der optischen Eigenschaften der InGaN/GaN-Mikrosäulen ist in Abb. 6.3 das CL-Übersichtsspektrum, sowie die dazugehörige Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahme dargestellt. Die Messungen wurden bei einer Beschleunigungsspannung von 5 kV und einem Strahlstrom von 500 pA bei einer Temperatur von $T = 6 \text{ K}$ angefertigt.

In Übereinstimmung mit den morphologischen Untersuchungen, ist auch in dem mittels SEM-CL charakterisierten Probenbereich eine reguläre und uniforme Anordnung der Mikrosäulen zu beobachten. Die InGaN/GaN-Mikrosäulen sind entlang der $[0001]$ -Richtung, vertikal zum GaN-Puffer, ausgerichtet. Vergleichbar mit den Mikrosäulen mit niedrigem Aspekt-Verhältnis in Kapitel 5.2 zeigt das orts-integrale CL-Spektrum in Abb. 6.3(b) drei spektrale Komponenten, welche sich örtlich getrennten Gebieten zuordnen lassen. Die bandkantennahe Lumineszenz bei 357 nm, wie auch die gelbe Defekt-Lumineszenz bei 550 nm werden bei direkter Anregung des unterliegenden GaN-Puffers emittiert (sichtbar in der Verteilung der Peakwellenlängen in Abb. 6.4(b)).

Im Spektralbereich von 410 nm bis 490 nm weist das CL-Spektrum eine breite, asymmetrische Emissionsbande vom InGaN-Quantenfilm mit einem Intensitätsmaximum bei 415 nm auf. Die niederenergetische Flanke der Quantenfilm-Lumineszenz fällt ab 415 nm mit steigender Wellenlänge kontinuierlich ab und überdeckt dabei die gelbe Defekt-Lumineszenz. Im Vergleich zu den in Kapitel 5.2 untersuchten Mikrosäulen mit niedrigem Aspekt-Verhältnis, ist eine deutliche Zunahme der Halbwertsbreite der Quantenfilm-Emission auf $\text{FWHM} = 500 \text{ meV}$ zu beobachten. Das Histogramm der Peakwellenlängen-Verteilung, in rot dargestellt, zeigt zudem eine asymmetrische Häufigkeitsverteilung der spektralen Anteile der Quantenfilm-Lumineszenz zu längeren Wellenlängen. Daraus

kann bereits geschlussfolgert werden, dass lokale Inhomogenitäten des InGaN-Quantenfilms zu einer Verbreiterung der Emission führen. Ursache hierfür können zum einen mikroskopische Ensemble-Inhomogenitäten sein, also Unterschiede in den Emissionscharakteristika benachbarter Mikrosäulen. Zum anderen können lokale Kompositionsvariationen oder Schichtdickenveränderungen des ternären Quantenfilms entlang einzelner Mikrosäulen eine Verbreiterung der InGaN-Emission bewirken.

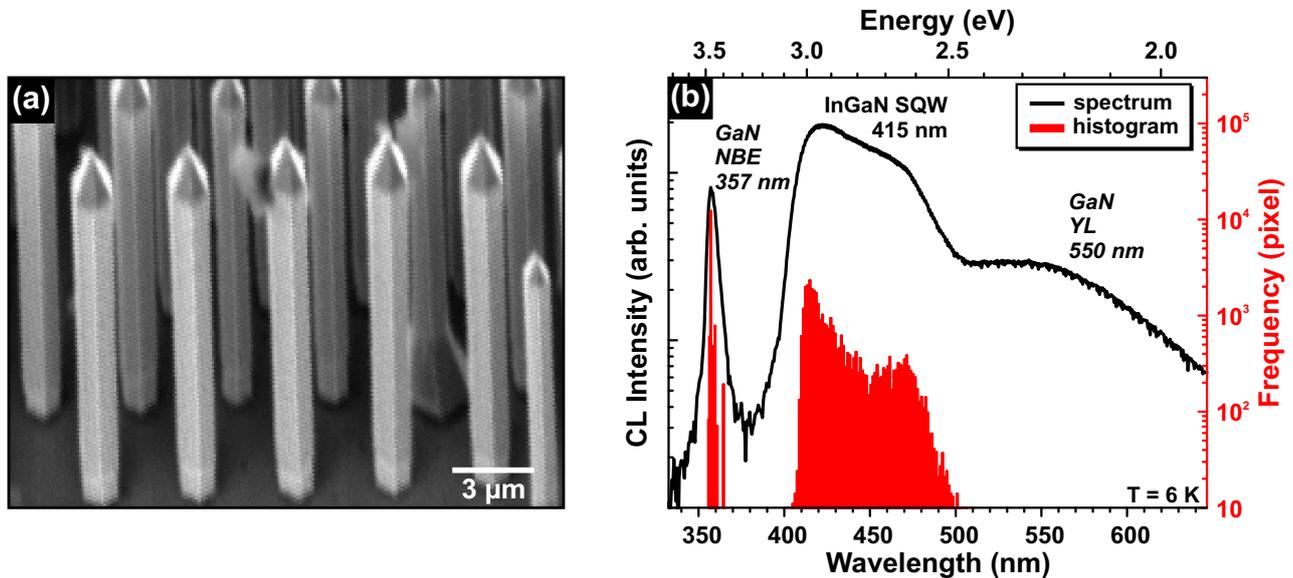


Abbildung 6.3: (a) Rasterelektronenmikroskopie-Bild der InGaN/GaN-Mikrosäulen auf dem planaren GaN-Puffer in schräger Ansicht, sowie (b) das orts-integrale CL-Spektrum (schwarz) und das Häufigkeitsverteilung der Peakwellenlängen (rot) bei $T = 6$ K.

Um die Auswirkung beider Effekte näher zu analysieren sind in Darstellung 6.3(a) das Intensitätsbild der Quantenfilm-Lumineszenz sowie (b) die Verteilung der Peakwellenlängen bei $T = 6$ K abgebildet. Die im SEM-Bild ersichtliche strukturelle Periodizität der dreidimensionalen Strukturen wird bezüglich der optischen Eigenschaften im CL-Intensitätsbild, wie auch im Wellenlängenbild reproduziert.

Im Intensitätsbild der InGaN-Emission im Spektralbereich von 400 - 500 nm wird deutlich, dass die Quantenfilm-Lumineszenz ausschließlich von den Mikrosäulen emittiert wird. Es ist keine parasitäre Emission vom unterliegenden, planaren Puffer zu beobachten. Die Mikrosäulen zeigen untereinander eine sehr uniforme Intensitätsdistribution. Erwartungsgemäß wird in Folge des unterdrückten Mantelwachstums am Fuß der Mikrosäule keine InGaN-Lumineszenz detektiert. Erst ab einer Höhe von ca. $1 \mu\text{m}$ setzt die Quantenfilm-Emission auf den non-polaren Facetten der Mikrosäulen ein. Ausgehend von dieser Stelle nimmt die CL-Intensität des Quantenfilms vertikal entlang der $\{1\bar{1}00\}$ -Oberflächen vom unteren Bereich zur Spitze hin kontinuierlich über eine Größenordnung zu. Wie die strukturellen STEM-Untersuchungen in Kapitel 6.1.2 beweisen, können Versetzungen und Basalflächenstapelfehler als Grund für niedrige CL-Intensität im unteren Bereich der Säulen ausgeschlossen werden. Somit muss die Zunahme der Quantenausbeute durch die intrinsischen Eigenschaften des Quantenfilms (z. B. Punktdefekte, Struktur- und Kompositionsinhomogenitäten) begründet sein.

Im Bereich der semi-polaren Spitze tritt hingegen eine deutliche Abnahme der CL-Intensität des Quantenfilms auf. Diese kann auf die Veränderung der Dicken der semi-polaren Mantel-Schichten und der damit direkt verbundenen Änderung der Anregungsbedingungen des Primärelektronenstrahls zurückgeführt werden. Eine zusätzliche Abnahme der Intensität bedingen die inhärenten Polarisationsfelder entlang der c -Richtung, die zu einer Reduktion des Überlappintegrals von Elektron- und Lochwellenfunktion führen.

Im Gegensatz zu den deutlich kürzeren Mikrosäulen in Kapitel 5 kann hier jedoch allein aus den geometrischen Verhältnissen der Säulen geschlossen werden, dass die semi-polaren Facetten nur einen geringen Anteil zur Gesamtemission beitragen.

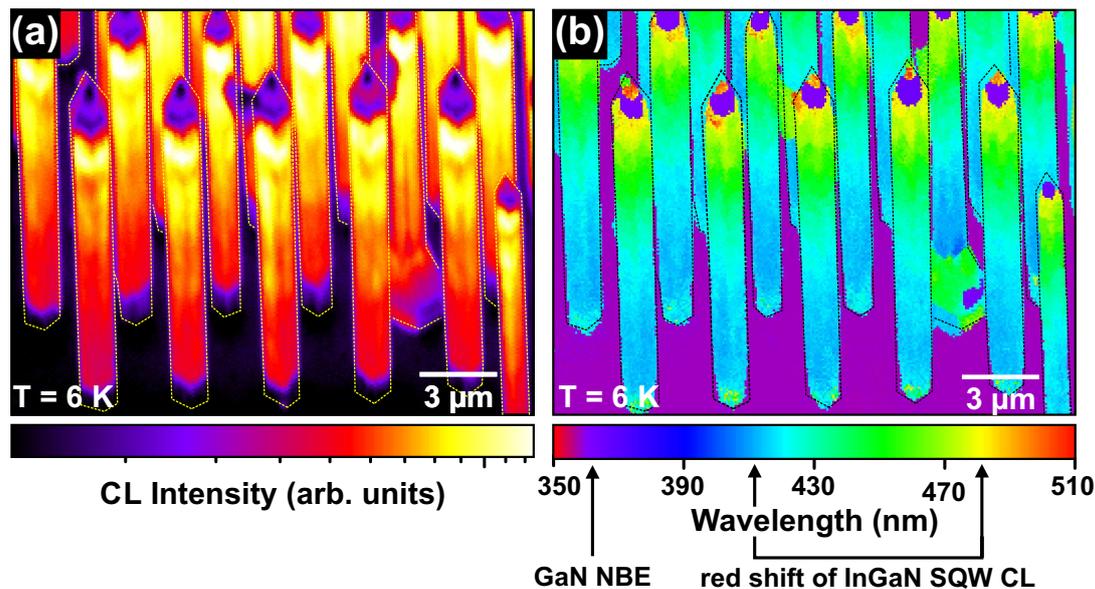


Abbildung 6.4: (a) CL-Intensitätsbild der InGaN-Quantenfilm-Lumineszenz im Wellenlängenbereich von 400 nm - 500 nm; (b) Peak-Wellenlängenverteilung im Spektralbereich von 350 nm - 510 nm bei $T = 6$ K.

Die in Abbildung 6.4(b) dargestellte Verteilung der Peakwellenlängen im Spektralbereich von 350 nm bis 500 nm weist eine kontinuierliche Rotverschiebung der InGaN-Lumineszenz von der Basis zum oberen Bereich der Mikrosäulen auf. Von dem hell-blauen Farbkontrast an der Basis der Mikrosäulen bei 410 nm ausgehend schiebt die Quantenfilm-Emission entlang der $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten zu längeren Wellenlängen auf bis zu 480 nm (gelber Farbkontrast) am Übergang zu den semi-polaren Facetten.

Die monochromatischen CL-Intensitätsbilder in Abb. 6.5 veranschaulichen detailliert die spektrale Verschiebung der InGaN-Emission entlang der non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten der Mikrosäulen. Alle CL-Intensitätsbilder sind für den direkten Vergleich der Intensitäten auf das gleiche Minimum und Maximum skaliert. Die intensitätsschwache, hochenergetische Schulter der InGaN-Lumineszenz zwischen 394 - 410 nm beginnt zunächst im unteren Bereich der Mikrosäulen, wie in Abb. 6.5(a) sichtbar. Zu längeren Wellenlängen, im Spektralbereich zwischen 410 - 425 nm (Abb. 6.5(a)) ist die Emission deutlich zum mittleren Bereich der Mikrosäulen verschoben. Damit verbunden ist eine Zunahme der CL-Intensität. Mit steigender Wellenlänge lässt sich weiter beobachten, wie der Emissionsort

der InGaN-Lumineszenz entlang der $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten wandert. Um 460 nm (Abb. 6.5(d)) wird die InGaN-Lumineszenz maximal intensiv, sodass die oberen Bereiche der Säulen, unterhalb der Spitze, nun am stärksten emittieren (gelb bis weißer Kontrast).

Der Kontrast für das monochromatische CL-Intensitätsbild (Abb. 6.5(f)) im Spektralbereich von 510 - 538 nm ist um den Faktor 4 angehoben, um die Intensitätsverteilung auf den semi-polaren Facetten der Spitze hervorzuheben. Wie bereits schon für die Mikrosäulen mit niedrigem Aspekt-Verhältnis nachgewiesen (siehe Kapitel 5.2), tritt eine deutliche Rotverschiebung der InGaN-Emission auf den semi-polaren Oberflächen auf als Folge des unterschiedlich starken Indiumeinbaus sowie einer anderen Wachstumsrate des Quantenfilms. Gleichzeitig führt der QCSE auf den semi-polaren Facetten zu einer weiteren Rotverschiebung der Lumineszenz.

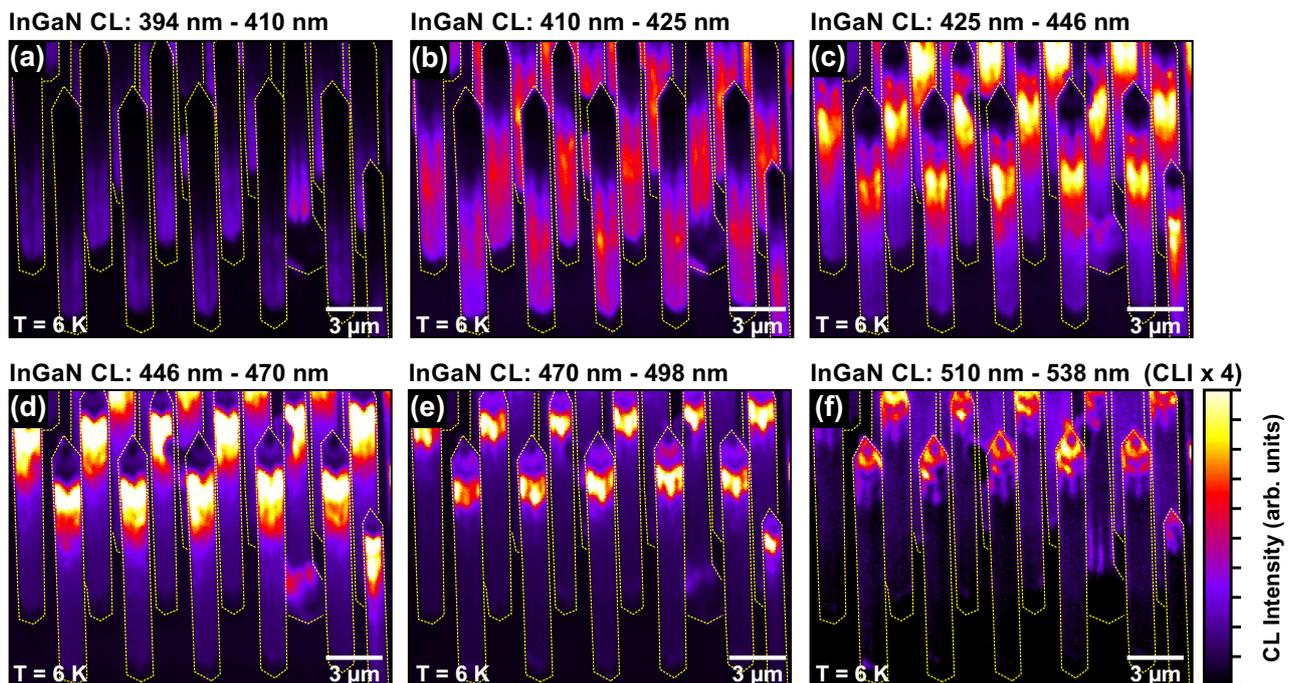


Abbildung 6.5: Spektrale Verschiebung der InGaN-Emission vertikal entlang der Mikrosäulen visualisiert durch eine Serie monochromatischer Intensitätsbilder bei Tieftemperatur ($T = 6$ K).

Der charakteristische Wellenlängengradient entlang der Mikrosäulen wird uniform für alle Strukturen beobachtet. CL-Untersuchungen über größere Probenbereiche zeigen lateral nur geringfügige Schwankungen der Peakwellenlängen bzw. des Betrags der spektralen Verschiebung. Daraus kann geschlossen werden, dass die Ursache der großen Halbwertsbreite von $\text{FWHM} = 500$ meV im orts-integralen CL-Spektrum eine spektrale Verschiebung der Quantenfilm-Lumineszenz entlang einzelner Mikrosäulen ist.

Um die Linienform der exzitonischen Quantenfilm-Lumineszenz näher zu analysieren sind in Abb. 6.6(a) lokale Spektren entlang einer einzelnen Mikrosäule dargestellt. In den lokalen Spektren ist erkennbar, dass die graduelle Verschiebung der InGaN-Lumineszenz zusätzlich verbunden ist mit einer spektralen Verbreiterung der QW-Emission. Die Entwicklung der Halbwertsbreite ist in Abhängigkeit von der Position vertikal entlang einer Säule in Abb. 6.6(b) dargestellt. Im unteren Drittel

ist die Halbwertsbreite vergleichsweise konstant mit $\text{FWHM} = 175 \text{ meV}$. Oberhalb einer Höhe von $x = 3,5 \mu\text{m}$ nimmt die Halbwertsbreite kontinuierlich zum oberen Bereich der Mikrosäule auf bis zu $\text{FWHM} = 250 \text{ meV}$ zu. Dieses Verhalten wird für mehrere Mikrosäulen deutlich sichtbar im Verhältnis der Peak-Intensität zur integralen Intensität des InGaN-Quantenfilms in Abb. 6.6(c). Im unteren Bereich der Mikrosäulen drückt sich kleinere Linienbreite des InGaN-QWs durch einen dunkleren Kontrast aus. Zum oberen Bereich nimmt die Halbwertsbreite der Quantenfilm-Emission deutlich zu, erkennbar am weißen Kontrast.

Eine Steigerung der Halbwertsbreite mit zunehmender Emissionswellenlänge wird auch in der Literatur für semi- und non-polare InGaN-Quantenfilme berichtet [273]. Generell kann die spektrale Verbreiterung der Quantenfilm-Lumineszenz durch die Zunahme von kurzreichweitigen Bandlückenfluktuationen erklärt werden. Wie anschließend in Kap. 6.2 nachgewiesen, ist hier im Speziellen die Ausbildung von In-reichen bzw. In-armen Gebieten im Quantenfilm ein Grund für diese Bandlückenfluktuationen. Diese nanoskopischen Kompositionsschwankungen führen zu örtlichen Inhomogenitäten in der Potentiallandschaft des Quantenfilms.

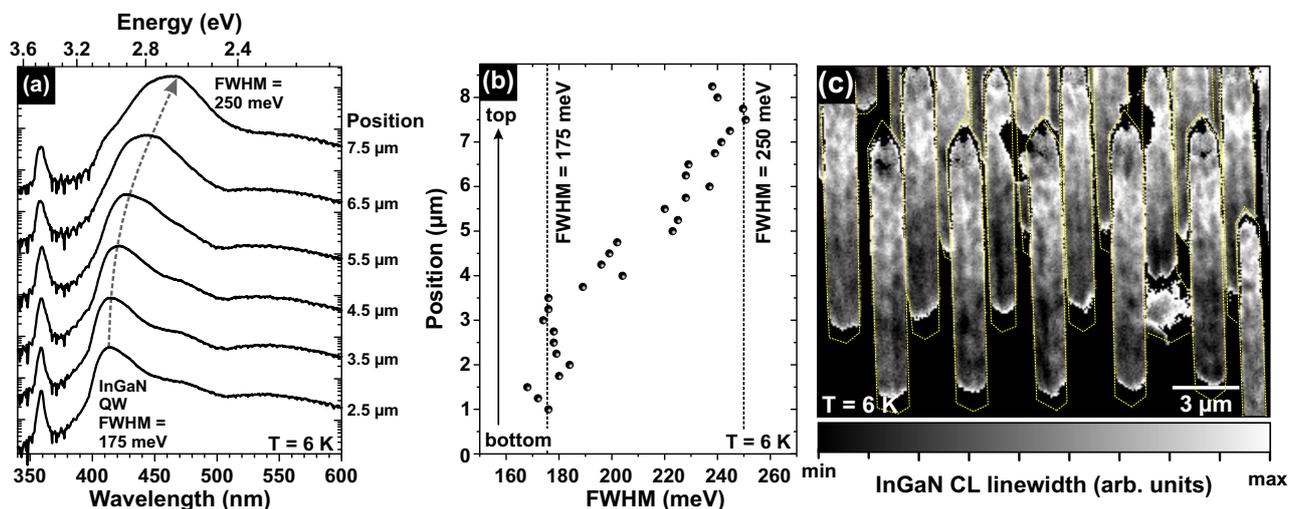


Abbildung 6.6: Spektrale Entwicklung der InGaN-Lumineszenz entlang der non-polaren Facette: (a) lokale Spektren entlang einer einzelnen Mikrosäule; (b) Halbwertsbreite der QW-Emission und (c) CL-Mapping der QW-Linienbreite bei $T = 6 \text{ K}$.

6.1.2 Mikroskopische Korrelation der Komposition, Schichtdicke und Lumineszenz des Quantenfilms

Um die Ursache des Wellenlängengradienten der Quantenfilm-Lumineszenz weitergehend zu analysieren wurden in einer Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Prof. Rosenauer an der Universität Bremen analytische HAADF-Untersuchungen direkt mit Kathodolumineszenz-Messungen im STEM korreliert. Da für die quantitative Bestimmung der Komposition aus dem Z-Kontrast eine homogene Schichtdicke der TEM-Lamelle nötig ist, wurden die Mikrosäulen für die HAADF-Messungen durch eine fokussierte Ionenstrahlpräparation im Querschnitt präpariert [274] (siehe Kapitel 3.3.4). Die Schichtdicke der TEM-Lamelle nach der FIB-Präparation beträgt ca. 120 nm. Die STEM-HAADF-Messungen wurden in einem Rastertransmissionselektronenmikroskop vom Typ FEI Titan 80/300 G1

mit einer Korrektur der sphärischen Aberration durchgeführt. Um die Elektronenstrahlschädigung der Lamelle zu verhindern, wurden die Messungen bei einer niedrigen Elektronendosis von $0,2 \text{ pAs/nm}^2$ und einer Beschleunigungsspannung von 300 kV unter einem Konvergenzwinkel von 9 mrad angefertigt [275]. In Referenz [274] und [276] konnte gezeigt werden, dass unter den gewählten Abbildungsbedingungen keine Veränderung der Komposition von ternären InGaN-Verbindungen auftritt.

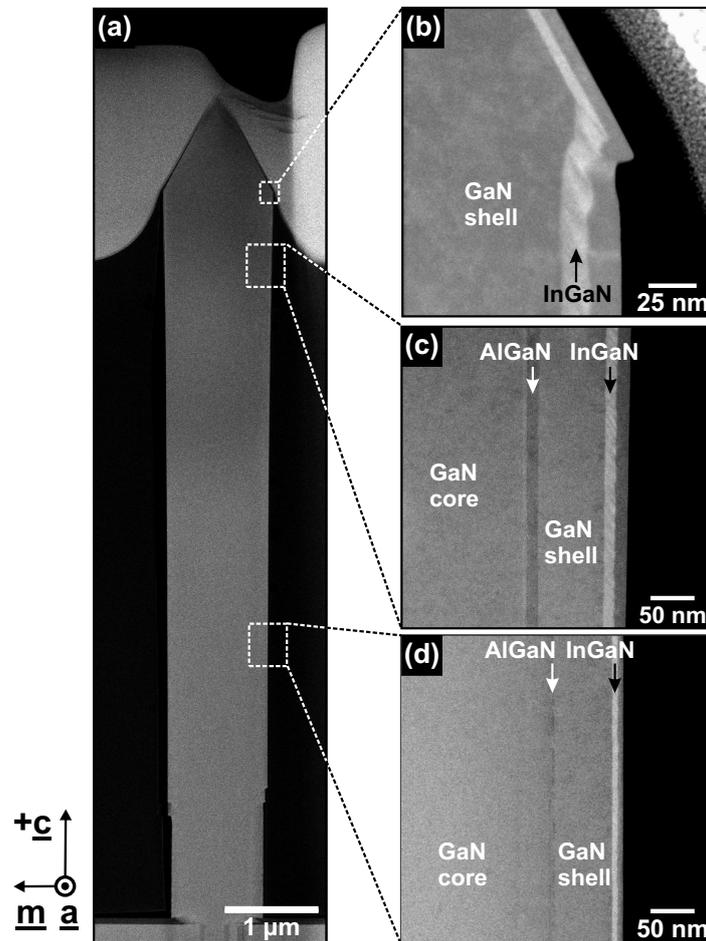


Abbildung 6.7: STEM-Analyse der Mikrosäule in $[11\bar{2}0]$ -Projektion: (a) Übersichtsaufnahme der kompletten Mikrosäule; vergrößerte Aufnahmen der Mantel-Schichten aus dem (a) Übergang zur semi-polaren Facette; (b) oberen und (c) unteren Bereich der non-polaren Facette [277].

Strukturelle Analyse der Kern- und Mantel-Schichten

In Abbildung 6.7 sind die STEM-Aufnahmen einer Mikrosäule im HAADF-Kontrast dargestellt. Damit der Elektronenstrahl für die STEM-Analyse parallel zum Quantenfilm einfällt wurde als Zonenachse die $[11\bar{2}0]$ -Richtung gewählt. In der Übersichtsaufnahme (Abb. 6.7(a)) der kompletten Struktur erscheint der GaN-Puffer im unteren Bereich als heller Kontrast und direkt darauf die SiO_2 -Maske als dunklerer Kontrast.

Das STEM-Bild zeigt, dass die GaN-Mikrosäule kohärent aus dem Maskenloch entlang der c -Richtung wächst. Strukturelle STEM- und TEM-Untersuchungen der Mikrosäulen weisen eine hohe Materialqualität sowie die Abwesenheit ausgedehnter Kristalldefekten im GaN-Kern nach. Anders als für die koaxiale Mikrosäulen-LED in Kapitel 5.3 sind die Mantel-Schichten jedoch nicht auf der kompletten

dreidimensionalen Struktur gewachsen. In Übereinstimmung mit den SEM-Analysen (siehe Abb. 6.2) setzt das Mantel-Wachstum erst ab einer Höhe von ca. 1 μm oberhalb des planaren Puffers ein. Entlang der Mikrosäule ist eine leichte Zunahme des Säulendurchmesser von 1080 nm auf 1180 nm bis zum Übergang zu den semi-polaren $\{1\bar{1}01\}$ -Facetten zu verzeichnen.

Die Abbildungen 6.7(c) und (d) zeigen höher aufgelöste HAADF-Aufnahmen aus dem Bereich der non-polaren Mantel-Schichten. In den HAADF-Bildern erscheint der InGaN-Quantenfilm im helleren Kontrast und die AlGaN-Schicht im dunkleren Kontrast im Vergleich zum umgebenden GaN-Material. Beide Schichten verlaufen parallel zur $\{1\bar{1}00\}$ -Facette. In der STEM-Aufnahme in Abb. 6.7(d) ist sichtbar, dass die AlGaN-Schicht im unteren Bereich der Mikrosäule nicht komplett geschlossen ist. Vertikal entlang der Mikrosäule nimmt Dicke die AlGaN-Schicht von $(5,0 \pm 0,2)$ nm auf $(13,7 \pm 0,2)$ nm vom unteren zum oberen Bereich zu (siehe Abb. 6.7(c)). Die vergrößerte Schichtdicke bewirkt zudem, dass die AlGaN-Schicht im oberen Bereich komplett geschlossen ist. Eine Schichtdickenzunahme wird auch für die GaN-Mantel-Schicht gemessen. Vertikal entlang der $\{1\bar{1}00\}$ -Facette verdickt sich die GaN-Schicht von $(66,5 \pm 0,5)$ nm auf $(77,0 \pm 0,5)$ nm. Weiterhin weist STEM-Analyse auch eine Verdickung der optisch aktiven Schicht um den Faktor zwei nach. So nimmt die InGaN-Schichtdicke von $(6,0 \pm 0,2)$ nm auf $(13,1 \pm 0,2)$ nm zum oberen Bereich zu (siehe Abb. 6.8(c)).

Wie Abb. 6.7(b) beweist, ist die Schichtdicke des InGaN-Quantenfilms als Folge einer geringeren Wachstumsrate auf der $\{1\bar{1}01\}$ -Facette gegenüber der $\{1\bar{1}00\}$ -Facette um mehr die Hälfte reduziert. So beträgt Schichtdicke des Quantenfilms auf der semi-polaren Facette $(6,8 \pm 0,2)$ nm. Die Aufnahme belegt zudem, dass der Quantenfilm am Übergang zur semi-polaren Spitze wesentlich rauere Grenzflächen ausbildet.

Betrachtet man den HAADF-Kontrastverlauf des InGaN-Quantenfilms in Abb. 6.7(b) und (c) genauer, ist weiterhin erkennbar das örtliche Intensitäts-Inhomogenitäten auftreten. Da die Schichtdicke der TEM-Lamelle in diesen Bereichen gleichmäßig konstant ist, kann geschlossen werden, dass die Intensitätsvariationen des Z-Kontrastes durch eine lokale Veränderung der Komposition hervorgerufen werden. Dieser Aspekt wird in anschließend in Kapitel 6.2 näher betrachtet.

Bestimmung der Indiumkonzentration im non-polaren Quantenfilm

Wie in Kapitel 3.3.2 erläutert, ist die Intensität von inkohärent, elastisch gestreuten Elektronen im Weitwinkel-Kontrast abhängig von der Materialkomposition der Schicht. Die einfallenden Elektronen benötigen zur Durchquerung einer 120 nm dicken TEM-Lamelle eine Zeit von unter einer Femtosekunde. Im Gegensatz dazu liegt die Frequenz der Phononen im Pikosekundenbereich, sodass die Elektronen, die durch den Kristall propagieren, die Schwingung der einzelnen Atome nicht „sehen“ [278, 279]. Das Potential, das auf ein Elektron wirkt, entspricht also dem Potential einer eingefrorenen Gitterkonfiguration („frozen-lattice“) bei welcher sich die Kristallatome nicht auf ihren Gleichgewichtspositionen befinden. Da die Schwingungsdauer eines Atoms kleiner als die Zeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Elektronen ist, entspricht das Potential für jedes Elektron einer anderen Gitterkonfiguration des Kristalls. In der „frozen-lattice“-Simulation wird mittels eines „Multislice“-Verfahrens die Propagation der Elektronenwelle durch den Kristall simuliert und die den Kristall verlassende Wellenfunktion berechnet um die Intensität am HAADF-Detektor zu bestimmen

[274, 280]. Durch den Vergleich der normierten experimentellen HAADF-Intensitäten mit „frozen-lattice“-Simulationen ist eine quantitative Auswertung und so die Bestimmung des Indiumgehalts im Quantenfilm möglich.

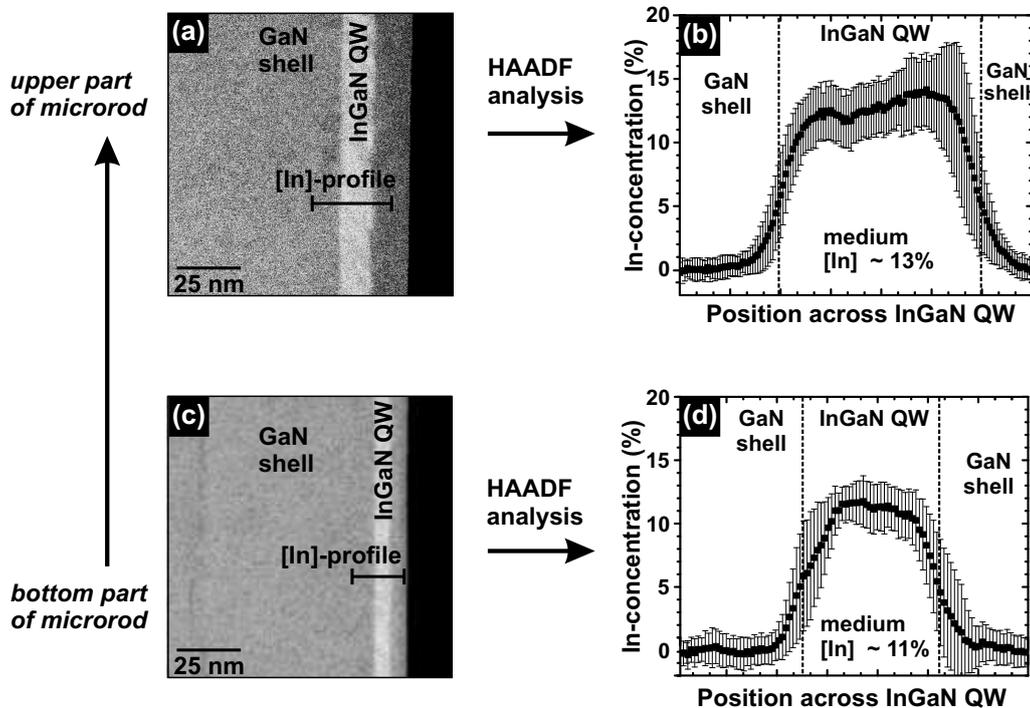


Abbildung 6.8: Z-Kontrast-Analyse des InGaN-Quantenfilms: STEM-HAADF-Bilder des InGaN-Quantenfilm aus dem (a) oberen Bereich und (b) unteren Bereich der Mikrosäule. (b) und (c) Indiumkonzentrations-Profile vertikal zum Quantenfilm [277].

Abbildung 6.8 zeigt hochauflösende HAADF-Aufnahmen vom Quantenfilm aus dem (a) oberen Bereich und (c) unteren Bereich der Mikrosäule. Unter der Verwendung des beschriebenen Verfahrens wurden die „frozen-lattice“-Simulationen mit den normierten HAADF-Intensitäten in Abb. 6.8(a) und (c) verglichen und der mittlere Indiumgehalt bestimmt. Als Referenzwert für eine Indiumkonzentration von 0% dient das HAADF-Signal der inneren GaN-Schicht. In Abb. 6.8(b) und (d) sind die erhaltenen Indium-Konzentrationsprofile senkrecht zum Quantenfilm dargestellt. Der mittlere Indiumgehalt des Quantenfilms beträgt im oberen Bereich der Mikrosäule ($13 \pm 1\%$). Im Vergleich dazu wird eine niedrigere mittlere Indiumkonzentration von ($11 \pm 1\%$) im unteren Bereich gemessen. Aus den HAADF-Messungen lässt sich feststellen, dass entlang der Mikrosäule sowohl eine Zunahme der InGaN-Quantenfilm-Dicke wie auch der mittleren Indium-Konzentration auftritt.

Die Bestimmung der Quantenfilm-Dicke und Komposition wurde an mehreren Punkten vertikal entlang der $\{1\bar{1}00\}$ -Facette durchgeführt und ist zusammenfassend in Abb. 6.10 dargestellt, die später diskutiert werden soll.

STEM-CL-Analyse der Quantenfilm-Lumineszenz im Querschnitt

Um die spektrale Verschiebung der Quantenfilm-Lumineszenz entlang der non-polaren Facette mit höchster örtlicher Auflösung zu bestimmen, wurden STEM-CL-Untersuchungen bei Tieftemperatur

durchgeführt. Anders als für die HAADF-Untersuchungen wurden die Mikrosäulen für die STEM-CL-Messungen durch eine konventionelle Dünnschliff-Präparation im Querschnitt präpariert (siehe Kapitel 3.3.4). Die STEM-CL-Messungen wurden bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und einem Strahlstrom von 130 pA angefertigt.

Das STEM-Bild der Probe in Abb. 6.9(a) zeigt im unteren Bereich die planare GaN-Pufferschicht und darauf die koaxiale InGaN/GaN-Mikrosäule im Hellfeld-Kontrast. In der STEM-Aufnahme ist eine Kontrastveränderung ausgehend vom unteren Bereich zum oberen Bereich der Mikrosäule sichtbar. Grund hierfür ist der Schichtdickengradient der TEM-Lamelle entlang Säule durch die keilförmige TEM-Präparation.

Dieser Schichtdickengradient äußert sich auch im gleichzeitig aufgenommenen panchromatischen Intensitätsbild in Abb. 6.9(b). So nimmt die integrale CL-Intensität im Gebiet des GaN-Kerns entlang der Säule zum oberen, dünnen Bereich ab. Demgegenüber wird für die Quantenfilm-Lumineszenz von den $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten trotz der reduzierten Schichtdicke der TEM-Lamelle keine Abnahme der Intensität beobachtet. Dieses Verhalten ist konsistent mit den Ergebnissen den SEM-CL-Untersuchungen an unpräparierten Mikrosäulen in Kapitel 6.1.1 in denen eine Zunahme der InGaN-CL-Intensität entlang der Mikrosäule nachgewiesen wurde.

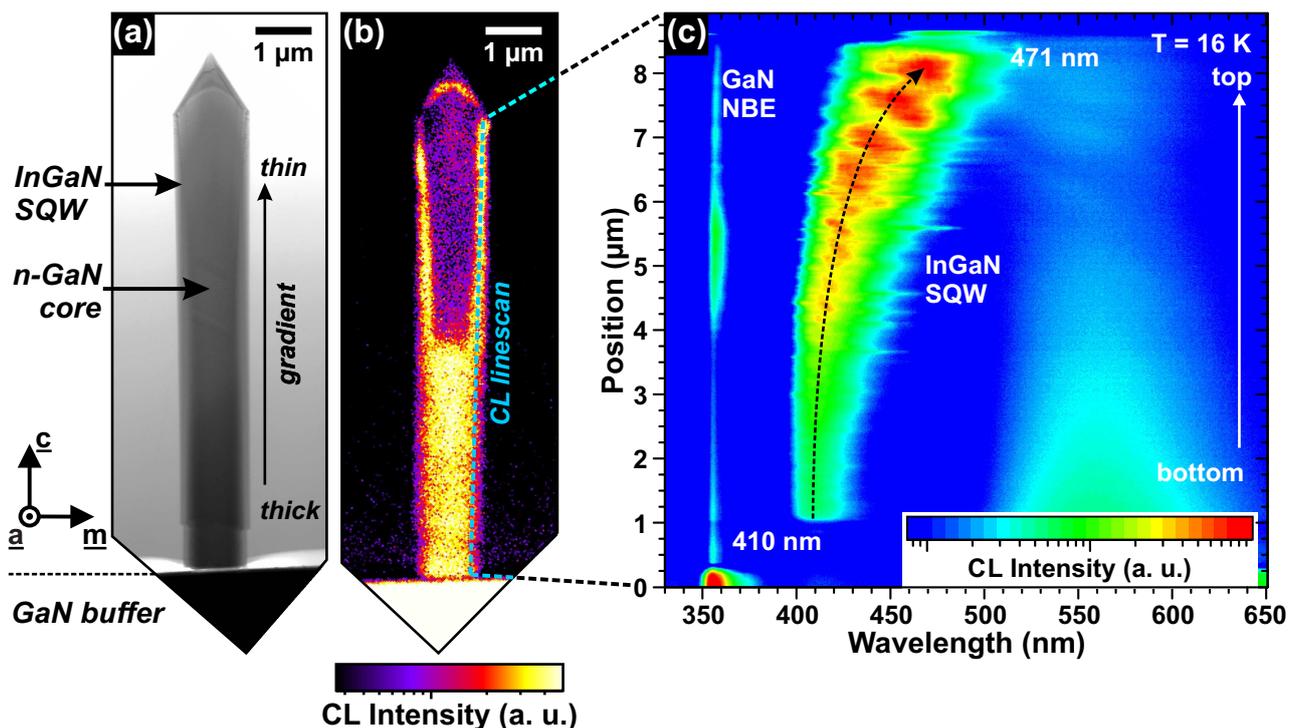


Abbildung 6.9: Ortsaufgelöste Korrelation der strukturellen und optischen Eigenschaften im Querschnitt einer InGaN/GaN-Mikrosäule: (a) STEM-Bild im Hellfeld-Kontrast; (b) panchromatisches CL-Intensitätsbild und (c) CL-Linescan vertikal entlang der non-polaren Seitenfacette bei $T = 16$ K [277].

Die spektrale Entwicklung der Quantenfilm-Lumineszenz vertikal entlang der $\{1\bar{1}00\}$ -Facette ist im CL-Linescan (Abb. 6.9(c)) visualisiert. An der örtlichen Position von $x = 0 - 0,25 \mu\text{m}$ befindet sich der Elektronenstrahl noch auf dem GaN-Puffer, sodass im Spektrum die bandkantenennahe Lumineszenz

bei 357 nm dominiert. Ab einer Höhe von $x = 1,0 \mu\text{m}$ erscheint im CL-Linescan die Emission des InGaN-Quantenfilms bei einer spektralen Position von 410 nm. Weiter entlang der c -Richtung wird bis zu einer Position von $x = 5,0 \mu\text{m}$ nur eine kleine Verschiebung der InGaN-Lumineszenz um 50 meV zu 423 nm detektiert. Die Halbwertsbreite der Quantenfilm-Emission beträgt in diesem Bereich ca. 170 meV. Wird der Elektronenstrahl nun weiter entlang der Säule geführt, tritt eine stärkere spektrale Verschiebung der InGaN-Lumineszenz zu 471 nm zum obersten Bereich auf. Dies entspricht einer betragsmäßigen Energieverschiebung von 340 meV. Mit der Verschiebung der Emissionswellenlänge ist auch eine Zunahme der Linienbreite zu ca. 270 meV sichtbar.

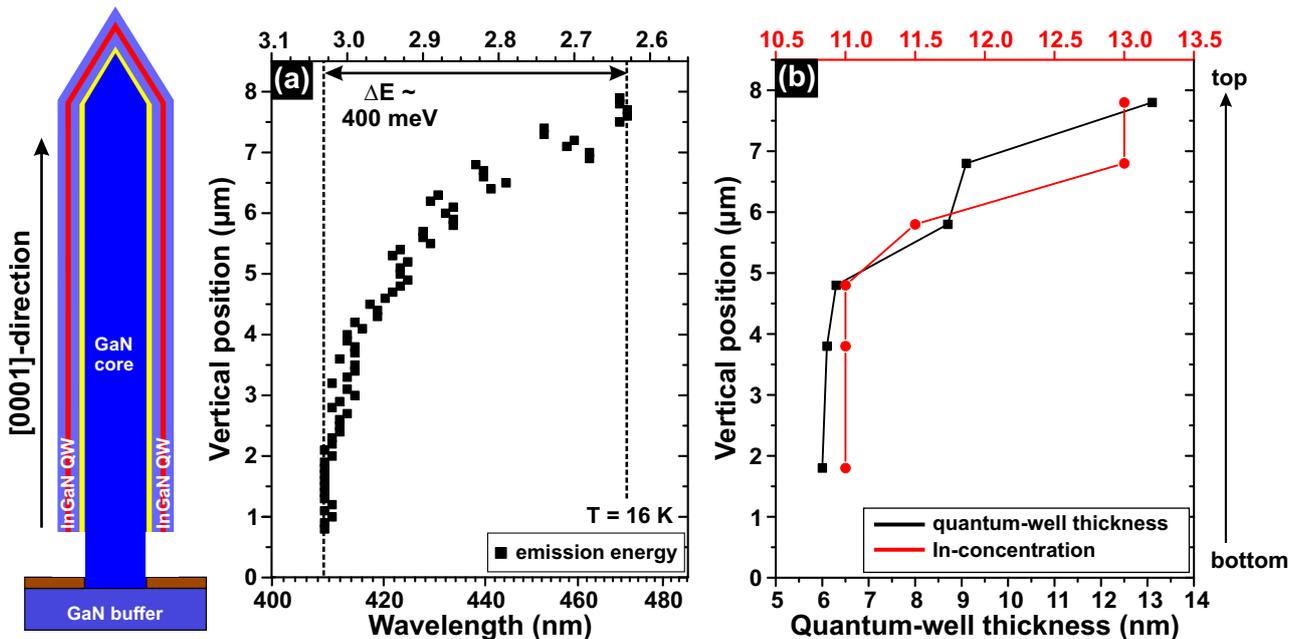


Abbildung 6.10: Korrelation der (a) Quantenfilm-Lumineszenz mit der (b) Quantenfilm-Schichtdicke (schwarz) und mittleren Indiumkonzentration (rot) [277].

Abbildung 6.10(a) zeigt zusammenfassend die Entwicklung der InGaN-Peakwellenlänge in Abhängigkeit von der Höhe der Mikrosäule. Vergleichend dazu sind in Abb. 6.10(b) die aus den HAADF-Messungen bestimmte Quantenfilm-Schichtdicke und mittlere Indiumkonzentration entlang der Mikrosäule abgetragen. Es ist festzustellen, dass sowohl die Quantenfilm-Dicke wie auch der mittlere Indiumgehalt bis zu einer Höhe von $x = 5,0 \mu\text{m}$ vergleichsweise konstant bleiben. Konsistent dazu tritt in diesem Bereich nur eine schwache Verschiebung der InGaN-Emission zu längeren Wellenlängen auf. Erst ab einer Höhe von $x = 5,0 \mu\text{m}$ steigt die Schichtdicke des InGaN-Quantenfilms signifikant von $(6,1 \pm 0,2) \text{ nm}$ auf $(13,1 \pm 0,2) \text{ nm}$ zur Spitze der Säule an. Die Zunahme der Schichtdicke bedingt eine Abnahme der Einschluss-Energie im Quantenfilm, was konsequenter eine Verschiebung der Emission zu längeren Wellenlängen erklärt. Während sich die Quantenfilm-Dicke verdoppelt, kommt es zu einem Anstieg der mittleren Indiumkonzentration von 11% zu 13%. Wie von Keller *et al.* in Referenz [281] nachgewiesen, ist eine höhere Wachstumsrate der InGaN-Schicht mit einer Zunahme der Indiumkonzentration verbunden. So kann die zunehmende Wachstumsrate entlang der non-polaren Facette der Mikrosäule zu einer Erhöhung des mittleren Indiumgehalts führen.

Durch die zunehmende QW-Dicke und Indiumkonzentration tritt oberhalb einer Höhe von $x = 5,0 \mu\text{m}$

die stärkste Verschiebung der InGaN-Lumineszenz zu längeren Wellenlängen auf bis 471 nm auf. Die Messungen zeigen einen direkten Zusammenhang zwischen der Emissionswellenlänge, der Quantenfilm-Schichtdicke und der Komposition der InGaN-Schicht.

Ein Grund für die Veränderung der Schichtdicke und Komposition können inhomogene Wachstumsbedingungen entlang der non-polaren Facetten sein. Der Temperaturunterschied zwischen der Basis und der Spitze der Mikrosäulen während des Wachstumsprozesses beträgt nach Schimpke *et al.* nur ca. $0,1^{\circ}\text{C}$ und kann als Ursache ausgeschlossen werden [258].

Eine weitere mögliche Ursache für die Inhomogenität des Quantenfilms entlang der Facette kann eine reduzierte Gasphasen-Diffusion während des MOVPE-Wachstums durch die hohe Dichte an Mikrosäulen sein. Für ein detailliertes Modell der Gasphasen-Diffusion sei auf Berechnungen von Fang *et al.* für das orts-selektive Wachstum von dreidimensionalen InGaN/GaN-Heterostrukturen in Quelle [247] verwiesen. Durch die reduzierte Gasphasen-Diffusion in Richtung Substrat bildet sich ein Konzentrationsgradient der verschiedenen Spezies in der Gasphase aus. Demnach ist anzunehmen, dass eine Abnahme der Schichtdicke und Indiumkonzentration zum unteren Bereich der Mikrosäulen auf eine reduzierte Konzentration der In- und Ga-Precusoren zurückzuführen ist. Vergleichbare Resultate berichten auch Gibbon *et al.* für selektiv gewachsene GaInAsP-Strukturen [282] und Wunderer *et al.* für semi-polare InGaN/GaN-LEDs [252].

Eine Erhöhung der Wachstumstemperatur kann zu einer verbesserten Gasphasen-Diffusion führen, was in einer wesentlich besseren Homogenität der Emissionscharakteristik resultiert, wie von Mounir *et al.* in Ref. [283] nachgewiesen wurde. Auch eine Verkleinerung des Reaktordrucks kann zu einer Erhöhung der Gasphasen-Diffusion und damit zu einer konstanten QW-Dicke und Komposition führen.

Betrachtet man den CL-Linescan in Abb. 6.9(c) genauer, ist sichtbar, dass kein kontinuierlicher Wellenlängengradient der InGaN-Emission vorliegt. Als Ursache können „Whisper gallery“-Moden, wie z. B. von Nobis und Grundmann in ZnO-Säulen nachgewiesen [284], ausgeschlossen werden, da die Säulen nach der TEM-Präparation die dafür nötige hexagonale Symmetrie nicht ausweisen. Eine weitere Erklärung für die die Oszillationen bieten Vielstrahl-Interferenzen an der Oberfläche der TEM-Lamelle. Ausführliche STEM-CL-Untersuchungen, zeigen jedoch dass diese Oszillationen unabhängig von der Lamellendicke auftreten, sodass auch Schichtdickeninterferenzen die spektrale Charakteristik nicht erklären können. Dieses Ergebnis wird zusätzlich durch das homogene Emissionsverhalten der bandkanten Lumineszenz im CL-Linescan in Abb. 6.9(c) unterstützt.

Die abrupten spektralen Sprünge der InGaN-Lumineszenz sind ein starker Hinweis für Bandlückenfluktuationen auf Submikrometer-Längenskala. Dabei werden die erzeugten Ladungsträger und Exzitonen in den Minima der Potentiallandschaft lokalisiert und rekombinieren von dort mit einer veränderten Übergangsenergie. Einen genaueren Aufschluss über die Schwankungen der Komposition und die Auswirkung auf die optischen Eigenschaften auf nanoskopischer Skala geben die CL- und HAADF-Messungen im folgenden Kapitel.

6.2 Analyse von Potentialfluktuationen im InGaN-Quantenfilm

Mikroskopische Lumineszenzverteilung im Querschnitt

Um die optischen Eigenschaften der koaxialen Mikrosäulen weitergehend zu untersuchen, wurde die die Lumineszenzverteilung im Querschnitt über das STEM-CL-Mapping in Abb. 6.11 bei $T = 16$ K analysiert. Das panchromatische Intensitätsbild und die Peakwellenlängenverteilung vom oberen Drittel der Mikrosäule sind Abb. 6.11(a) und (b) abgebildet. Zur näheren Analyse der Linienform und Halbwertsbreite der einzelnen Rekombinationskanäle sind in Abb. 6.12 lokale Spektren aus den verschiedenen Wachstumsdomänen dargestellt (Position in Abb. 6.11(a) markiert). Übereinstimmend mit den Ergebnissen aus Kapitel 5 wird die höchste CL-Intensität wiederum vom non-polaren InGaN-Quantenfilm detektiert. Verglichen dazu ist CL-Intensität im Bereich des GaN-Kerns um eine Größenordnung niedriger.

Die örtliche Verteilung der Peakwellenlänge (Abb. 6.11(b)) veranschaulicht, dass der Si-dotierte GaN-Kern von der gelben Defekt-Lumineszenz dominiert wird. Wie das lokale Spektrum in Abb. 6.12 aus dem Bereich des GaN-Kerns beweist, tritt keine exzitonische Lumineszenz auf. In Folge des erhöhten Einbaus an Punktdefekten im dreidimensionalen Wachstumsprozess (siehe Kap. 5.1) rekombiniert der Großteil der generierten Überschussladungsträger im GaN-Kern über tiefe Störstellen strahlend unter der Emission der gelben Defekt-Lumineszenz bzw. nicht-strahlend nach Schottky-Read-Hall.

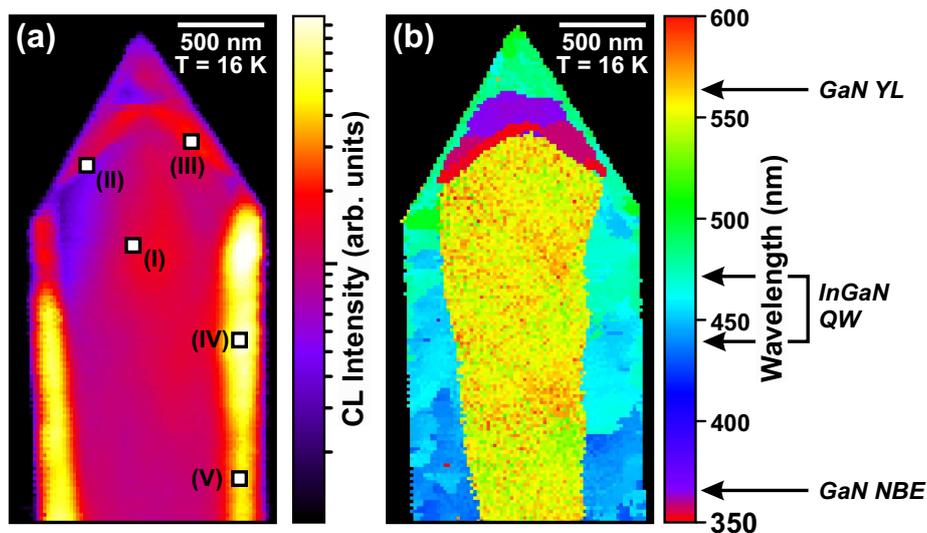


Abbildung 6.11: STEM-CL-Mapping vom oberen Drittel der InGaN/GaN-Mikrosäule bei $T = 16$ K: (a) panchromatisches Intensitätsbild, (b) örtliche Verteilung der Peakwellenlänge [277].

Im Gegensatz zum GaN-Kern ist die Lumineszenz der semi-polaren GaN-Mantel-Schicht durch die bandkanten nahe Emission bei 357 nm gekennzeichnet (siehe lokales Spektrum Abb. 6.12). Die gelbe Defekt-Lumineszenz ist im Verhältnis zur bandkanten nahe Emission signifikant schwächer. Dieser Aspekt weist auf eine niedrigere Punktdefektdichte in den Mantel-Schicht hin. Zusätzlich dazu wird auch eine schmalbandige Emission der AlGaIn-Schicht auf der semi-polaren Spitze bei 351 nm detektiert.

In den non-polaren Mantel-Schichten ist die InGaN-Lumineszenz in einem weiten Bereich um die eigentliche Position des Quantenfilms dominant. Die Ausdehnung des Gebiets wird durch die Diffusions-

länge der Ladungsträger bzw. Exzitonen innerhalb der umgebenden GaN-Barrieren bestimmt. Da die InGaN-Emission im gesamten Gebiet der non-polaren GaN-Mantel-Schichten dominant auftritt, muss die Diffusionslänge wesentlich größer sein als die Dicke dieser GaN-Schichten.

In der Verteilung der Peakwellenlängen ist eine generelle Rotverschiebung der InGaN-Emission entlang der beiden $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten ersichtlich. Im unteren Bereich des Mappings überwiegt eine Emission um 440 nm, die auf bis zu 470 nm am Übergang zur semi-polaren Facette schiebt. Der spektrale Verschiebung ist auch in den lokalen Spektren des Quantenfilms in Abb. 6.12 (Position IV und V) sichtbar. Auf den semi-polaren Facetten tritt durch die Veränderung der Dicke und Komposition des Quantenfilms sowie durch den Einfluss der Polarisationsfelder eine Verschiebung der QW-Lumineszenz zu längeren Wellenlängen auf.

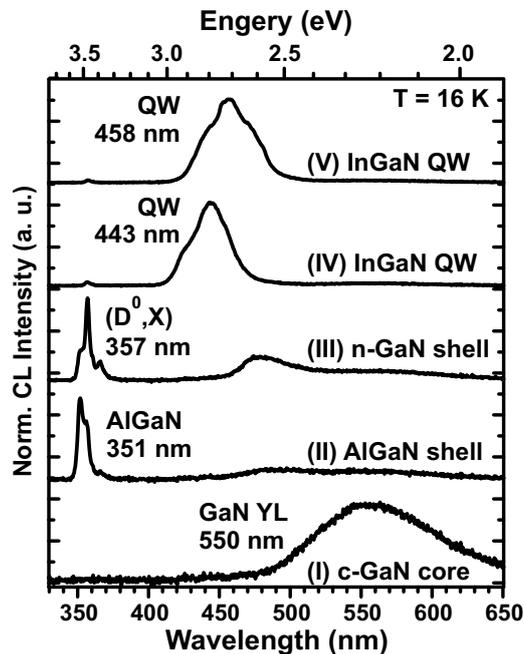


Abbildung 6.12: Lokale Spektren aus den verschiedenen Wachstumsdomänen der koaxialen InGaN/GaN-Mikrosäule (Positionen in Abb. 6.11 gekennzeichnet).

Wie das Wellenlängenbild beweist, treten lokale Fluktuation der QW-Peakwellenlänge auf Submikrometer-Längenskala auf. Es zeigt sich jedoch keine Korrelation zwischen der QW-Intensität und der lokalen Emissionswellenlänge in Abb. 6.11(a) und (b).

Um die Fluktuationen näher zu charakterisieren, sind in Abb. 6.13 monochromatischen Intensitätsbilder der Quantenfilm-Lumineszenz gezeigt. Zum direkten Vergleich der Intensitätsbilder wurden diese auf das jeweilige Intensitätsmaximum in linearer Darstellung skaliert. Die InGaN-Lumineszenz beginnt zunächst im Spektralbereich von 419 nm bis 423 nm ausschließlich im unteren Bereich der Mikrosäule, wie Abbildung 6.13(a) beweist. Mit steigender Wellenlänge verlagert sich der Emissionsschwerpunkt zum oberen Bereich in der Säule. Neben der spektralen Verschiebung der Quantenfilm-Lumineszenz entlang der non-polaren Facetten treten in den Intensitätsbildern zusätzlich kurzreichweitige Intensitätsschwankungen auf. Diese Intensitätsschwankungen weisen in den monochromatischen

Bildern eine inhomogene, punktförmige CL-Verteilung auf einer Längenskala unterhalb von 200 nm auf.

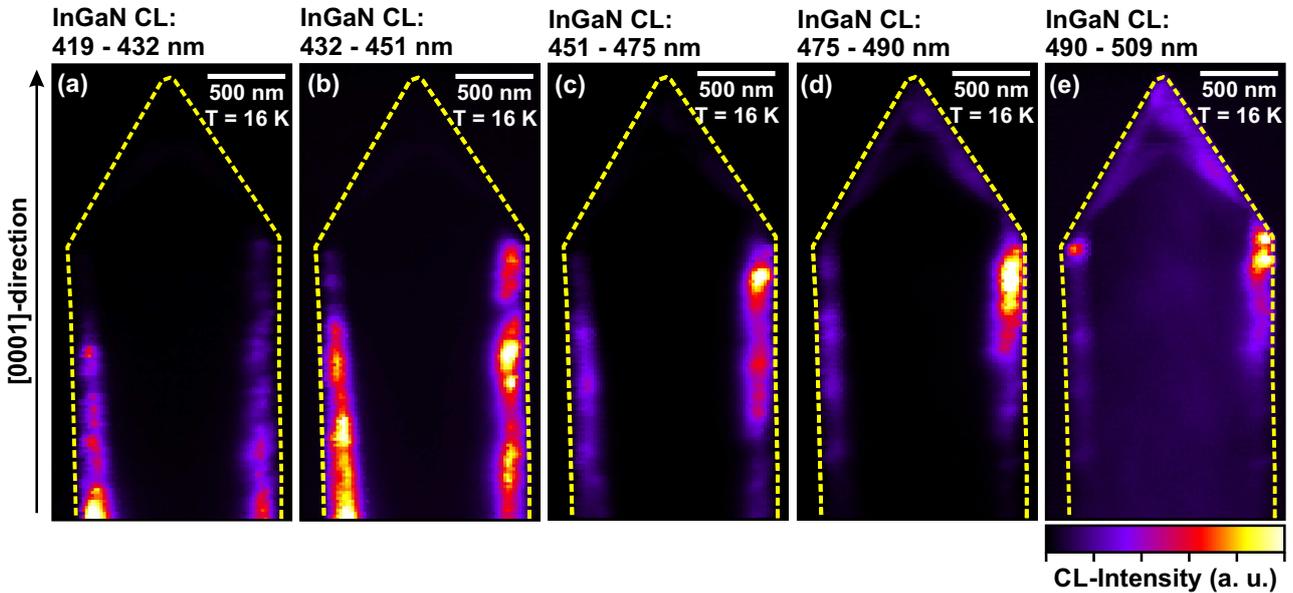


Abbildung 6.13: Monochromatische CL-Intensitätsbilder der InGaN-Quantenfilm-Lumineszenz im Wellenlängenbereich von (a) 419 - 432 nm; (b) 432 - 451 nm; (c) 451 - 475 nm; (d) 475 - 490 nm; (e) 490 - 509 nm.

In den zuvor diskutierten STEM-Untersuchungen konnte bereits gezeigt werden, dass keine ausgedehnten Kristalldefekte wie Versetzungen oder Stapelfehler in den Mantel-Schichten vorkommen. Dementsprechend kann nicht-strahlende Rekombination an Defekten als Grund für die örtliche Intensitätsmodulation des Quantenfilms ausgeschlossen werden.

Eine Ursache für die inhomogene Verteilung der InGaN-Quantenfilm-Lumineszenz auf Submikrometer-Skala können räumliche Potentialfluktuationen sein. Generell können Potentialfluktuationen auf unterschiedlichen Längenskalen stattfinden. Langreichweitige Fluktuationen hervorgerufen durch Kompositions- und Dickenschwankungen des Quantenfilms oder strukturelle Defekte finden typischerweise auf Mikrometer-Skala statt. Die räumliche Ausdehnung der langreichweitigen Fluktuationen ist also wesentlich größer als Diffusionslänge der Ladungsträger bzw. Exzitonen.

Im Gegensatz dazu finden kurzreichweitige Potentialfluktuationen auf Nanometer-Skala statt. Durch den Drift der Ladungsträger in die lokalen Potentialminima des Leitungs- und Valenzbands wird die Elektron- und Lochwellenfunktion lokalisiert. Erstmals wurde die Ladungsträger-Lokalisierung in planaren InGaN-Quantenfilmen von Chichibu *et al.* beobachtet [285, 286]. Generell kann die Lokalisierung von Ladungsträgern auf nanoskopischer Ebene durch drei Effekte hervorgerufen werden:

- Schichtdicken-Fluktuationen des Quantenfilms [287–289]
- Bildung von In-N-In-Ketten durch statistische Kompositionsfuktuationen [238, 290–292]
- Indium-Cluster innerhalb des Quantenfilms [242, 286, 293]

Die Lokalisierung verhindert, dass sich die Ladungsträger bei Tieftemperatur frei bewegen können.

So kann als direkte Folge der Lokalisierung eine räumliche Variation der Emissionsenergie und Lumineszenzintensität auftreten.

6.2.1 Z-Kontrastabbildung des InGaN-Quantenfilms

Um die Ursache der Potentialfluktuationen experimentell zu analysieren wurden die Grenzflächeneigenschaften und die lokale chemische Zusammensetzung des InGaN-Quantenfilms mittels hochauflösender HAADF-Aufnahmen untersucht¹. Die analytischen STEM-Untersuchungen wurden bei einer Beschleunigungsspannung 300 kV unter einem Konvergenzwinkel von 9 mrad durchgeführt. Als Zonenachse für die STEM-Analyse wurde die $[11\bar{2}0]$ -Richtung gewählt, unter welcher der Quantenfilm parallel zum Elektronenstrahl angeordnet ist.

Abbildung 6.14 zeigt zwei Aufnahmen aus dem (a) oberen Bereich der Mikrosäule bzw. (b) aus dem unteren Bereich. In der Z-Kontrastabbildung ist der InGaN-Quantenfilm als heller Kontrast gegenüber der umgebenden GaN-Material erkennbar. In beiden Aufnahmen erscheint die innere Grenzfläche des InGaN-Quantenfilms zum GaN als scharfer Übergang, wohingegen die äußere Grenzfläche rauer erscheint.

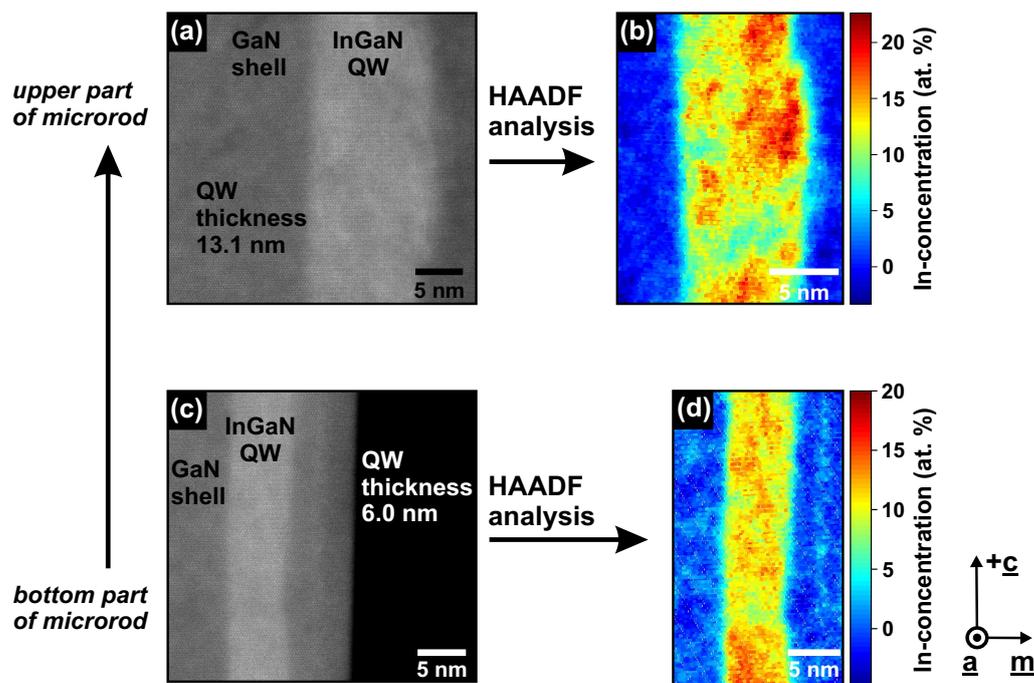


Abbildung 6.14: HAADF-Abbildung des InGaN-Quantenfilms aus (a) dem oberen Bereich und (c) dem unteren Bereich der Mikrosäule; (b) und (d) zeigen die korrespondierenden Indium-Konzentrationsmappings [277].

Um die örtliche Kompositionsverteilung des InGaN-Quantenfilms zu bestimmen wurden die experimentell erhaltenen und normierten HAADF-Intensitäten aus Abb. 6.14(a) und (c) mit den eingangs beschriebenen „frozen-lattice“-Simulationen verglichen (siehe Kapitel 6.1.2). Als Referenzwert für eine Indiumkonzentration von 0%, wird die normierte HAADF-Intensität aus der GaN-Barriere

¹Die analytischen HAADF-Untersuchungen wurden von Herrn Florian Krause an der Universität Bremen in der AG von Prof. Rosenauer angefertigt.

angenommen. Die so aus den HAADF-Bildern erhaltenen zweidimensionalen Konzentrationsverteilungen sind in Abb. 6.14(b) bzw. (d) gegenübergestellt. Die Konzentrationsmappings wurden jeweils auf die maximale Indiumkonzentration normiert. So erscheint in beiden Kompositionsmappings das GaN der Mantel-Schichten im blauen Farbkontrast. Trotz der Mittelung des HAADF-Signals über die komplette Probendicke von 120 nm sind Inhomogenitäten in der örtlichen Komposition des InGaN-Quantenfilms erkennbar. Die Verteilung der Indiumkonzentration innerhalb des Quantenfilms weist eine deutliche Abweichung von gleichmäßigen, statistischen Fluktuationen der Komposition auf. In Abb. 6.14(b) ergeben sich örtliche Konzentrationsfluktuationen bis zu $\Delta[\text{In}] = \pm 7\%$ vom mittleren Indiumgehalt von 13%. So lassen sich lokal Indium-reiche Bereiche mit $[\text{In}] > 19\%$ bzw. auch Indium-arme Gebiete mit $[\text{In}] < 8\%$ im non-polaren Quantenfilm nachweisen. Die räumliche Ausdehnung der dieser Konzentrationsschwankungen hat Dimensionen im Bereich von 3 - 10 nm.

Vergleicht man dazu das Kompositionsmapping des InGaN-Quantenfilms aus dem unteren Bereich der Mikrosäule 6.14(c) zeigt sich eine homogenere Konzentrationsverteilung als im oberen Bereich der Mikrosäule. Jedoch treten auch hier örtliche Konzentrationsschwankungen auf, die zur Bildung von Indium-reichen Gebieten mit $[\text{In}] > 14\%$ bzw. Indium-armen Gebieten von $[\text{In}] < 9\%$ führen.

Durch die Mittelung des HAADF-Signals über die komplette Probendicke von 120 nm lässt sich aus der zweidimensionalen Abbildung keine Aussage über die geometrische Form der nanoskopischen Fluktuationen bzw. über deren örtlichen Lage innerhalb Quantenfilms entlang der $[11\bar{2}0]$ -Richtung aussagen.

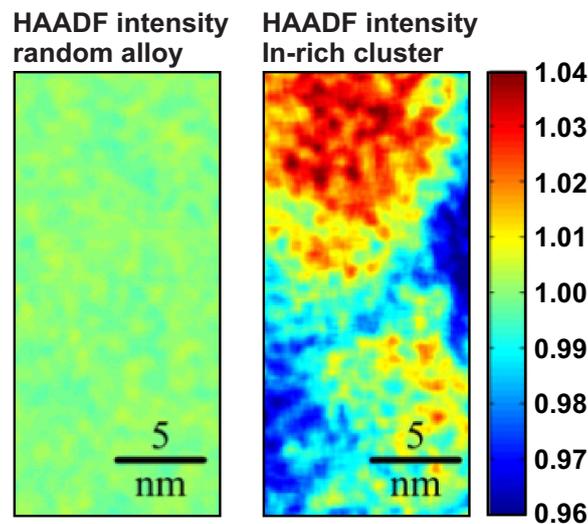


Abbildung 6.15: Simulation der HAADF-Intensität für einen InGaN-Quantenfilm mit (a) statistischen Konzentrationsfluktuationen und (b) Indium-reichen Clustern [277].

Zur Überprüfung der experimentellen Ergebnisse wurden Simulationen der HAADF-Intensitäten eines InGaN-Quantenfilms mit statistischen Konzentrationsfluktuationen und Indium-reichen Ansammlungen gegenübergestellt. Die Größe des simulierten Bereichs beträgt 10 x 20 nm. In der Simulation wurden die experimentellen Parameter der STEM-Untersuchung (Lamellen-Dicke von 120 nm und $[11\bar{2}0]$ -Zonenachse) verwendet und eine gemittelte Indiumkonzentration von 11% angenommen. In der farbcodierten Darstellung der Simulation in Abb. 6.15 wurde die lokale HAADF-Intensität

jeweils auf die Intensität der mittleren Indiumkonzentration normiert, sodass Gebiete mit $[\text{In}] = 11\%$ einem Intensitätswert von 1 (grüner Kontrast) entsprechen. Die Simulation des InGaN-Quantenfilms mit statistischen Konzentrationsfluktuationen in Abb. 6.15(a) zeigt eine vergleichsweise homogene HAADF-Intensitätsverteilung. Die Standardabweichung der HAADF-Intensitäten beträgt in diesem Fall 0,0014. Im Gegensatz dazu zeigt die Simulation eines InGaN-Quantenfilms mit lokal Indiumreichen Gebieten (kugelförmige Einschlüsse mit einem Durchmesser von 5 nm) in Abb. 6.15(b) eine deutlich inhomogenere Verteilung der HAADF-Intensitäten. Dabei korrelieren Gebiete mit erhöhter HAADF-Intensität mit Bereichen höherer Indiumkonzentration. In diesem Fall ist die Standardabweichung der HAADF-Intensität um eine Größenordnung größer als für statistische Fluktuationen und beträgt 0,015. Dieser Wert ist vergleichbar mit der experimentell ermittelten Standardabweichung der HAADF-Intensitäten von 0,012 in Abb. 6.14(d). Somit bestätigen die Simulationen, dass trotz einer Lamellendicke von 120 nm, Indium-reiche Ansammlungen in den HAADF-Aufnahmen sichtbar werden.

Eine durch den Elektronenstrahl induzierte Bildung von Indium-Clustern im Quantenfilm wie von Smeeton *et al.* in [294] und Li *et al.* in [295] beobachtet, kann für die vorliegenden Messungen ausgeschlossen werden. Für die quantitativen HAADF-Messungen wurden die Abbildungsbedingungen so gewählt, dass eine niedrige Elektronendosis von $0,2 \text{ pAs/nm}^2$ und eine kurze Akquisitionsdauer der STEM-Bilder von 40s keine Elektronenstrahlenschädigung der InGaN-Schicht bewirkt [274, 276]. Auch TEM-Analysen von Bartel und Kieselowski in [296] und Galtrey *et al.* in [288] zeigen, dass optimierte Abbildungsbedingungen eine Elektronenschädigung der Schichten vermeidet. Die inhomogene Formierung von Indiumreichen Clustern wird auch von Humphrey *et al.* in a-planaren InGaN-Quantenfilmen [293] und Wu *et al.* in c-planaren InGaN-Quantenfilmen [242] nachgewiesen.

Im konkreten Fall der hier nachgewiesenen lokalen Kompositionsfluktuationen auf einer Größenskala unterhalb von 20 nm führen diese zu einer inhomogenen Potentiallandschaft für die Ladungsträger. Einen zusätzlichen Einfluss übt die inhomogene Grenzflächenrauigkeit des Quantenfilms aus. Die örtlichen Potentialminima des Quantenfilms bilden folglich Lokalisationszentren für die Ladungsträger. Die Zunahme der Halbwertsbreite der Quantenfilm-Lumineszenz entlang der non-polaren Facetten (siehe Kap. 6.1.1) weist weiterhin darauf hin, dass die strukturellen und chemischen Inhomogenitäten zum oberen Bereich der Mikrosäule zunehmen. Zusätzlich verstärkt die Bildung von Indiumreichen Ansammlungen im Quantenfilm die spektrale Verschiebung zu längeren Wellenlängen entlang der non-polaren Seitenfacetten zum oberen Bereich der Säulen.

6.2.2 Visualisierung von nanoskopischen Potentialfluktuationen mittels STEM-CL

Untersuchung der Quantenfilm-Lumineszenz im koaxialen Querschnitt

Mit Hilfe der CL-Spektroskopie im STEM wurde die Auswirkung der Potentialfluktuationen auf die nanoskopischen Lumineszenzeigenschaften visualisiert. Die STEM-CL-Messungen wurden bei einer Beschleunigungsspannung von 80 kV und einem Strahlstrom von 130 pA bei $T = 16 \text{ K}$ angefertigt. Abbildung 6.16 zeigt das STEM-CL-Mapping der aktiven Schicht über einen Bereich von $150 \times 260 \text{ nm}$ aus dem oberen Drittel einer InGaN/GaN-Mikrosäule. Im STEM-Hellfeld-Bild in 6.16(a) erscheint der InGaN-Quantenfilm als dunklerer Kontrast gegenüber dem umliegenden GaN-Material. Der Quantenfilm ist in der Messung leicht gegenüber dem einfallenden Elektronenstrahl verkippt, sodass durch

die Projektion entlang der kompletten Probendicke eine Verbreiterung des Quantenfilms erscheint. Das korrespondierende orts-integrale Emissionsspektrum (Abb. 6.16(c)) zeigt ausschließlich einen Lumineszenzbeitrag des InGaN-Quantenfilms bei 430 nm mit einer Halbwertsbreite von 240 meV. Die Analyse der spektral-integralen Intensitätsverteilung in Abb. 6.16(b) belegt eine örtlich inhomogene Variation der Quantenfilm-Lumineszenz. Aus der Korrelation mit dem STEM-Bild lässt sich feststellen, dass Defekte als Ursache für die lokalen Intensitätsschwankungen auszuschließen sind.

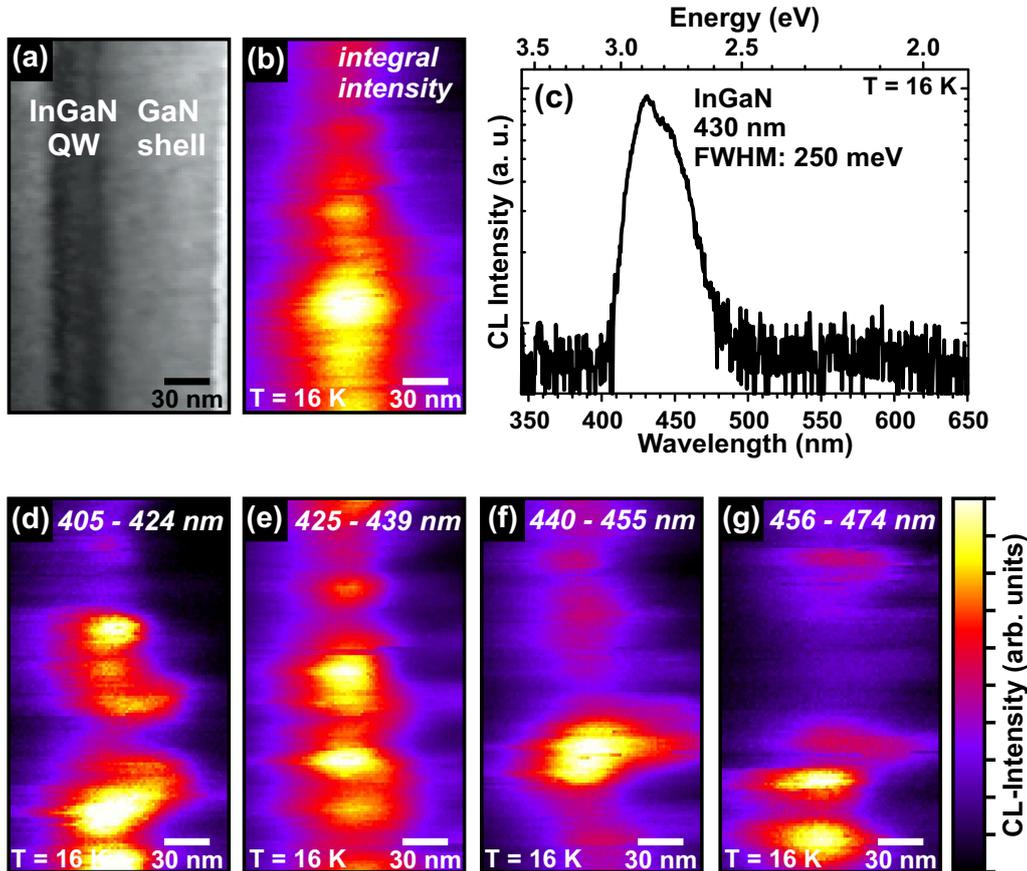


Abbildung 6.16: Hochauflösende Analyse der InGaN-Quantenfilm-Lumineszenz: (a) STEM-Hellfeld-Bild; (b) spektral-integriertes Intensitätsbild der QW-Lumineszenz; (c) orts-integriertes Spektrum; (d) - (g) monochromatische Intensitätsbilder der InGaN-Emission bei $T = 16$ K [277].

Einen näheren Aufschluss über die spektrale und örtliche Verteilung der QW-Emission geben die monochromatischen Intensitätsbilder in Abb. 6.16(d) - (g). Diese sind jeweils auf die Maximalintensität des Rekombinationskanals normiert. Im Intensitätsbild der kurzwelligeren spektralen Anteile im Wellenlängenbereich von 405 - 424 nm treten punktförmige, intensitätsreiche Emissionsgebiete mit einer räumlichen Ausdehnung von 30 - 50 nm auf. Im Vergleich dazu zeigen die monochromatischen Intensitätsbilder im Spektralbereich von 425 - 439 nm, 440 - 455 nm, 456 - 474 nm örtlich, teils disjunkte Emissionsgebiete.

Generell lässt sich in der kompletten Serie der monochromatischer Intensitätsbilder beobachten, dass die Rekombinationszentren lokal in ihrer Emissionswellenlänge und Intensität stark variieren. Dies deutet auf einen starken lokalen Einfluss der Ladungsträger hin. Die räumliche Ausdehnung der Emissionsgebiete ist wesentlich größer als das zu erwartende Anregungsvolumens des Elektronen-

strahls, welches bei $U_{\text{acc}} = 80$ kV und einer Lamellendicke von $t \approx 200$ nm rund 10 nm beträgt. Der Vergleich der CL- und HAADF-Messungen belegt im weiteren, dass die räumliche Ausdehnung der verschiedenen Rekombinationszentren in den monochromatischen Intensitätsbildern weiter als die Größe der In-Anreicherungen im Quantenfilm ist. Ursache für das örtlich verbreiterte Lumineszenz-Signal ist die Diffusion bzw. der Drift der durch den Elektronenstrahl generierten Ladungsträger in die lokalen Potentialminima. Da die Probe an der untersuchten Stelle eine Dicke von ca. 200 nm hat, ist zudem nicht auszuschließen das mehrere Indium-Cluster entlang der Lamellendicke auftreten. Dies kann zusätzlich zu einer örtlichen Überlagerung der Lumineszenzbeiträge führen.

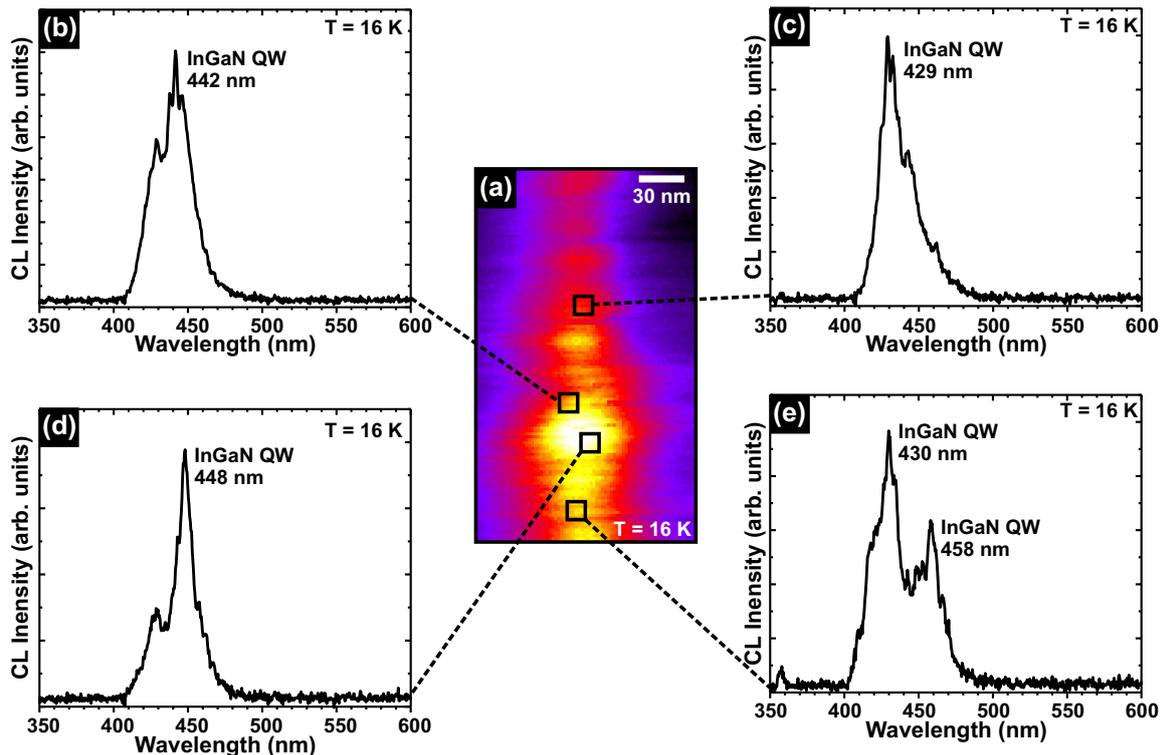


Abbildung 6.17: Analyse der Emissionscharakteristik einzelner Rekombinationszentren: (a) spektral-integrale Intensitätsverteilung des InGaN-Quantenfilms und (b) - (e) dazugehörige lokale Spektren bei $T = 16$ K.

Um die Emissionscharakteristik der Rekombinationszentren näher zu analysieren sind lokale Spektren in Abb. 6.17(b) - (e) dargestellt. In den lokalen Spektren ist erkennbar, dass örtlich schmalbandige Emissionslinien im Wellenlängenbereich zwischen 429 nm bis 458 nm variieren. Das Auftreten mehrerer Emissionslinien bzw. die inhomogene Verbreiterung ist ein weiteres Indiz für die örtliche Überlagerung mehrerer Rekombinationszentren innerhalb der TEM-Lamelle. Die Emissionslinien weisen Halbwertsbreiten von bis zu 15 meV auf, was im Bereich der spektralen Auflösung der Messapparatur (holographische Reflexionsgitter mit 150 Linien/mm) liegt. Zum Vergleich zeigen μ PL-Untersuchungen von Schömig *et al.* an c-planaren InGaN/GaN Quantenfilmen Halbwertsbreiten von bis zu 0,8 eV von einzelnen Lokalisationszentren [241].

Die hier beobachtete örtliche Variation der Übergangsenergie und CL-Intensitäten lässt sich im Bild der Potentialfluktuationen (siehe Abb. 6.18) wie folgt erklären: Bei tiefen Temperaturen, bei der die

kinetische Energie ($k_B T$) der Ladungsträger kleiner ist als die lokale Amplitude der Potentialfluktuationen sind die generierten Ladungsträger im Potentialminimum gefangen. Die kinetische Energie ist in diesem Fall zu klein um die Potentialbarriere zu überwinden, sodass keine weitere Relaxation in energetisch günstigere Zustände stattfinden kann. Es kommt zu einem sogenannten „Freeze-out“ der Ladungsträger. Folglich rekombinieren die Ladungsträger aus den lokal verschiedenen Potentialminima mit unterschiedlichen Übergangsenergien. Mit der Erhöhung der Temperatur oder der Ladungsträgerdichte kann es wiederum eine Umverteilung der Ladungsträger in niederenergetische Bereiche des Quantenfilms stattfinden.

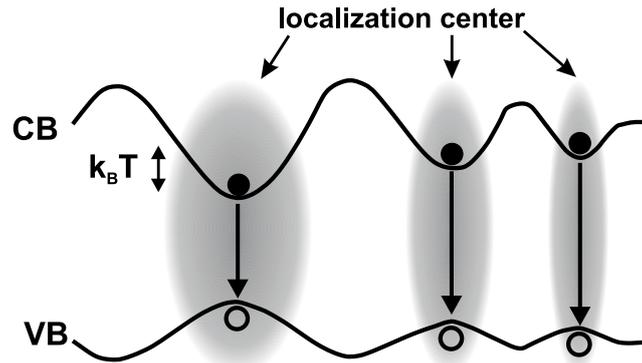


Abbildung 6.18: Schematisches Modell der Lokalisation von Ladungsträgern bei Tieftemperatur nach Referenz [213].

Aufgrund der größeren effektiven Masse der Löcher, tritt eine wesentliche stärkere Lokalisierung der Wellenfunktion der Löcher als der Elektronen auf [238, 289]. Nach Referenz [238] beträgt Lokalisierungslänge der Löcher ca. 1 - 3 nm in InGaN. Die Elektronen mitteln hingegen örtlich über einen größeren Bereich von 5 - 10 nm [238]. Da dieser Wert in der Größenordnung der beobachteten Kompositionsfluktuationen und CL-Intensitätsschwankungen liegt, ist im vorliegenden Fall anzunehmen, dass nicht zwischen der Elektron- und Lochlokalisierung unterschieden werden kann. Für Konzentrations- und Schichtdickenfluktuationen mit kleineren räumlichen Ausdehnungen ($\ll 5$ nm) hingegen hat die Lochlokalisierung einen stärkeren Einfluss [238].

Weiterhin ist davon auszugehen, dass Kompositionsschwankungen, die in der Größenordnung des Bohr-Exzitation-Radius in InGaN ($a_B \approx 5$ nm) liegen zu Quantenpunkt-artigen Zuständen führen können [241, 297]. Anders als für einen idealen non-polaren Quantenfilm mit statistischen Kompositionsfluktuationen, werden für die durch Fluktuationen hervorgerufen dreidimensionalen Einschlüsse wiederum Polarisationsfelder entlang der [0001]-Richtung relevant. Durch die damit verbundene räumliche Trennung von Elektronen- und Loch-Wellenfunktion kann eine zusätzliche spektrale Rotverschiebung dieser dreidimensionalen Einschlüsse auftreten und somit die Emissionscharakteristik maßgeblich beeinflussen.

Es lässt hier sich zusammenfassend festhalten, dass Kompositionsfluktuationen und raue Grenzflächen des non-polaren InGaN-Quantenfilms zu räumlichen Potentialfluktuationen führen. Die STEM-CL-Messungen visualisieren ein direktes Abbild der inhomogenen Potentiallandschaft auf Nanometer-Skala, das sich durch die Lokalisierung der Ladungsträger erklären lässt. Darüber hinaus konnten schmalbandige Emissionslinien einzelner Rekombinationszentren nachgewiesen werden.

Analyse der Quantenfilm-Lumineszenz im axialen Querschnitt

Um die laterale Emissionscharakteristik der Quantenfilm-Lumineszenz auf den sechs non-polaren Facetten zu untersuchen wurden die Mikrosäulen im axialen Querschnitt in Aufsicht als TEM-Lamelle präpariert (siehe schematische Probenaufbau in Abb. 6.19(a)). Für die Präparation wurden die Mikrosäulen mechanisch vom Puffer abgelöst und im Epoxydharz eingebettet. Durch dieses Verfahren ist ein Teil der Mikrosäulen im Epoxydharz so angeordnet, dass sie senkrecht zur Präparationsrichtung liegen. Unter Verwendung einer Dünnschliffpräparation mittels mechanischen Schleifen und anschließender Ionendünung durch Argon-Ionen wird die Probe auf elektronentransparente Dicken abgetragen (siehe Kapitel 3.3.4). Durch die zufällige Positionierung der Mikrosäulen im Epoxydharz ist die Kontrolle der Lamellendicke im Gegensatz zur konventionellen Querschnittspräparation jedoch nur eingeschränkt möglich. So sind nur wenige Mikrosäulen innerhalb der TEM-Lamelle geeignet für die STEM-CL-Charakterisierung.

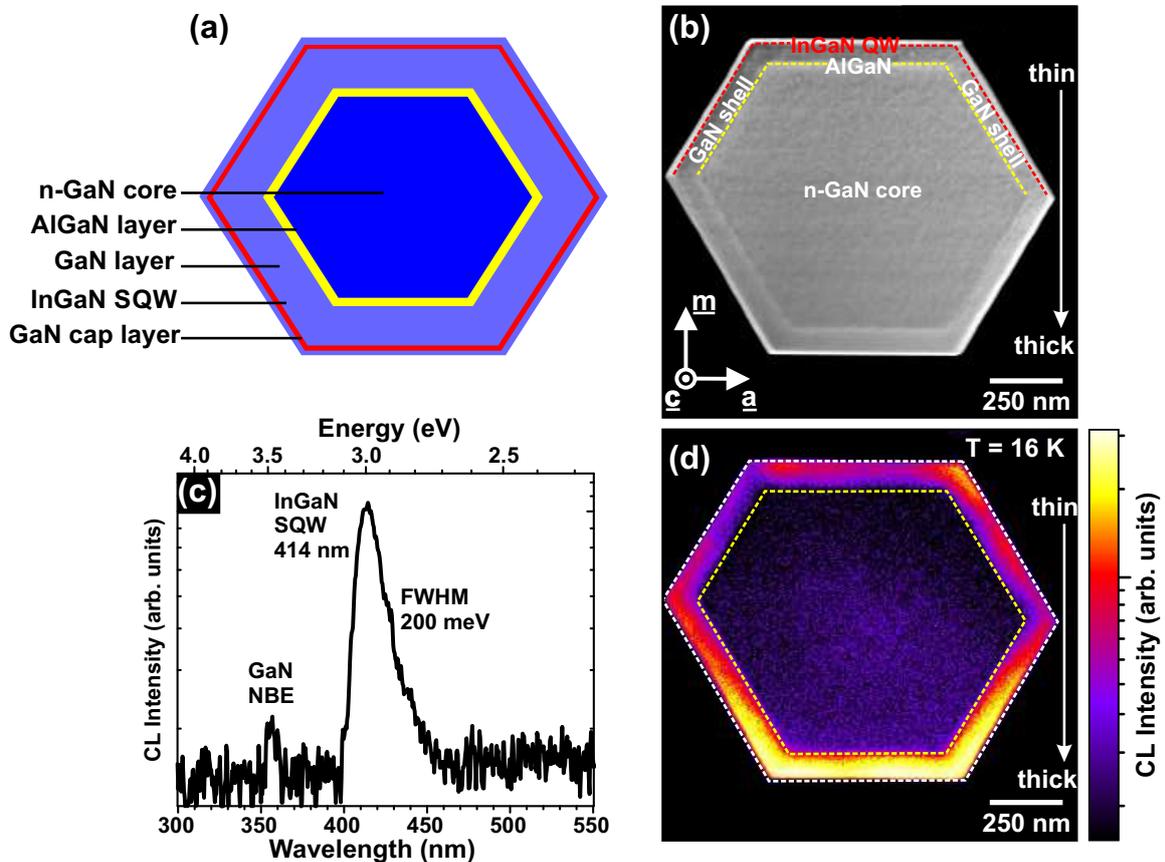


Abbildung 6.19: (a) Schematischer Aufbau der InGaIn/GaN-Mikrosäulen in Aufsicht; (b) STEM-Bild im HAADF-Kontrast in Aufsicht; (c) orts-integrales Spektrum und (d) panchromatische Intensitätsverteilung bei $T = 16$ K.

Die STEM-HAADF-Aufnahme in Aufsicht einer Mikrosäule ist in Abb. 6.19(b) entlang der $[0001]$ -Richtung gezeigt. Trotz der lokalen Lamellenschichtdicke von mindestens 300 nm, sind in der STEM-Aufnahme die koaxialen Mantel-Schichten sichtbar. Zur besseren Orientierung wurde Position der AlGaIn-Schicht (gelb) und des InGaIn-Quantenfilm (rot) im Bild farblich markiert. Im mittleren Bereich ist der hexagonale Si-dotierte GaN-Kern mit einem Durchmesser von (910 ± 10) nm sichtbar

(Abstand: Facette-Facette). Die koaxialen Mantel-Schichten umgeben den GaN-Kern homogen auf den sechs non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten. Aus den strukturellen STEM-Analysen kann bestätigt werden, dass keine planaren oder Liniendefekten im Kern und Mantel auftreten.

In Abbildung 6.19(d) ist das simultan zum HAADF-Bild akquirierte panchromatische Intensitätsbild abgebildet. Zur Korrelation mit dem STEM-Bild sind die Markierungen der AlGaIn-Schicht und der Mikrosäulen-Oberfläche im CL-Intensitätsbild übernommen. Im n-GaN-Kern ist eine geringe Quantenausbeute festzustellen, es finden also hauptsächlich nicht-strahlende Rekombinationsprozesse statt. An der Grenzfläche vom Kern zur Mantel-Schicht tritt eine abrupte Zunahme der Lumineszenz-Intensität um mehr als eine Größenordnung auf. Dies bestätigt die Ergebnisse, dass der Wechsel der Wachstumsparameter vom Kern zu den Mantel-Schichten zu einer signifikanten Verringerung der Dichte an nicht-strahlenden Rekombinationszentren führt. Die Zunahme der Intensität vom oberen zum unteren Bereich des Bildes ist auf einen Schichtdickengradienten der TEM-Folie zurückzuführen. Für die Identifizierung der beteiligten Rekombinationskanäle ist das korrespondierende Spektrum des untersuchten Probenbereichs in Abb. 6.19(c) dargestellt. Das Spektrum zeigt einen intensiven Lumineszenzbeitrag des InGaIn-Quantenfilms bei 414 nm mit einer Halbwertsbreite von 200 meV. Aus dem Vergleich der spektralen Position der Quantenfilm-Lumineszenz mit den CL-Analysen in Kapitel 6.1.2 lässt sich ableiten, dass der präparierte Bereich der Säule aus dem unteren Drittel der dreidimensionalen Struktur stammt. Im Spektrum tritt zusätzlich eine intensitätsschwache bandkanten-nahe Lumineszenz bei 357 nm auf.

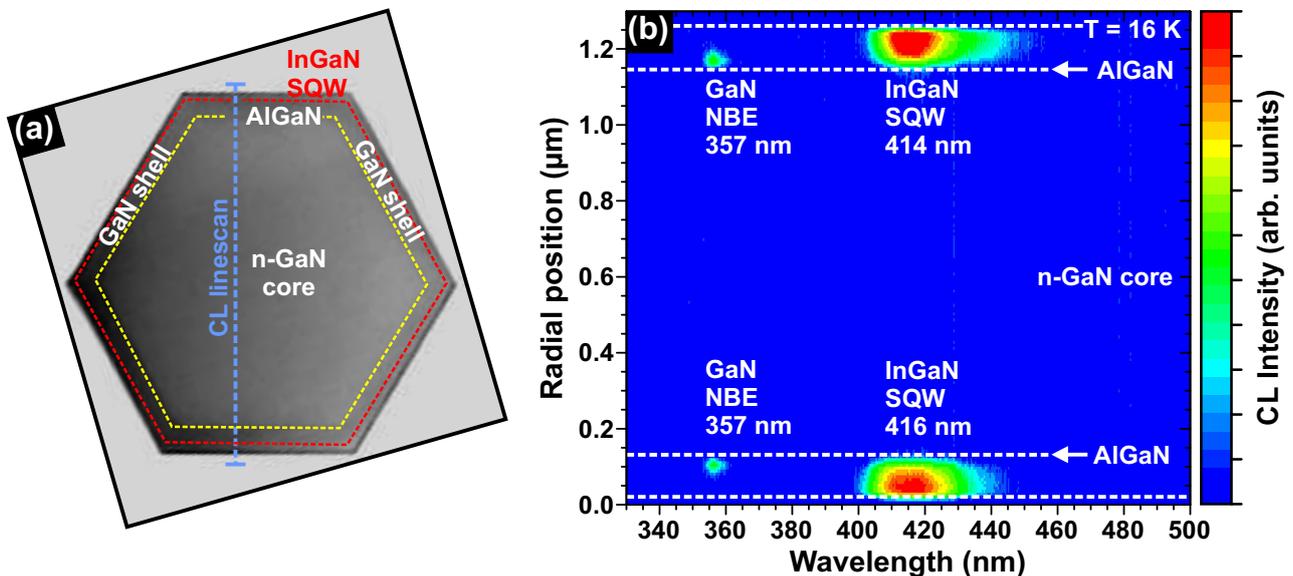


Abbildung 6.20: (a) STEM-Aufnahme der InGaIn/GaN-Mikrosäule und (b) STEM-CL-Linescan vertikal über den Mikrosäulenquerschnitt bei $T = 16$ K.

Die eindeutige lokale Zuordnung der Rekombinationskanäle erfolgt über den CL-Linescan in Abb. 6.20(b). Die zugehörige Position des Linescans ist im STEM-Bild in Abb. 6.20(a) gezeigt. Im Bereich des n-GaN-Kerns von $x = 0.13 \mu\text{m}$ bis etwa $x = 1.15 \mu\text{m}$ dominieren nicht-strahlende Rekombinationsprozesse. Erst bei direkter Anregung der Mantel-Schichten tritt die bandkanten-nahe Lumineszenz

bei 357 nm auf. Weiter in Richtung der Oberflächen setzt gleichzeitig die InGaN-Lumineszenz als konkurrierender Rekombinationskanal ein. Der CL-Linescan verdeutlicht, dass die Mehrheit der generierten Ladungsträger bzw. Exzitonen innerhalb der Mantel-Schichten zum Quantenfilm diffundiert. Die Intensitätsmaximum der InGaN-Emission ist auf beiden Facetten mit 414 nm und 416 nm leicht verschoben.

Um einen tieferen Einblick in die örtliche Emissionsverteilung der Quantenfilm-Lumineszenz auf den non-polaren Wachstumsdomänen zu erhalten, ist in Abb. 6.21 ein Wellenlängenbild ($T = 16$ K) im Spektralbereich von 407 - 421 nm dargestellt. Im Wellenlängenbild offenbart sich lokal eine inhomogene Verteilung der Peakwellenlängen auf Submikrometer-Längenskala. Die laterale Ausdehnung der Emissionsgebiete variiert im Wellenlängenbild zwischen 40 nm und 200 nm. Die Fluktuation der Peakwellenlängen kann direkt auf die im vorherigen Kapitel 6.2.1 nachgewiesenen Kompositionsschwankungen und Grenzflächenrauigkeiten zurückgeführt werden. Die Ergebnisse beweisen, dass die Fluktuationen der InGaN-Emission auch lateral auf den $\{1\bar{1}00\}$ -Oberflächen auftreten.

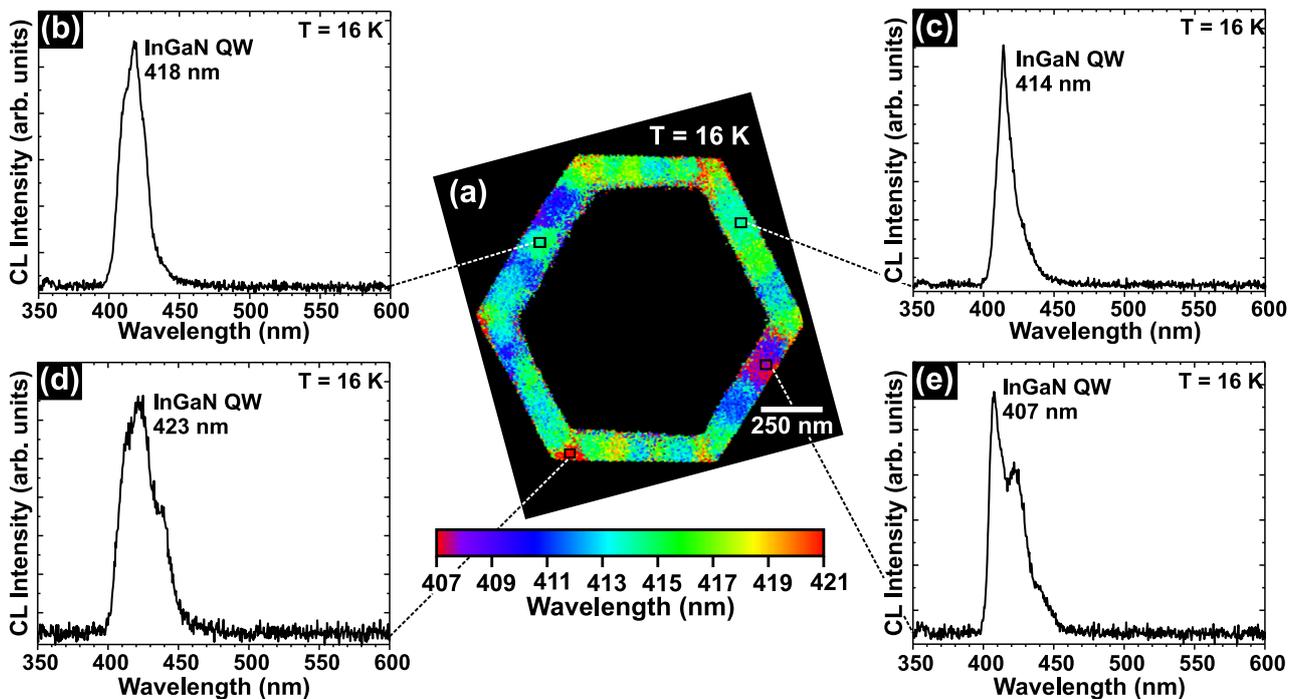


Abbildung 6.21: (a) Peakwellenlängenverteilung im axialen Querschnitt der InGaN/GaN-Mikrosäule und (b) - (e) lokale Spektren bei $T = 16$ K.

Die Emissionscharakteristik verschiedener Rekombinationszentren wird durch die lokalen Spektren in Abb. 6.21(b) - (e) wiedergegeben. In den lokalen Spektren wird deutlich, dass Emissionslinien mit Halbwertsbreiten von bis zu 65 meV auftreten. Im Vergleich zu den lokalen Spektren im Querschnitt in Abb. 6.17 sind die Emissionslinien in diesem Fall jedoch wesentlich verbreitert. Eine Ursache für die inhomogene Verbreiterung der Emissionslinien kann die größere Schichtdicke der TEM-Lamelle sein, sodass eine örtliche Überlagerung mehrerer Rekombinationszentren innerhalb der TEM-Lamelle (Lamellendicke > 300 nm) auftreten kann. Es lässt sich jedoch festhalten, dass die spektrale Variation

des Intensitätsmaximums in den lokalen Spektren ein deutlicher Hinweis auf Fluktuationen in der räumlichen Potentiallandschaft ist.

An den Ecken der hexagonalen Mikrosäulen tritt zudem eine Verschiebung der InGaN-Lumineszenz zu längeren Wellenlängen auf, die mit einer spektralen Verbreiterung der Emission verbunden ist (siehe lokales Spektrum in Abb. 6.21(d)). Die Ecken der Mikrosäule bilden topologisch bevorzugte Bereiche für einen vermehrten Einbau von Indium im Quantenfilm. Theoretische Berechnungen von Lu *et al.* in [298] zeigen, dass vor allem ein Abbau der Verspannung an den Ecken der Kern-Mantel-Mikrosäule für die Akkumulation von Indium verantwortlich ist. Zusätzlich kann, wie von Griffiths *et al.* in [299] nachgewiesen, die Formierung von $\{11\bar{2}0\}$ -Nanofacetten an den Ecken der InGaN/GaN-Mikrosäule eine zusätzliche Veränderung der Komposition bewirken.

Durch die STEM-CL-Analysen am axialen Querschnitt der InGaN/GaN-Mikrosäulen konnte bestätigt werden, dass kurzreichweitige Fluktuationen der Quantenfilm-Lumineszenz auf den sechs non-polaren Seitenfacetten auftreten. Dies äußert sich in einem örtlich inhomogenen Emissionsverhalten des InGaN-Quantenfilms. Aus der Korrelation mit den HAADF-Messungen kann als Ursache für die Fluktuationen eine lokale Variationen der Komposition und Quantenfilmdicke geschlussfolgert werden. Somit wird Emissionscharakteristik der InGaN/GaN-Mikrosäulen maßgeblich von Potentialfluktuationen auf nanoskopischer Skala beeinflusst, die zu einer Verbreiterung der integralen Quantenfilm-Lumineszenz führen. Die Ergebnisse zeigen, dass die Materialqualität des non-polaren InGaN-Quantenfilms für zukünftige Anwendungen deutlich verbessert werden muss.

6.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die Ursachen von Lumineszenz- und Kompositionsinhomogenitäten in koaxialen InGaN/GaN-Mikrosäulen mit hohem Aspekt-Verhältnis untersucht. Durch die Korrelation von analytischer HAADF-Abbildung und Tieftemperatur-STEM-CL-Mikroskopie konnten neue Erkenntnisse über den Einbaumechanismus von Indium in non-polaren InGaN-Quantenfilmen gewonnen werden. Strukturelle Transmissionselektronenmikroskopie-Untersuchungen belegen wiederum, dass durch das selektive Wachstum nur vereinzelt Versetzungen in den Mikrosäulen auftreten.

Das Aspekt-Verhältnis der InGaN/GaN-Mikrosäulen wurde im Vergleich zu den Proben in Kapitel 5 durch ein längeres Wachstum des Si-dotierten GaN-Kerns gesteigert, sodass die Säulen eine Höhe von $8,8 \mu\text{m}$ und einen Durchmesser von $1,1 \mu\text{m}$ aufweisen. Daraus ergibt sich eine 3,5-fache Vergrößerung der optisch aktiven Leuchtfläche gegenüber einer planaren Struktur. Trotz der erzielten morphologischen Homogenität der InGaN/GaN-Mikrosäulen im selektiven Wachstumsprozess, ist die Quantenfilm-Lumineszenz inhomogen verbreitert, wodurch eine integrale Halbwertsbreite von $\text{FWHM} = 500 \text{ meV}$ folgt. Durch die mikroskopische Analyse der Mikrosäulen konnte zunächst die spektrale Verschiebung der Quantenfilm-Lumineszenz vertikal entlang der non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten von 410 nm auf 471 nm als eine Ursache für die inhomogene Lumineszenz-Verbreiterung nachgewiesen werden. Durch den Vergleich von CL- und HAADF-Ergebnissen konnte gezeigt werden, dass der Wellenlängengradient auf eine Zunahme der Quantenfilmdicke von $(6,0 \pm 0,2) \text{ nm}$ auf

($13,1 \pm 0,2$) nm und einer Erhöhung der mittleren Indiumkonzentration von 11% zu 13% zurückzuführen ist. Ursache für die Veränderung der Schichtdicke und Komposition des Quantenfilms ist eine reduzierte Gasphasen-Diffusion in Richtung des Substrats.

Darüber hinaus wurde mittels hochauflösender STEM-CL-Mikroskopie festgestellt, dass kurzreichweitige Intensitäts- und Wellenlängenfluktuationen der Quantenfilm-Lumineszenz auftreten. Durch quantitative Z-Kontrastabbildung im Transmissionselektronenmikroskop wurden Kompositionsfluktuationen und Grenzflächenrauigkeiten des InGa_xN-Quantenfilms als Ursache für die Potentialfluktuationen nachgewiesen. Die Kompositionsschwankungen liegen in einem Bereich von bis zu $\Delta[\text{In}] = \pm 7\%$ und einer räumlichen Ausdehnung von 3 - 10 nm. Die Zunahme der strukturellen und chemischen Inhomogenitäten zum oberen Bereich der Mikrosäulen bewirkt lokal eine spektrale Verbreiterung der Quantenfilm-Lumineszenz. Zusätzlich verstärkt die Bildung von Indium-reichen Ansammlungen im Quantenfilm die spektrale Verschiebung zu längeren Wellenlängen entlang der non-polaren Seitenfacetten zum oberen Bereich der Säulen.

In nanoskopischen STEM-CL-Mappings konnte die Lokalisation der Ladungsträger in den örtlichen Potentialminima direkt visualisiert werden. Die jeweiligen Rekombinationszentren sind durch schmalbandige Emissionslinien mit Halbwertsbreiten von bis zu 15 meV gekennzeichnet.

Aus den Untersuchungen ergibt sich ein differenzierter Überblick über die verschiedenen Arten von InGa_xN-Inhomogenitäten in dreidimensionalen Nanostrukturen. Zusammenfassend zeigen die Ergebnisse, dass die Homogenität der Mantel-Schichten hinsichtlich der strukturellen, chemischen und optischen Eigenschaften für zukünftige Anwendungen von InGa_xN/GaN-Mikrosäulen mit hohem Aspekt-Verhältnis wesentlich verbessert muss.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die optischen, strukturellen und chemischen Eigenschaften von GaN-basierten Nano- und Mikrosäulen systematisch charakterisiert. Besonderer Fokus lag auf der Anwendung des Verfahrens der Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Rastertransmissionselektronenmikroskop bei Flüssig-Helium-Temperatur zur Analyse einzelner Nanostrukturen mit höchster räumlicher Auflösung. Mit den hier gezeigten Untersuchungen wurde die Methodik zur Charakterisierung dreidimensionaler Nanobauelemente weiterentwickelt, um neue Erkenntnisse über die Wachstumsdomänen, die Bildung von Defekten sowie den Ladungsträgertransport und den Einfluss von Potentialfluktuationen zu erhalten.

Die Nano- und Mikrosäulen zeichnen sich durch ihre dreidimensionale Geometrie aus, welche es ermöglicht, die optisch aktive Leuchtfläche von Bauelementen um ein Vielfaches zu steigern. Bei gleichbleibendem Gesamtstrom kann die Stromdichte in der aktiven Zone einer 3D-LED gegenüber planaren LED reduziert werden, sodass der negative Einfluss der Auger-Rekombination und der damit verbundene „Efficiency-Droop“ verringert werden kann.

Die Untersuchungen erstrecken sich auf zwei verschiedene epitaktische Herstellungsverfahren zum selektiven Wachstum von Nano- und Mikrosäulen: der Molekularstrahlepitaxie und der metallorganischer Gasphasenepitaxie. Morphologisch zeichnet sich das selektive Wachstum durch eine uniforme Anordnung der hexagonalen Säulen mit non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten sowie semi-polaren $\{1\bar{1}01\}$ - und $\{1\bar{1}02\}$ -Facetten an der Spitze aus. Durch Transmissionselektronenmikroskopie-Untersuchungen der Nano- und Mikrosäulen wurde festgestellt, dass eine effektive Reduktion der Versetzungsdichte durch das orts-selektive Wachstum und das Abknicken der Defekte im Fußbereich der Strukturen mit beiden Kristallzüchtungsmethoden erreicht wird.

GaN-Nanosäulen

Die Größe und dreidimensionale Geometrie von MBE gewachsenen GaN-Nanosäulen (Höhe: 550 nm; Durchmesser: 160 nm) stellt eine Herausforderung an die Ortsauflösung konventioneller Lumineszenz-Spektroskopie-Verfahren. Die Methode der Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Transmissionselektronenmikroskop konnte hier im Besonderen genutzt werden, um die Lumineszenzcharakteristik einzelner GaN-Nanosäulen zu analysieren. In den STEM-CL-Untersuchungen wurde eine Ortsauflösung des Kathodolumineszenz-Signals von bis zu (10 ± 2) nm realisiert.

Zur Durchführung der STEM-CL-Untersuchungen wurde erstmalig eine optimierte Präparation mittels fokussiertem Ionenstrahl eingesetzt. Durch die Optimierung des Präparationsprozesses hinsichtlich verringerter Oberflächenschädigung durch den hochenergetischen Ga-Ionenstrahl konnte der negative Einfluss der Ionenstrahlschädigung auf die optischen Eigenschaften so weit reduziert werden,

dass die charakteristische Lumineszenz der Proben erhalten bleibt. Im Vergleich zur konventionellen Dünnschliff-Präparation erlaubt dieses Verfahren die gezielte, präzise Präparation selektierter Nanostrukturen.

Durch die nanoskopische optische Analyse wurden bedeutende Erkenntnisse über das Emissionsverhalten von GaN-Nanosäulen erlangt. Die Mehrheit der Nanosäulen emittiert eine intensive Lumineszenz des Donator-gebundenen Exzitons bei 357,5 nm. Mittels hochortsaufgelöster STEM-CL-Mikroskopie wurde gezeigt, dass die Intensität der exzitonischen Emission in einem Bereich von ca. 30 nm um die $\{1\bar{1}00\}$ -Oberflächen der Nanosäulen stark reduziert wird. Ursache hierfür sind zum einen nicht-strahlende Oberflächenrekombinationsprozesse und zum anderen die Ausbildung einer Raumladungszone durch das Fermi-Level-Pinning.

Darüber hinaus konnte mit Hilfe struktureller TEM-Analysen nachgewiesen werden, dass Stapelfehler in den GaN-Nanosäulen gebildet werden. Durch die direkte Korrelation der Lumineszenz mit der kristallinen Realstruktur wurde die charakteristische Emission der Basalflächenstapelfehler vom Typ I_1 bei 361 nm, vom Typ I_2 bei 374 nm und vom Typ E bei 377 nm identifiziert. Weiterhin wurde der Ladungsträgertransport zu den Stapelfehlern näher analysiert und eine ambipolare Diffusionslänge von (95 ± 10) nm bei $T = 15$ K bestimmt. Der Einflussbereich der Defekte liegt dementsprechend in der Größenordnung der Nanosäulen, sodass die strahlende Rekombination an Stapelfehlern zum dominierenden Lumineszenzprozess wird.

InGaN/GaN-Mikrosäulen-LED

Erstmalig wurde die hochortsaufgelöste STEM-CL-Mikroskopie an InGaN/GaN-Mikrosäulen mit Kern-Mantel-Geometrie erfolgreich demonstriert. Durch die mikroskopische Analyse der Lumineszenzcharakteristik konnte gezeigt werden, dass im dreidimensionalen Wachstumsprozess von Si-dotierten GaN-Mikrosäulen mittels MOVPE vermehrt Punktdefekte als nicht-strahlende Rekombinationszentren eingebaut werden.

Darüber hinaus wurden grundlegende Erkenntnisse über die strukturellen und optischen Eigenschaften der spezifischen Wachstumsdomänen der Mantel-Schichten gewonnen. Anders als der n-dotierte GaN-Kern emittieren die GaN-Mantel-Schichten eine intensive exzitonische Lumineszenz bei 357 nm. Die Ergebnisse beweisen, dass durch die Erhöhung des V/III-Verhältnis, sowie der Reduktion des Silan-Flusses und eine verringerte Wachstumstemperatur während der Deposition der Mantel-Schichten weniger nicht-strahlende Rekombinationszentren gebildet werden. Allerdings unterscheiden sich die Wachstumsraten der Mantel-Schichten auf den semi- und non-polaren Facetten signifikant. So bewirkt eine höhere Wachstumsrate auf den $\{1\bar{1}00\}$ -Facetten gegenüber den $\{1\bar{1}01\}$ -Facetten eine erhebliche größere Dicke der non-polaren Mantel-Schichten.

Trotz einer Verringerung der Quantenfilm-Schichtdicke von (6 ± 1) nm auf den $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten zu (4 ± 1) nm auf den $\{1\bar{1}01\}$ -Facetten wird in den STEM-CL-Untersuchungen eine Rotverschiebung der InGaN-Lumineszenz von 435 nm auf bis zu 520 nm gefunden. Die Ursache für die spektrale Rotverschiebung auf den semi-polaren Facetten liegt zum einen in den inhärenten Polarisationsfeldern, die eine Verkipfung von Leitungs- und Valenzband bewirken. Weiterhin deutet der Vergleich der strukturellen und optischen Messdaten mit der Simulation der Übergangsenergie des Quantenfilms auf einen Facetten-abhängigen Einbau von Indium hin.

Aus dem Verlauf der Intensität der Quantenfilm-Lumineszenz wurde der laterale Ladungsträgertransport in den non-polaren Mantel-Schichten der Mikrosäulen-LED abgeleitet. In der inneren n-dotierten GaN-Mantel-Schicht wurde die Einfanglänge der Ladungsträger bzw. Exzitonen zu $L_n = (66 \pm 5)$ nm bei $T = 16$ K bestimmt. Im Vergleich dazu ist die Einfanglänge der Ladungsträger und Exzitonen in der p-GaN-Schicht mit $L_p = (35 \pm 5)$ nm wesentlich kürzer. Die Ergebnisse weisen auf eine schlechtere Kristallqualität durch den Einbau von Punktdefekten in der Mg-dotierten GaN-Deckschicht hin. Die Bildung von Punktdefekten durch die Selbstkompensation wird durch die Emission der blauen Defekt-Lumineszenz von der p-GaN-Schicht bestätigt.

Anhand der gewonnen Erkenntnisse konnten gezielte Hinweise für die zukünftige Optimierung des Wachstums von dreidimensionalen Mikrosäulen-LEDs geliefert werden.

InGaN/GaN-Mikrosäulen mit hohem Aspekt-Verhältnis

Die Auswirkung von strukturellen und chemischen Inhomogenitäten auf die Emissionscharakteristik von InGaN/GaN-Mikrosäulen mit hohem Aspekt-Verhältnis ist ein weiterer Schwerpunkt dieser Arbeit. Durch die Korrelation von quantitativer HAADF-Analyse und STEM-CL-Mikroskopie konnten neue Erkenntnisse über den Einbaumechanismus von Indium in den koaxialen InGaN-Quantenfilmen gewonnen werden.

Ein hohes Aspekt-Verhältnis der Mikrosäulen wurde durch ein längeres Wachstum des Si-dotierten GaN-Kerns erreicht, sodass sich aus der Höhe der Mikrosäulen von $8,8 \mu\text{m}$ und einem Durchmesser von $1,1 \mu\text{m}$ eine 3,5-fache Vergrößerung der optisch aktiven Leuchtfläche gegenüber einer planaren Struktur ergibt. Trotz der morphologischen Homogenität der InGaN/GaN-Mikrosäulen im selektiven Wachstumsprozess ist die Quantenfilm-Lumineszenz durch die Steigerung des Aspekt-Verhältnisses der Säulen inhomogen auf bis zu $\text{FWHM} = 500$ meV verbreitert. Ursache dafür ist eine spektrale Verschiebung der Quantenfilm-Lumineszenz vertikal entlang der non-polaren $\{1\bar{1}00\}$ -Seitenfacetten von 410 nm auf 471 nm. Durch den Vergleich von CL- und HAADF-Ergebnissen konnte gezeigt werden, dass der Wellenlängengradient auf eine Zunahme der Quantenfilmdicke von $(6,0 \pm 0,2)$ nm auf $(13,1 \pm 0,2)$ nm und einer Erhöhung der mittleren Indiumkonzentration von 11% zu 13% zurückzuführen ist. Ursache für die Veränderung der Schichtdicke und Komposition des Quantenfilms ist reduzierte Gasphasen-Diffusion in Richtung des Substrats.

Anhand hochauflösender STEM-CL-Mikroskopie wurde zudem festgestellt, dass kurzreichweitige Intensitäts- und Wellenlängenfluktuationen der Quantenfilm-Lumineszenz auftreten. Mit Hilfe quantitativer Z-Kontrastabbildung konnten Kompositionsfluktuationen und Grenzflächenrauigkeiten des InGaN-Quantenfilms als Ursache nachgewiesen werden. Die Kompositionsschwankungen liegen in einem Bereich von bis zu $\Delta[\text{In}] = \pm 7\%$ und einer räumlichen Ausdehnung von $3 - 10$ nm. Erstmals konnte die Lokalisation der Ladungsträger in den lokalen Potentialminima mittels STEM-CL auf Nanometer-Skala visualisiert werden. Die jeweiligen Rekombinationszentren sind durch schmalbandige Emissionslinien mit Halbwertsbreiten von bis zu 15 meV gekennzeichnet.

Die Zunahme der strukturellen und chemischen Inhomogenitäten zum oberen Bereich der Mikrosäulen bewirkt lokal eine zusätzliche spektrale Verbreiterung der Quantenfilm-Lumineszenz. Die Bildung von Indium-reichen Ansammlungen im Quantenfilm verstärkt zudem die spektrale Verschiebung der Quantenfilm-Emission zu längeren Wellenlängen entlang der non-polaren Seitenfacetten.

Aus den Untersuchungen ergibt sich ein differenzierter Überblick über die verschiedenen Arten von InGaN-Inhomogenitäten in dreidimensionalen Nanostrukturen.

Ausblick

Für die zukünftige Integration von Nano- und Mikrosäulen in optoelektronischen Bauelementen sind wesentliche Weiterentwicklungen nötig, um die Vorteile der dreidimensionalen Strukturen gegen einen erhöhten Prozessaufwand abzuwiegen. Insbesondere die Verbesserung der Homogenität der Mantel-Schichten hinsichtlich der strukturellen, chemischen und optischen Eigenschaften ist von essentieller Bedeutung. Die im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse zeigen, dass die Nanocharakterisierung notwendig ist, um eben diese Eigenschaften mit höchster räumlicher Auflösung zu analysieren und weitergehend zu optimieren.

Die abbildenden und analytischen Methoden der Kathodolumineszenz-Spektroskopie im Transmissionselektronenmikroskop erwiesen sich als ein leistungsstarkes Verfahren zur Charakterisierung dreidimensionaler Nanostrukturen. Eine zukünftige Erweiterung der STEM-CL mit zusätzlichen Detektionsverfahren eröffnet die Möglichkeit den Anwendungsbereich der Methodik deutlich auszuweiten. Mit der Durchführung von Hanbury-Brown-Twiss-Experimenten an der STEM-CL könnte beispielsweise die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung von Einzelphotonenemittern auf Nanosäulen analysiert und direkt mit der kristallinen Realstruktur korreliert werden. Eine weitere Möglichkeit zur Erweiterung bietet die gleichzeitige Messung des durch Elektronenstrahl induzierten Stroms in der TEM-Lamelle zur Charakterisierung der elektronischen Eigenschaften von Bauelementen.

Darüber hinaus konnte bereits in Ref. [300] gezeigt werden, dass die Anwendung der Tieftemperatur-STEM-CL nicht auf GaN-basierte Halbleiter beschränkt ist, sondern auch für die weitere Materialsysteme wie beispielsweise GaAs-Nanosäulen anwendbar ist.

Literaturverzeichnis

- [1] Amano, H., Kito, M., Hiramatsu, K., and Akasaki, I. *Japanese Journal of Applied Physics* **28**(12A), L2112 (1989).
- [2] The Nobel Prize in Physics 2014, Advanced Information and Scientific Background: Efficient Blue Light, www.nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/2014/advanced.html. 19.05.2012.
- [3] Riechert, H. *Physik Journal* **13**, 28 (2014).
- [4] Narukawa, Y., Ichikawa, M., Sanga, D., Sano, M., and Mukai, T. *Journal of Physics D: Applied Physics* **43**(35), 354002 (2010).
- [5] Cree First to Break 300 Lumens-Per-Watt Barrier, <http://www.cree.com/news-media/news/article/cree-first-to-break-300-lumens-per-watt-barrier>. 26.03.2014.
- [6] Nakamura, S., Senoh, M., and Mukai, T. *Applied Physics Letters* **62**(19), 2390–2392 (1993).
- [7] Nakamura, S., Senoh, M., Iwasa, N., Nagahama, S., Yamada, T., and Mukai, T. *Japanese Journal of Applied Physics* **34**(10B), L1332 (1995).
- [8] Nishida, T., Saito, H., and Kobayashi, N. *Applied Physics Letters* **79**(6), 711–712 (2001).
- [9] Krames, M. R., Shchekin, O. B., Mueller-Mach, R., Mueller, G. O., Zhou, L., Harbers, G., and Craford, M. G. *Journal of Display Technology* **3**(2), 160–175 (2007).
- [10] Hirayama, H., Fujikawa, S., Noguchi, N., Norimatsu, J., Takano, T., Tsubaki, K., and Kamata, N. *physica atatus aolidi (A)* **206**(6), 1176–1182 (2009).
- [11] Laubsch, A., Sabathil, M., Baur, J., Peter, M., and Hahn, B. *IEEE Transactions on Electron Devices* **57**(1), 79–87 (2010).
- [12] Waltereit, P., Brandt, O., Trampert, A., Grahn, H., Monniger, J., Ramsteiner, M., Relche, M., and Ploog, K. *Nature* **406**(6798), 865–868 (2000).
- [13] Kim, M.-H., Schubert, M. F., Dai, Q., Kim, J. K., Schubert, E. F., Piprek, J., and Park, Y. *Applied Physics Letters* **91**(18), 183507 (2007).
- [14] Lester, S. D., Ponce, F. A., Craford, M. G., and Steigerwald, D. A. *Applied Physics Letters* **66**(10), 1249–1251 (1995).
- [15] Nakamura, S. *Science* **281**(5379), 956–961 (1998).

- [16] Laubsch, A., Sabathil, M., Bergbauer, W., Strassburg, M., Lugauer, H., Peter, M., Lutgen, S., Linder, N., Streubel, K., Hader, J., Moloney, J. V., Pasenow, B., and Koch, S. W. *physica status solidi (c)* **6**(S2), 913–916 (2009).
- [17] Kioupakis, E., Rinke, P., Delaney, K. T., and de Walle, C. G. V. *Applied Physics Letters* **98**(16), 161107 (2011).
- [18] Binder, M., Nirschl, A., Zeisel, R., Hager, T., Lugauer, H.-J., Sabathil, M., Bougeard, D., Wagner, J., and Galler, B. *Applied Physics Letters* **103**(7), 071108 (2013).
- [19] Iveland, J., Martinelli, L., Peretti, J., Speck, J. S., and Weisbuch, C. *Physical Review Letters* **110**, 177406 (2013).
- [20] Qian, F., Li, Y., Gradečak, S., Wang, D., Barrelet, C. J., and Lieber, C. M. *Nano Letters* **4**(10), 1975–1979 (2004).
- [21] Kikuchi, A., Kawai, M., Tada, M., and Kishino, K. *Japanese Journal of Applied Physics* **43**(12A), L1524 (2004).
- [22] Li, S. and Waag, A. *Journal of Applied Physics* **111**(7), 071101 (2012).
- [23] Hong, Y. J., Lee, C.-H., Yoon, A., Kim, M., Seong, H.-K., Chung, H. J., Sone, C., Park, Y. J., and Yi, G.-C. *Advanced Materials* **23**(29), 3284–3288 (2011).
- [24] Mandl, M., Wang, X., Schimpke, T., Kölper, C., Binder, M., Ledig, J., Waag, A., Kong, X., Trampert, A., Bertram, F., Christen, J., Barbagini, F., Calleja, E., and Strassburg, M. *physica status solidi – Rapid Research Letters* **7**(10), 800–814 (2013).
- [25] Tchernycheva, M., Lavenus, P., Zhang, H., Babichev, A. V., Jacopin, G., Shahmohammadi, M., Julien, F. H., Ciechonski, R., Vescovi, G., and Kryliouk, O. *Nano Letters* **14**(5), 2456–2465 (2014).
- [26] Tu, C.-G., Yao, Y.-F., Liao, C.-H., Su, C.-Y., Hsieh, C., Weng, C.-M., Lin, C.-H., Chen, H.-T., Kiang, Y.-W., and Yang, C. C. *Optics Express* **23**, 21919 (2015).
- [27] Jung, B. O., Bae, S.-Y., Lee, S., Kim, S. Y., Lee, J. Y., Honda, Y., and Amano, H. *Nanoscale Research Letters* **11**(1), 1–10 (2016).
- [28] Hersee, S. D., Rishinaramangalam, A. K., Fairchild, M. N., Zhang, L., and Varangis, P. *Journal of Materials Research* **26**, 2293–2298 (2011).
- [29] Huang, Y., Duan, X., Cui, Y., and Lieber, C. M. *Nano Letters* **2**(2), 101–104 (2002).
- [30] Cha, H.-Y., Wu, H., Chandrashekar, M., Choi, Y. C., Chae, S., Koley, G., and Spencer, M. G. *Nanotechnology* **17**(5), 1264 (2006).
- [31] Chen, C.-P., Ganguly, A., Lu, C.-Y., Chen, T.-Y., Kuo, C.-C., Chen, R.-S., Tu, W.-H., Fischer, W. B., Chen, K.-H., and Chen, L.-C. *Analytical Chemistry* **83**(6), 1938–1943 (2011).

- [32] Deshpande, S., Heo, J., Das, A., and Bhattacharya, P. *Nature Communications* **4**, 1675 (2013).
- [33] Holmes, M. J., Choi, K., Kako, S., Arita, M., and Arakawa, Y. *Nano Letters* **14**(2), 982–986 (2014).
- [34] Gacevic, Z., Holmes, M., Chernysheva, E., Müller, M., Torres-Pardo, A., Veit, P., Bertram, F., Christen, J., Gonzalez Calbet, J. M., Arakawa, Y., Calleja, E., and Lazic, S. *ACS Photonics* **4**(3), 657–664 (2017).
- [35] Johnson, J., Choi, H.-J., Knutsen, K., Schaller, R., Yang, P., and Saykally, R. *Nature Materials* **1**(2), 106–110 (2002).
- [36] Qian, F., Li, Y., Gradecak, S., Park, H.-G., Dong, Y., Ding, Y., Wang, Z., and Lieber, C. *Nature Materials* **7**(9), 701–706 (2008).
- [37] Li, Q., Wrigh, J., Chow, W., Luk, T., Brener, I., Lester, L., and Wang, G. *Optics Express* **20**(16), 17873–17879 (2012).
- [38] Petroff, P., Lang, D., Strudel, J., and Logan, R. *Scanning Electron Microscopy* **1**, 325 (1978).
- [39] Pennycook, S. and Brown, L. *Journal of Luminescence* **18/19**, 905–909 (1979).
- [40] Albrecht, M., Strunk, H. P., Weyher, J. L., Grzegory, I., Porowski, S., and Wosinski, T. *Journal of Applied Physics* **92**(4), 2000–2005 (2002).
- [41] Yamamoto, N., Itoh, H., Grillo, V., Chichibu, S. F., Keller, S., Speck, J. S., DenBaars, S. P., Mishra, U. K., Nakamura, S., and Salviati, G. *Journal of Applied Physics* **94**(7), 4315–4319 (2003).
- [42] Zagonel, L. F., Rigutti, L., Tchernycheva, M., Jacopin, G., Songmuang, R., and Kociak, M. *Nanotechnology* **23**(45), 455205 (2012).
- [43] Schmidt, G., Müller, M., Veit, P., Bertram, F., Christen, J., Glauser, M., Carlin, J.-F., Cosendey, G., Butté, R., and Grandjean, N. *Applied Physics Letters* **105**(3), 032101 (2014).
- [44] Morkoç, H. *Nitride Semiconductors and Devices*. Springer-Verlag, Berlin - Heidelberg, (1999).
- [45] Grundmann, M. *The Physics of Semiconductors: An Introduction including Nanophysics and Applications*. Springer-Verlag, Berlin - New York, (2010).
- [46] NSM Archive - Physical Properties of Semiconductors, www.ioffe.rssi.ru/SVA/NSM/Semicond/index.html. 19.05.2012.
- [47] Piprek, J. *Nitride Semiconductor Devices - Principles and Simulation*. Wiley Verlag, Weinheim, (2007).
- [48] Yim, W. M. and Paff, R. J. *Journal of Applied Physics* **45**(3), 1456–1457 (1974).
- [49] Vegard, L. *Zeitschrift für Physik* **5**, 17–26 (1921).

- [50] Egawa, T., Zhang, B., and Ishikawa, H. *IEEE Electron Device Letters* **26**(3), 169–171 (2005).
- [51] Liu, L. and Edgar, J. *Materials Science and Engineering: R: Reports* **37**(3), 61–127 (2002).
- [52] Ambacher, O. and Cimalla, V. *Polarization Effects in Semiconductors: From Ab Initio Theory to Device Applications*, 27–109. Springer US, Boston (2008).
- [53] Mattila, T. and Zunger, A. *Journal of Applied Physics* **85**(1), 160–167 (1999).
- [54] Bernardini, F., Fiorentini, V., and Vanderbilt, D. *Physical Review B* **56**, R10024 (1997).
- [55] Bernardini, F. and Fiorentini, V. *Physical Review B* **64**, 085207 (2001).
- [56] Romanov, A. E., Baker, T. J., Nakamura, S., and Speck, J. S. *Journal of Applied Physics* **100**(2), 023522 (2006).
- [57] Chang, J.-R., Chang, S.-P., Li, Y.-J., Cheng, Y.-J., Sou, K.-P., Huang, J.-K., Kuo, H.-C., and Chang, C.-Y. *Applied Physics Letters* **100**(26), 261103 (2012).
- [58] Vogt, A., Hartmann, J., Zhou, H., Mohajerani, M. S., Fündling, S., Szafranski, B., Wehmann, H.-H., Waag, A., Voss, T., Schimpke, T., Avramescu, A., and Strassburg, M. *Journal of Materials Research* **32**(13), 2456–2463 (2017).
- [59] Miller, D. A. B., Chemla, D. S., Damen, T. C., Gossard, A. C., Wiegmann, W., Wood, T. H., and Burrus, C. A. *Physical Review Letters* **53**, 2173–2176 (1984).
- [60] Feneberg, M., Lipski, F., Sauer, R., Thonke, K., Wunderer, T., Neubert, B., Brückner, P., and Scholz, F. *Applied Physics Letters* **89**(24), 242112 (2006).
- [61] Chichibu, S., Sota, T., Wada, K., and Nakamura, S. *Journal of Vacuum Science and Technology B* **16**(4), 2204–2214 (1998).
- [62] Langer, T., Kruse, A., Ketzer, F. A., Schwiegel, A., Hoffmann, L., Jönen, H., Bremers, H., Rossow, U., and Hangleiter, A. *physica status solidi (c)* **8**(7-8), 2170–2172 (2011).
- [63] Vurgaftman, I. and Meyer, J. R. *Journal of Applied Physics* **94**(6), 3675–3696 (2003).
- [64] Strite, S. and Morkoç, H. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena* **10**(4), 1237–1266 (1992).
- [65] Feneberg, M., Neuschl, B., Thonke, K., Collazo, R., Rice, A., Sitar, Z., Dalmau, R., Xie, J., Mita, S., and Goldhahn, R. *physica status solidi (a)* **208**(7), 1520–1522 (2011).
- [66] Monemar, B., Paskov, P., and Kasic, A. *Superlattices and Microstructures* **38**(1), 38–56 (2005).
- [67] Volm, D., Oettinger, K., Streibl, T., Kovalev, D., Ben-Chorin, M., Diener, J., Meyer, B. K., Majewski, J., Eckey, L., Hoffmann, A., Amano, H., Akasaki, I., Hiramatsu, K., and Detchprohm, T. *Phys. Rev. B* **53**, 16543–16550 (1996).
- [68] Klingshirn, C. F. *Semiconductor optics*. Springer, Berlin ;, New York, (2005).

- [69] Arnaudov, B., Paskova, T., Goldys, E. M., Evtimova, S., and Monemar, B. *Physical Review B* **64**, 045213 (2001).
- [70] Hartmann, J., Wang, X., Schuhmann, H., Dziony, W., Caccamo, L., Ledig, J., Mohajerani, M. S., Schimpke, T., Bähr, M., Lilienkamp, G., Daum, W., Seibt, M., Straßburg, M., Wehmann, H.-H., and Waag, A. *physica status solidi (a)* **212**(12), 2830–2836 (2015).
- [71] Feneberg, M., Osterburg, S., Lange, K., Lidig, C., Garke, B., Goldhahn, R., Richter, E., Netzel, C., Neumann, M. D., Esser, N., Fritze, S., Witte, H., Bläsing, J., Dadgar, A., and Krost, A. *Phys. Rev. B* **90**, 075203 (2014).
- [72] Arnaudov, B., Paskova, T., Goldys, E. M., Yakimova, R., Evtimova, S., Ivanov, I. G., Henry, A., and Monemar, B. *Journal of Applied Physics* **85**(11), 7888–7892 (1999).
- [73] Sanchez-Garcia, M., Calleja, E., Monroy, E., Sanchez, F., Calle, F., Muñoz, E., and Beresford, R. *Journal of Crystal Growth* **183**(1), 23 – 30 (1998).
- [74] Yoshizawa, M., Kikuchi, A., Mori, M., Fujita, N., and Kishino, K. *Japanese Journal of Applied Physics* **36**(4B), L459 (1997).
- [75] Zubia, D. and Hersee, S. D. *Journal of Applied Physics* **85**(9), 6492–6496 (1999).
- [76] Calleja, E., Sánchez-García, M. A., Sánchez, F. J., Calle, F., Naranjo, F. B., Muñoz, E., Jahn, U., and Ploog, K. *Physical Review B* **62**, 16826–16834 (2000).
- [77] Hersee, S. D., Sun, X., and Wang, X. *Nano Letters* **6**(8), 1808–1811 (2006).
- [78] Wagner, R. S. and Ellis, W. C. *Applied Physics Letters* **4**(5), 89–90 (1964).
- [79] Kuykendall, T., Pauzauskie, P., Lee, S., Zhang, Y., Goldberger, J., and Yang, P. *Nano Letters* **3**(8), 1063–1066 (2003).
- [80] Li, Q. and Wang, G. T. *Applied Physics Letters* **93**(4), 043119 (2008).
- [81] Liu, B., Bando, Y., Tang, C., Xu, F., and Golberg, D. *Applied Physics Letters* **87**(7), 073106 (2005).
- [82] Koester, R., Hwang, J. S., Durand, C., Dang, D. L. S., and Eymery, J. *Nanotechnology* **21**(1), 015602 (2010).
- [83] Kishino, K., Kikuchi, A., Sekiguchi, H., and Ishizawa, S. *SPIE Conference Proceedings* **6473**, 64730T (2007).
- [84] Bavencove, A.-L., Tourbot, G., Garcia, J., Désières, Y., Gilet, P., Levy, F., André, B., Gayral, B., Daudin, B., and Dang, L. S. *Nanotechnology* **22**(34), 345705 (2011).
- [85] Krylyuk, S., Paramanik, D., King, M., Motayed, A., Ha, J.-Y., Bonevich, J. E., Talin, A., and Davydov, A. V. *Applied Physics Letters* **101**(24), 241119 (2012).

- [86] Shields, P., Hugues, M., Zúñiga-Pérez, J., Cooke, M., Dineen, M., Wang, W., Causa, F., and Allsopp, D. *physica status solidi (c)* **9**(3-4), 631–634 (2012).
- [87] Wang, C.-Y., Chen, L.-Y., Chen, C.-P., Cheng, Y.-W., Ke, M.-Y., Hsieh, M.-Y., Wu, H.-M., Peng, L.-H., and Huang, J. *Opt. Express* **16**(14), 10549–10556 (2008).
- [88] Müller, M., Schmidt, G., Metzner, S., Veit, P., Bertram, F., Krylyuk, S., Debnath, R., Ha, J.-Y., Wen, B., Blanchard, P., Motayed, A., King, M. R., Davydov, A. V., and Christen, J. *Japanese Journal of Applied Physics* **55**(5S), 05FF02 (2016).
- [89] Schimpke, T., Mandl, M., Stoll, I., Pohl-Klein, B., Bichler, D., Zwaschka, F., Strube-Knyrim, J., Huckenbeck, B., Max, B., Müller, M., Veit, P., Bertram, F., Christen, J., Hartmann, J., Waag, A., Lugauer, H.-J., and Strassburg, M. *physica status solidi (a)* **213**(6), 1577–1584 (2016).
- [90] Kishino, K., Sekiguchi, H., and Kikuchi, A. *Journal of Crystal Growth* **311**(7), 2063–2068 (2009).
- [91] Urban, A., Malindretos, J., Klein-Wiele, J.-H., Simon, P., and Rizzi, A. *New Journal of Physics* **15**(5), 053045 (2013).
- [92] Eriksson, T., Lee, K.-D., Heidari, B., Rode, P., Bergbauer, W., Mandl, M., Kölper, C., and Strassburg, M. *SPIE Conference Proceedings* **7970**, 797015 (2011).
- [93] Liao, C.-H., Chang, W.-M., Chen, H.-S., Chen, C.-Y., Yao, Y.-F., Chen, H.-T., Su, C.-Y., Ting, S.-Y., Kiang, Y.-W., and Yang, C. C. *Optics Express* **20**(14), 15859–15871 (2012).
- [94] Cord, B., Yang, J., Duan, H., Joy, D. C., Klingfus, J., and Berggren, K. K. *Journal of Vacuum Science and Technology B* **27**(6), 2616–2621 (2009).
- [95] Grigorescu, A. E. and Hagen, C. W. *Nanotechnology* **20**(29), 292001 (2009).
- [96] Wang, X., Albrecht, A., Mai, H. H., Woitdt, C., Meinl, T., Hornung, M., Bartels, M., and Hillmer, H. *Microelectronic Engineering* **110**, 44 – 51 (2013).
- [97] Albert, S., Bengoechea-Encabo, A. M., Barbagini, F., Lopez-Rormero, D., Sanchez-Garcia, M. A., Calleja, E., Lefebvre, P., Kong, X., Jahn, U., Trampert, A., Müller, M., Bertram, F., Schmidt, G., Veit, P., Petzold, S., Christen, J., De Mierry, P., and Zuñiga-Perez, J. *International Journal of High Speed Electronics and Systems* **23**(03), 1450020 (2014).
- [98] Götz, W., Johnson, N. M., Chen, C., Liu, H., Kuo, C., and Imler, W. *Applied Physics Letters* **68**(22), 3144–3146 (1996).
- [99] Mohajerani, M. S., Khachadorian, S., Schimpke, T., Nenstiel, C., Hartmann, J., Ledig, J., Avramescu, A., Strassburg, M., Hoffmann, A., and Waag, A. *Applied Physics Letters* **108**(9), 091112 (2016).
- [100] Götz, W., Johnson, N. M., Walker, J., Bour, D. P., and Street, R. A. *Applied Physics Letters* **68**(5), 667–669 (1996).

-
- [101] Leroux, M., Grandjean, N., Beaumont, B., Nataf, G., Semond, F., Massies, J., and Gibart, P. *Journal of Applied Physics* **86**(7), 3721–3728 (1999).
- [102] Lee, S.-G. and Chang, K. J. *Semiconductor Science and Technology* **14**(2), 138 (1999).
- [103] Kaufmann, U., Kunzer, M., Obloh, H., Maier, M., Manz, C., Ramakrishnan, A., and Santic, B. *Physical Review B* **59**, 5561–5567 (1999).
- [104] Waag, A., Wang, X., Fündling, S., Ledig, J., Erenburg, M., Neumann, R., Al Suleiman, M., Merzsch, S., Wei, J., Li, S., Wehmann, H. H., Bergbauer, W., Straßburg, M., Trampert, A., Jahn, U., and Riechert, H. *physica status solidi (c)* **8**(7-8), 2296–2301 (2011).
- [105] Kölper, C., Sabathil, M., Römer, F., Mandl, M., Strassburg, M., and Witzigmann, B. *physica status solidi (a)* **209**(11), 2304–2312 (2012).
- [106] Albert, S., Bengoechea-Encabo, A., Kong, X., Sanchez-Garcia, M. A., Calleja, E., and Trampert, A. *Applied Physics Letters* **102**(18), 181103 (2013).
- [107] Landre, O., Songmuang, R., Renard, J., Bellet-Amalric, E., Renevier, H., and Daudin, B. *Applied Physics Letters* **93**(18), 183109 (2008).
- [108] Kim, H.-M., Cho, Y.-H., Lee, H., Kim, S. I., Ryu, S. R., Kim, D. Y., Kang, T. W., and Chung, K. S. *Nano Letters* **4**(6), 1059–1062 (2004).
- [109] Avit, G., Andre, Y., Bougerol, C., Castelluci, D., Dussaigne, A., Ferret, P., Gaugiran, S., Gayral, B., GIL, E., Lee, Y., Ramdani, M. R., Roche, E., and Trassoudaine, A. *Crystal Growth & Design* **16**(5), 2509–2513 (2016).
- [110] Wang, X. and Yoshikawa, A. *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials* **48**, 42–103 (2004).
- [111] Herman, M. A. and Sitter, H. *Molecular Beam Epitaxy: Fundamentals and Current Status* **7**. Springer, Berlin-Heidelberg, (1996).
- [112] Tourbot, G., Bougerol, C., Glas, F., Zagonel, L. F., Mahfoud, Z., Meuret, S., Gilet, P., Kociak, M., Gayral, B., and Daudin, B. *Nanotechnology* **23**(13), 135703 (2012).
- [113] Albert, S., Bengoechea-Encabo, A., Lefebvre, P., Barbagini, F., Sanchez-Garcia, M. A., Calleja, E., Jahn, U., and Trampert, A. *Applied Physics Letters* **100**(23), 231906 (2012).
- [114] Ambacher, O. *Journal of Physics D: Applied Physics* **31**(20), 2653 (1998).
- [115] Stringfellow, G. *Organometallic Vapor-Phase Epitaxy: Theory and Practice*. Academic Press, San Diego, (1999).
- [116] Bergbauer, W., Strassburg, M., Kölper, C., Linder, N., Roder, C., Lähnemann, J., Trampert, A., Fündling, S., Li, S., Wehmann, H.-H., and Waag, A. *Journal of Crystal Growth* **315**(1), 164–167 (2011).

- [117] Rosa, A. L., Neugebauer, J., Northrup, J. E., Lee, C.-D., and Feenstra, R. M. *Applied Physics Letters* **80**(11), 2008–2010 (2002).
- [118] Müller, M., Schmidt, G., Metzner, S., Veit, P., Bertram, F., Leute, R. A. R., Heinz, D., Wang, J., Meisch, T., Scholz, F., and Christen, J. *physica status solidi (b)* **253**(1), 112–117 (2016).
- [119] Gačević, Z., Vukmirović, N., García-Lepetit, N., Torres-Pardo, A., Müller, M., Metzner, S., Albert, S., Bengoechea-Encabo, A., Bertram, F., Veit, P., Christen, J., González-Calbet, J. M., and Calleja, E. *Physical Review B* **93**, 125436 (2016).
- [120] Schmidt, G., Berger, C., Veit, P., Metzner, S., Bertram, F., Bläsing, J., Dadgar, A., Strittmatter, A., Christen, J., Callsen, G., Kalinowski, S., and Hoffmann, A. *Applied Physics Letters* **106**(25), 252101 (2015).
- [121] Urban, A., Müller, M., Karbaum, C., Schmidt, G., Veit, P., Malindretos, J., Bertram, F., Christen, J., and Rizzi, A. *Nano Letters* **15**(8), 5105–5109 (2015).
- [122] Schmidt, G., Veit, P., Wieneke, M., Bertram, F., Dadgar, A., Krost, A., and Christen, J. *physica status solidi (b)* **253**(1), 73–77 (2016).
- [123] Bertram, F. *Kathodolumineszenz-Mikroskopie an komplexen, lokal-selektiven Epitaxie- und lateral überwachsenen GaN-Strukturen*,. PhD thesis, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, (1999).
- [124] Christen, J., Grundmann, M., and Bimberg, D. *Journal of Vacuum Science and Technology B* **9**(4), 2358–2368 (1991).
- [125] Christen, J. and Riemann, T. *physica status solidi (b)* **228**(2), 419–424 (2001).
- [126] Monte-Carlo-Simulationssoftware. *Casino* , <http://www.gel.usherbrooke.ca/casino/index.html> (version 2.4.8.1).
- [127] Mitsui, T., Sekiguchi, T., Fujita, D., and Koguchi, N. *Japanese Journal of Applied Physics* **44**(4R), 1820 (2005).
- [128] Kanaya, K. and Okayama, S. *Journal of Physics D: Applied Physics* **5**(1), 43 – 58 (1972).
- [129] Pennycook, S., Craven, A., and Brown, L. *Institute of Physics Conference Series* **36**, 69–72 (1977).
- [130] Pennycook, S., Brown, L., and Craven, A. *Philosophical Magazine A* **41**, 589–600 (1980).
- [131] Pennycook, S. and Howie, A. *Philosophical Magazine A* **41**, 809–827 (1980).
- [132] Petroff, P. M., Logan, R. A., and Savage, A. *Journal of Microscopy* **118**(3), 255–261 (1980).
- [133] Petroff, P. M., Logan, R. A., and Savage, A. *Physical Review Letters* **44**, 287–291 (1980).
- [134] Petroff, P. M., Weisbuch, C., Dingle, R., Gossard, A. C., and Wiegmann, W. *Applied Physics Letters* **38**(12), 965–968 (1981).

-
- [135] Williams, D. B. and Carter, C. B. *Transmission electron microscopy: A textbook for materials science*. Springer-Verlag, New York, (2009).
- [136] Alexander, H. *Physikalische Grundlagen der Elektronenmikroskopie*. Teubner-Verlag, Stuttgart, (1997).
- [137] Reimer, L. and Kohl, H. *Transmission electron microscopy: Physics of image formation*. Springer-Verlag, Berlin, (2008).
- [138] Pennycook, S. J. and Nellist, P. D. *Scanning Transmission Electron Microscopy - Imaging and Analysis*. Springer-Verlag, New York - Heidelberg - London, (2011).
- [139] Cowley, J. and Spence, J. *Ultramicroscopy* **3**, 433 – 438 (1978).
- [140] Howie, A. *Journal of Microscopy* **117**(1), 11–23 (1979).
- [141] Voyles, P., Grazul, J., and Muller, D. *Ultramicroscopy* **96**(3–4), 251 – 273 (2003).
- [142] Cowley, J. and Huang, Y. *Ultramicroscopy* **40**(2), 171 – 180 (1992).
- [143] Grillo, V., Carlino, E., and Glas, F. *Physical Review B* **77**, 054103 (2008).
- [144] Grillo, V., Mueller, K., Volz, K., Glas, F., Grieb, T., and Rosenauer, A. *Journal of Physics: Conference Series* **326**(1), 012006 (2011).
- [145] Ohno, Y., Kawai, Y., and Takeda, S. *Physical Review B* **59**, 2694–2699 (1999).
- [146] Bastek, B. *Untersuchung der mikroskopisch optischen Eigenschaften von strukturellen Defekten in GaN-Epitaxie-Schichten mittels Tieftemperatur Kathodolumineszenzmikroskopie im Rasterelektronen- und Transmissionselektronenmikroskop*. PhD thesis, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, (2012).
- [147] O’Neill, J. P., Ross, I. M., Cullis, A. G., Wang, T., and Parbrook, P. J. *Applied Physics Letters* **83**(10), 1965–1967 (2003).
- [148] Humphreys, C. J. *Philosophical Magazine* **87**(13), 1971–1982 (2007).
- [149] Bennett, S. E., Saxey, D. W., Kappers, M. J., Barnard, J. S., Humphreys, C. J., Smith, G. D., and Oliver, R. A. *Applied Physics Letters* **99**(2), 021906 (2011).
- [150] Griffiths, J. T., Zhang, S., Lhuillier, J., Zhu, D., Fu, W. Y., Howkins, A., Boyd, I., Stowe, D., Wallis, D. J., Humphreys, C. J., and Oliver, R. A. *Journal of Applied Physics* **120**(16), 165704 (2016).
- [151] Van Roosbroeck, W. *Journal of Applied Physics* **26**(4), 380–391 (1955).
- [152] Noltemeyer, M. *Hochaufgelöste optische Untersuchungen zum exzitonischen Transport in GaN und ZnO*. PhD thesis, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, (2017).

- [153] Thomas, J. and Gemming, T. *Analytische Transmissionselektronenmikroskopie*. Springer-Verlag, Wien, (2013).
- [154] Urban, A. *Position-controlled selective area growth of Ga-polar GaN nanocolumns by molecular beam epitaxy: A versatile approach towards semipolar GaN and the characterization of single nanocolumns*. PhD thesis, Georg-August-Universität Göttingen, (2013).
- [155] Dubrovskii, V. G., Consonni, V., Trampert, A., Geelhaar, L., and Riechert, H. *Physical Review B* **85**, 165317 (2012).
- [156] Albert, S., Bengoechea-Encabo, A., Lefebvre, P., Barbagini, F., Sanchez-Garcia, M. A., Calleja, E., Jahn, U., and Trampert, A. *Applied Physics Letters* **100**(23), 231906 (2012).
- [157] Liu, R., Bell, A., Ponce, F. A., Chen, C. Q., Yang, J. W., and Khan, M. A. *Applied Physics Letters* **86**(2), 021908 (2005).
- [158] Tischer, I., Feneberg, M., Schirra, M., Yacoub, H., Sauer, R., Thonke, K., Wunderer, T., Scholz, F., Dieterle, L., Müller, E., and Gerthsen, D. *Physical Review B* **83**, 035314 (2011).
- [159] Lähnemann, J., Brandt, O., Jahn, U., Pfüller, C., Roder, C., Dogan, P., Grosse, F., Belabbes, A., Bechstedt, F., Trampert, A., and Geelhaar, L. *Physical Review B* **86**, 081302 (2012).
- [160] Monemar, B. *Journal of Physics Condensed Matter* **13**, 7011–7026 (2001).
- [161] Rebane, Y. T., Shreter, Y. G., and Albrecht, M. *physica status solidi (a)* **164**(1), 141–144 (1997).
- [162] Bastek, B., Bertram, F., Christen, J., Wernicke, T., Weyers, M., and Kneissl, M. *Applied Physics Letters* **92**(21), 212111 (2008).
- [163] Renard, J., Tourbot, G., Sam-Giao, D., Bougerol, C., Daudin, B., and Gayral, B. *Applied Physics Letters* **97**(8), 081910 (2010).
- [164] Jacopin, G., Rigutti, L., Largeau, L., Fortuna, F., Furtmayr, F., Julien, F. H., Eickhoff, M., and Tchernycheva, M. *Journal of Applied Physics* **110**(6), 064313 (2011).
- [165] Zakharov, D. N., Liliental-Weber, Z., Wagner, B., Reitmeier, Z. J., Preble, E. A., and Davis, R. F. *Physical Review B* **71**, 235334 (2005).
- [166] Paskov, P. P., Schifano, R., Monemar, B., Paskova, T., Figge, S., and Hommel, D. *Journal of Applied Physics* **98**(9), 093519 (2005).
- [167] Hull, D. and Bacon, D. *Introduction to Dislocations*. Butterworth-Heinemann, Oxford, (2011).
- [168] Stampfl, C. and Van de Walle, C. G. *Physical Review B* **57**, 15052–15055 (1998).
- [169] Belabbes, A., de Carvalho, L. C., Schleife, A., and Bechstedt, F. *Physical Review B* **84**, 125108 (2011).

- [170] Corfdir, P., Lefebvre, P., Levrat, J., Dussaigne, A., Ganière, J.-D., Martin, D., Ristić, J., Zhu, T., Grandjean, N., and Deveaud-Plédran, B. *Journal of Applied Physics* **105**(4), 043102 (2009).
- [171] Fiorentini, V., Bernardini, F., Della Sala, F., Di Carlo, A., and Lugli, P. *Physical Review B* **60**, 8849–8858 (1999).
- [172] Corfdir, P. and Lefebvre, P. *Journal of Applied Physics* **112**(5), 053512 (2012).
- [173] Badcock, T. J., Kappers, M. J., Moram, M. A., Dawson, P., and Humphreys, C. J. *physica status solidi (b)* **249**(3), 498–502 (2012).
- [174] Hino, T., Tomiya, S., Miyajima, T., Yanashima, K., Hashimoto, S., and Ikeda, M. *Applied Physics Letters* **76**(23), 3421–3423 (2000).
- [175] Qian, W., Skowronski, M., De Graef, M., Doverspike, K., Rowland, L. B., and Gaskill, D. K. *Applied Physics Letters* **66**(10), 1252–1254 (1995).
- [176] Wu, X. H., Brown, L. M., Kapolnek, D., Keller, S., Keller, B., DenBaars, S. P., and Speck, J. S. *Journal of Applied Physics* **80**(6), 3228–3237 (1996).
- [177] Savin, M. M., Chernov, V. M., and Strokova, A. M. *physica status solidi (a)* **35**(2), 747–754 (1976).
- [178] Béré, A. and Serra, A. *Physical Review B* **65**, 205323 (2002).
- [179] Sakai, A., Sunakawa, H., and Usui, A. *Applied Physics Letters* **71**(16), 2259–2261 (1997).
- [180] Tanaka, S., Kawaguchi, Y., Sawaki, N., Hibino, M., and Hiramatsu, K. *Applied Physics Letters* **76**(19), 2701–2703 (2000).
- [181] Gradecak, S., Stadelmann, P., Wagner, V., and Ilegems, M. *Applied Physics Letters* **85**(20), 4648–4650 (2004).
- [182] Cherns, D., Henley, S. J., and Ponce, F. A. *Applied Physics Letters* **78**(18), 2691–2693 (2001).
- [183] Rosner, S. J., Carr, E. C., Ludowise, M. J., Girolami, G., and Erikson, H. I. *Applied Physics Letters* **70**(4), 420–422 (1997).
- [184] Dassonneville, S., Amokrane, A., Sieber, B., Farvacque, J.-L., Beaumont, B., and Gibart, P. *Journal of Applied Physics* **89**(7), 3736–3743 (2001).
- [185] Albrecht, M., Weyher, J. L., Lucznik, B., Grzegory, I., and Porowski, S. *Applied Physics Letters* **92**(23), 231909 (2008).
- [186] Baird, L., Ong, C. P., Cole, R. A., Haegel, N. M., Talin, A. A., Li, Q., and Wang, G. T. *Applied Physics Letters* **98**(13), 132104 (2011).
- [187] Kisielowski, C., Krüger, J., Ruvimov, S., Suski, T., Ager, J. W., Jones, E., Liliental-Weber, Z., Rubin, M., Weber, E. R., Bremser, M. D., and Davis, R. F. *Phys. Rev. B* **54**, 17745–17753 (1996).

- [188] Wagner, J.-M. and Bechstedt, F. *Phys. Rev. B* **66**, 115202 (2002).
- [189] Häberlen, M., Badcock, T. J., Moram, M. A., Hollander, J. L., Kappers, M. J., Dawson, P., Humphreys, C. J., and Oliver, R. A. *Journal of Applied Physics* **108**(3), 033523 (2010).
- [190] As, D. J., Schmilgus, F., Wang, C., Schöttker, B., Schikora, D., and Lischka, K. *Applied Physics Letters* **70**(10), 1311–1313 (1997).
- [191] Mei, J., Srinivasan, S., Liu, R., Ponce, F. A., Narukawa, Y., and Mukai, T. *Applied Physics Letters* **88**(14), 141912 (2006).
- [192] Wu, F., Lin, Y.-D., Chakraborty, A., Ohta, H., DenBaars, S. P., Nakamura, S., and Speck, J. S. *Applied Physics Letters* **96**(23), 231912 (2010).
- [193] Calarco, R., Marso, M., Richter, T., Aykanat, A. I., Meijers, R., v.d. Hart, A., Stoica, T., , and Lüth, H. *Nano Letters* **5**(5), 981–984 (2005).
- [194] Talin, A. A., Wang, G. T., Lai, E., and Anderson, R. J. *Applied Physics Letters* **92**(9), 093105 (2008).
- [195] Jones, F., Léonard, F., Talin, A. A., and Bell, N. S. *Journal of Applied Physics* **102**(1), 014305 (2007).
- [196] Simpkins, B. S., Mastro, M. A., Eddy, C. R., and Pehrsson, P. E. *Journal of Applied Physics* **103**(10), 104313 (2008).
- [197] Demichel, O., Heiss, M., Bleuse, J., Mariette, H., and Fontcuberta i Morral, A. *Applied Physics Letters* **97**(20), 201907 (2010).
- [198] Henzler, M. and Göpel, W. *Oberflächenphysik des Festkörpers*. Teubner-Verlag, Stuttgart, (1994).
- [199] Stoica, T. and Calarco, R. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **17**(4), 859–868 (2011).
- [200] Kočan, M., Rizzi, A., Lüth, H., Keller, S., and Mishra, U. *physica status solidi (b)* **234**(3), 773–777 (2002).
- [201] Sanford, N. A., Blanchard, P. T., Bertness, K. A., Mansfield, L., Schlager, J. B., Sanders, A. W., Roshko, A., Burton, B. B., and George, S. M. *Journal of Applied Physics* **107**(3), 034318 (2010).
- [202] Furusawa, K., Ishikawa, Y., Ikeda, H., Fujito, K., and Chichibu, S. F. *Japanese Journal of Applied Physics* **54**(3), 030303 (2015).
- [203] Nogues, G., Auzelle, T., Den Hertog, M., Gayral, B., and Daudin, B. *Applied Physics Letters* **104**(10), 102102 (2014).
- [204] Noltemeyer, M., Bertram, F., Hempel, T., Bastek, B., Polyakov, A., Christen, J., Brandt, M., Lorenz, M., and Grundmann, M. *Journal of Materials Research* **27**, 2225–2231 (2012).

-
- [205] Pauc, N., Phillips, M. R., Aimez, V., and Drouin, D. *Applied Physics Letters* **89**(16), 161905 (2006).
- [206] Kumakura, K., Makimoto, T., Kobayashi, N., Hashizume, T., Fukui, T., and Hasegawa, H. *Applied Physics Letters* **86**(5), 052105 (2005).
- [207] Ino, N. and Yamamoto, N. *Applied Physics Letters* **93**(23), 232103 (2008).
- [208] Kovalev, D., Averboukh, B., Volm, D., Meyer, B. K., Amano, H., and Akasaki, I. *Physical Review B* **54**, 2518–2522 (1996).
- [209] Lähnemann, J., Jahn, U., Brandt, O., Flissikowski, T., Dogan, P., and Grahn, H. T. *Journal of Physics D: Applied Physics* **47**(42), 423001 (2014).
- [210] Bimberg, D., Münzel, H., Steckenborn, A., and Christen, J. *Physical Review B* **31**, 7788–7799 (1985).
- [211] Metzner, S., Bertram, F., Karbaum, C., Hempel, T., Wunderer, T., Schwaiger, S., Lipski, F., Scholz, F., Wächter, C., Jetter, M., Michler, P., and Christen, J. *physica status solidi (b)* **248**(3), 632–637 (2011).
- [212] Chichibu, S. F., Sugiyama, M., Onuma, T., Kitamura, T., Nakanishi, H., Kuroda, T., Tackeuchi, A., Sota, T., Ishida, Y., and Okumura, H. *Applied Physics Letters* **79**(26), 4319–4321 (2001).
- [213] Bell, A., Christen, J., Bertram, F., Ponce, F. A., Marui, H., and Tanaka, S. *Applied Physics Letters* **84**(1), 58–60 (2004).
- [214] Wang, X., Jahn, U., Mandl, M., Schimpke, T., Hartmann, J., Ledig, J., Straßburg, M., Wehmann, H.-H., and Waag, A. *physica status solidi (a)* **212**(4), 727–731 (2015).
- [215] Li, S. F., Fuendling, S., Wang, X., Merzsch, S., Al-Suleiman, M. A. M., Wei, J. D., Wehmann, H.-H., Waag, A., Bergbauer, W., and Strassburg, M. *Crystal Growth & Design* **11**(5), 1573–1577 (2011).
- [216] Chen, X. J., Perillat-Merceroz, G., Sam-Giao, D., Durand, C., and Eymery, J. *Applied Physics Letters* **97**(15), 151909 (2010).
- [217] Ng, H. M. and Cho, A. Y. *Journal of Vacuum Science and Technology B* **20**(3), 1217–1220 (2002).
- [218] Foxon, C., Novikov, S., Hall, J., Campion, R., Cherns, D., Griffiths, I., and Khongphetsak, S. *Journal of Crystal Growth* **311**(13), 3423–3427 (2009).
- [219] Zhuang, D. and Edgar, J. *Materials Science and Engineering: R: Reports* **48**(1), 1 – 46 (2005).
- [220] Li, D., Sumiya, M., Fuke, S., Yang, D., Que, D., Suzuki, Y., and Fukuda, Y. *Journal of Applied Physics* **90**(8), 4219–4223 (2001).

- [221] Yoshikawa, M., Kunzer, M., Wagner, J., Obloh, H., Schlotter, P., Schmidt, R., Herres, N., and Kaufmann, U. *Journal of Applied Physics* **86**(8), 4400–4402 (1999).
- [222] Schubert, E. F., Goepfert, I. D., Grieshaber, W., and Redwing, J. M. *Applied Physics Letters* **71**(7), 921–923 (1997).
- [223] Schenk, H. P. D., Borenstain, S. I., Berezin, A., Schön, A., Cheifetz, E., Khatsevich, S., and Rich, D. H. *Journal of Applied Physics* **103**(10), 103502 (2008).
- [224] Shockley, W. and Read, W. T. *Physical Review* **87**, 835–842 (1952).
- [225] Chichibu, S. F., Uedono, A., Onuma, T., Sota, T., Haskell, B. A., DenBaars, S. P., Speck, J. S., and Nakamura, S. *Applied Physics Letters* **86**(2), 021914 (2005).
- [226] Van de Walle, C. G. and Neugebauer, J. *Journal of Applied Physics* **95**(8), 3851–3879 (2004).
- [227] Neugebauer, J. and Van de Walle, C. G. *Applied Physics Letters* **69**(4), 503–505 (1996).
- [228] Saarinen, K., Laine, T., Kuisma, S., Nissilä, J., Hautojärvi, P., Dobrzynski, L., Baranowski, J. M., Pakula, K., Stepniewski, R., Wojdak, M., Wyszomolek, A., Suski, T., Leszczynski, M., Grzegory, I., and Porowski, S. *Physical Review Letters* **79**, 3030–3033 (1997).
- [229] Mattila, T. and Nieminen, R. M. *Physical Review B* **55**, 9571–9576 (1997).
- [230] Reshchikov, M. A. and Morkoç, H. *Journal of Applied Physics* **97**(6), 061301 (2005).
- [231] Kaschner, A., Hoffmann, A., Thomsen, C., Bertram, F., Riemann, T., Christen, J., Hiramatsu, K., Shibata, T., and Sawaki, N. *Applied Physics Letters* **74**(22), 3320–3322 (1999).
- [232] Tessarek, C., Heilmann, M., Butzen, E., Haab, A., Hardtdegen, H., Dieker, C., Spiecker, E., and Christiansen, S. *Crystal Growth & Design* **14**(3), 1486–1492 (2014).
- [233] Mohajerani, M. S., Müller, M., Hartmann, J., Zhou, H., Wehmann, H.-H., Veit, P., Bertram, F., Christen, J., and Waag, A. *Japanese Journal of Applied Physics* **55**(5S), 05FJ09 (2016).
- [234] Griffiths, I. J., Cherns, D., Wang, X., Waag, A., and Wehmann, H.-H. *Journal of Physics: Conference Series* **471**(1), 012018 (2013).
- [235] Wernicke, T., Schade, L., Netzels, C., Rass, J., Hoffmann, V., Ploch, S., Knauer, A., Weyers, M., Schwarz, U., and Kneissl, M. *Semiconductor Science and Technology* **27**(2), 024014 (2012).
- [236] Christmann, G., Butté, R., Feltin, E., Carlin, J.-F., and Grandjean, N. *Physical Review B* **73**, 153305 (2006).
- [237] Glauser, M., Mounir, C., Rossbach, G., Feltin, E., Carlin, J.-F., Butté, R., and Grandjean, N. *Journal of Applied Physics* **115**(23), 233511 (2014).
- [238] Schulz, S., Tanner, D. P., O’Reilly, E. P., Caro, M. A., Martin, T. L., Bagot, P. A. J., Moody, M. P., Tang, F., Griffiths, J. T., Oehler, F., Kappers, M. J., Oliver, R. A., Humphreys, C. J., Sutherland, D., Davies, M. J., and Dawson, P. *Physical Review B* **92**, 235419 (2015).

- [239] Marcinkevicius, S., Kelchner, K. M., Nakamura, S., DenBaars, S. P., and Speck, J. S. *physica status solidi (c)* **11**(3-4), 690–693 (2014).
- [240] Dawson, P., Schulz, S., Oliver, R. A., Kappers, M. J., and Humphreys, C. J. *Journal of Applied Physics* **119**(18), 181505 (2016).
- [241] Schömig, H., Halm, S., Forchel, A., Bacher, G., Off, J., and Scholz, F. *Physical Review B* **92**, 106802 (2004).
- [242] Wu, Y.-R., Shivaraman, R., Wang, K.-C., and Speck, J. S. *Applied Physics Letters* **101**(8), 083505 (2012).
- [243] Ra, Y.-H., Navamathavan, R., Park, J.-H., and Lee, C.-R. *Nano Letters* **13**(8), 3506–3516 (2013).
- [244] Le Boulbar, E. D., Edwards, P. R., Vajargah, S. H., Griffiths, I., Gîrgel, I., Coulon, P.-M., Cherns, D., Martin, R. W., Humphreys, C. J., Bowen, C. R., Allsopp, D. W. E., and Shields, P. A. *Crystal Growth & Design* **16**(4), 1907–1916 (2016).
- [245] Zhang, H., Jacopin, G., Neplokh, V., Largeau, L., Julien, F. H., Kryliouk, O., and Tchernycheva, M. *Nanotechnology* **26**(46), 465203 (2015).
- [246] Jung, B. O., Bae, S.-Y., Kim, S. Y., Lee, S., Lee, J. Y., Lee, D.-S., Kato, Y., Honda, Y., and Amano, H. *Nano Energy* **11**, 294 – 303 (2015).
- [247] Fang, H., Yang, Z. J., Wang, Y., Dai, T., Sang, L. W., Zhao, L. B., Yu, T. J., and Zhang, G. Y. *Journal of Applied Physics* **103**(1), 014908 (2008).
- [248] Neubert, B., Brückner, P., Habel, F., Scholz, F., Riemann, T., Christen, J., Beer, M., and Zweck, J. *Applied Physics Letters* **87**(18), 182111 (2005).
- [249] Funato, M., Kotani, T., Kondou, T., Kawakami, Y., Narukawa, Y., and Mukai, T. *Applied Physics Letters* **88**(26), 261920 (2006).
- [250] Yeh, T.-W., Lin, Y.-T., Stewart, L. S., Dapkus, P. D., Sarkissian, R., O’Brien, J. D., Ahn, B., and Nutt, S. R. *Nano Letters* **12**(6), 3257–3262 (2012).
- [251] Liao, C.-H., Chang, W.-M., Yao, Y.-F., Chen, H.-T., Su, C.-Y., Chen, C.-Y., Hsieh, C., Chen, H.-S., Tu, C.-G., Kiang, Y.-W., Yang, C. C., and Hsu, T.-C. *Journal of Applied Physics* **113**(5), 054315 (2013).
- [252] Wunderer, T., Feneberg, M., Lipski, F., Wang, J., Leute, R. A. R., Schwaiger, S., Thonke, K., Chuvilin, A., Kaiser, U., Metzner, S., Bertram, F., Christen, J., Beirne, G. J., Jetter, M., Michler, P., Schade, L., Vierheilg, C., Schwarz, U. T., Dräger, A. D., Hangleiter, A., and Scholz, F. *physica status solidi (b)* **248**(3), 549–560 (2011).
- [253] Auf der Maur, M., Sacconi, F., Penazzi, G., Romano, G., Povolotskyi, M., Pecchia, A., and Di Carlo, A. *Journal of Computational Electronics* **9**(3), 262–268 (2010).

- [254] Griffiths, I., Cherns, D., Wang, X., Wehman, H.-H., Mandl, M., Strassburg, M., and Waag, A. *physica status solidi (c)* **11**(3-4), 425–427 (2014).
- [255] Bae, S.-Y., Lekhal, K., Lee, H.-J., Min, J.-W., Lee, D.-S., Honda, Y., and Amano, H. *physica status solidi (b)* , 1600722 (2017). 1600722.
- [256] Fischer, A. M., Wu, Z., Sun, K., Wei, Q., Huang, Y., Senda, R., Iida, D., Iwaya, M., Amano, H., and Ponce, F. A. *Applied Physics Express* **2**(4), 041002 (2009).
- [257] Wu, F., Lin, Y.-D., Chakraborty, A., Ohta, H., DenBaars, S. P., Nakamura, S., and Speck, J. S. *Applied Physics Letters* **96**(23), 231912 (2010).
- [258] Schimpke, T., Avramescu, A., Koller, A., Fernando-Saavedra, A., Hartmann, J., Ledig, J., Waag, A., Strassburg, M., and Lugauer, H.-J. *Journal of Crystal Growth* **465**, 34 – 42 (2017).
- [259] Wulff, G. *Zeitschrift für Kristallographie - Crystalline Materials* **34**, 449–530 (1901).
- [260] Amano, H., Kitoh, M., Hiramatsu, K., and Akasaki, I. *Journal of The Electrochemical Society* **137**(5), 1639–1641 (1990).
- [261] Eckey, L., Gfug, U. V., Holst, J., Hoffmann, A., Schineller, B., Heime, K., Heuken, M., Schön, O., and Beccard, R. *Journal of Crystal Growth* **189–190**, 523–527 (1998).
- [262] Reshchikov, M. A., Yi, G.-C., and Wessels, B. W. *Physical Review B* **59**, 13176–13183 (1999).
- [263] Kaufmann, U., Kunzer, M., Maier, M., Obloh, H., Ramakrishnan, A., Santic, B., and Schlotter, P. *Applied Physics Letters* **72**(11), 1326–1328 (1998).
- [264] Colton, J. S. and Yu, P. Y. *Applied Physics Letters* **78**(17), 2500–2502 (2001).
- [265] Lundskog, A., Palisaitis, J., Hsu, C. W., Eriksson, M., Karlsson, K. F., Hultman, L., Persson, P. O. A., Forsberg, U., Holtz, P. O., and Janzen, E. *Nanotechnology* **23**(30), 305708 (2012).
- [266] Tachibana, K., Someya, T., Ishida, S., and Arakawa, Y. *Journal of Crystal Growth* **221**(1), 576 – 580 (2000).
- [267] Edwards, P. R., Martin, R. W., Watson, I. M., Liu, C., Taylor, R. A., Rice, J. H., Na, J. H., Robinson, J. W., and Smith, J. D. *Applied Physics Letters* **85**(19), 4281–4283 (2004).
- [268] Perez-Solorzano, V., Gröning, A., Jetter, M., Riemann, T., and Christen, J. *Applied Physics Letters* **87**(16), 163121 (2005).
- [269] Martin, R. W., Edwards, P. R., Taylor, R. A., Rice, J. H., Na, J. H., Robinson, J. W., Smith, J. D., Liu, C., and Watson, I. M. *physica status solidi (a)* **202**(3), 372–376 (2005).
- [270] Hsu, C.-W., Lundskog, A., Karlsson, K. F., Forsberg, U., Janzen, E., and Holtz, P. O. *Nano Letters* **11**(6), 2415–2418 (2011).
- [271] Chernyak, L., Osinsky, A., Temkin, H., Yang, J. W., Chen, Q., and Khan, M. A. *Applied Physics Letters* **69**(17), 2531–2533 (1996).

- [272] Chernyak, L., Osinsky, A., and Schulte, A. *Solid-State Electronics* **45**(9), 1687 – 1702 (2001).
- [273] Kneissl, M. and Wernicke, T. *III-Nitride Semiconductors and their Modern Devices - Optical and structural properties of InGaN light-emitters on non-polar and semipolar GaN*. Oxford University Press, (2013).
- [274] Rosenauer, A., Mehrstens, T., Müller, K., Gries, K., Schowalter, M., Satyam, P. V., Bley, S., Tessarek, C., Hommel, D., Sebald, K., Seyfried, M., Gutowski, J., Avramescu, A., Engl, K., and Lutgen, S. *Ultramicroscopy* **111**(8), 1316 – 1327 (2011).
- [275] Krause, F. F., Schowalter, M., Grieb, T., Müller-Caspary, K., Mehrstens, T., and Rosenauer, A. *Ultramicroscopy* **161**, 146 – 160 (2016).
- [276] Krause, F. F., Ahl, J.-P., Tytko, D., Choi, P.-P., Egoavil, R., Schowalter, M., Mehrstens, T., Müller-Caspary, K., Verbeeck, J., Raabe, D., Hertkorn, J., Engl, K., and Rosenauer, A. *Ultramicroscopy* **156**, 29 – 36 (2015).
- [277] Müller, M., Veit, P., Krause, F. F., Schimpke, T., Metzner, S., Bertram, F., Mehrstens, T., Müller-Caspary, K., Avramescu, A., Strassburg, M., Rosenauer, A., and Christen, J. *Nano Letters* **16**(9), 5340–5346 (2016).
- [278] Schowalter, M., Rosenauer, A., Titantah, J. T., and Lamoen, D. *Acta Crystallographica Section A* **65**(3), 227–231 (2009).
- [279] Schowalter, M., Rosenauer, A., Titantah, J. T., and Lamoen, D. *Acta Crystallographica Section A* **65**(1), 5–17 (2009).
- [280] Rosenauer, A., Gries, K., Müller, K., Pretorius, A., Schowalter, M., Avramescu, A., Engl, K., and Lutgen, S. *Ultramicroscopy* **109**(9), 1171 – 1182 (2009).
- [281] Keller, S., Keller, B. P., Kapolnek, D., Abare, A. C., Masui, H., Coldren, L. A., Mishra, U. K., and Baars, S. P. D. *Applied Physics Letters* **68**(22), 3147–3149 (1996).
- [282] Gibbon, M., Stagg, J. P., Cureton, C. G., Thrush, E. J., Jones, C. J., Mallard, R. E., Pritchard, R. E., Collis, N., and Chew, A. *Semiconductor Science and Technology* **8**(6), 998 (1993).
- [283] Mounir, C., Schimpke, T., Rossbach, G., Avramescu, A., Strassburg, M., and Schwarz, U. T. *Journal of Applied Physics* **120**(15), 155702 (2016).
- [284] Nobis, T. and Grundmann, M. *Physical Review A* **72**, 063806 (2005).
- [285] Chichibu, S., Wada, K., and Nakamura, S. *Applied Physics Letters* **71**(16), 2346–2348 (1997).
- [286] Chichibu, S., Azuhata, T., Sota, T., and Nakamura, S. *Applied Physics Letters* **69**(27), 4188–4190 (1996).
- [287] Graham, D. M., Soltani-Vala, A., Dawson, P., Godfrey, M. J., Smeeton, T. M., Barnard, J. S., Kappers, M. J., Humphreys, C. J., and Thrush, E. J. *Journal of Applied Physics* **97**(10), 103508 (2005).

- [288] Galtrey, M. J., Oliver, R. A., Kappers, M. J., Humphreys, C. J., Clifton, P. H., Larson, D., Saxey, D. W., and Cerezo, A. *Journal of Applied Physics* **104**(1), 013524 (2008).
- [289] Watson-Parris, D., Godfrey, M. J., Dawson, P., Oliver, R. A., Galtrey, M. J., Kappers, M. J., and Humphreys, C. J. *Physical Review B* **83**, 115321 (2011).
- [290] Bellaiche, L., Mattila, T., Wang, L.-W., Wei, S.-H., and Zunger, A. *Applied Physics Letters* **74**(13), 1842–1844 (1999).
- [291] Wang, L.-W. *Physical Review B* **63**, 245107 (2001).
- [292] Chichibu, S. F., Uedono, A., Onuma, T., Haskell, B. A., Chakraborty, A., Koyama, T., Fini, P. T., Keller, S., DenBaars, S. P., Speck, J. S., Mishra, U. K., Nakamura, S., Yamaguchi, S., Kamiyama, S., Amano, H., Akasaki, I., Han, J., and Sota, T. *Nature Materials* **5**(10), 810–816 (2006).
- [293] Humphreys, C., Griffiths, J., Tang, F., Oehler, F., Findlay, S., Zheng, C., Etheridge, J., Martin, T., Bagot, P., Moody, M., Sutherland, D., Dawson, P., Schulz, S., Zhang, S., Fu, W., Zhu, T., Kappers, M., and Oliver, R. *Ultramicroscopy* **176**, 93 – 98 (2017).
- [294] Smeeton, T. M., Kappers, M. J., Barnard, J. S., Vickers, M. E., and Humphreys, C. J. *Applied Physics Letters* **83**(26), 5419–5421 (2003).
- [295] Li, T., Hahn, E., Gerthsen, D., Rosenauer, A., Strittmatter, A., Reißmann, L., and Bimberg, D. *Applied Physics Letters* **86**(24), 241911 (2005).
- [296] Bartel, T. and Kisielowski, C. *Ultramicroscopy* **108**(11), 1420 – 1426 (2008).
- [297] Narukawa, Y., Kawakami, Y., Funato, M., Fujita, S., Fujita, S., and Nakamura, S. *Applied Physics Letters* **70**(8), 981–983 (1997).
- [298] Lu, P., Sun, C., Cao, H., Ye, H., Zhong, X., Yu, Z., Han, L., and Wang, S. *Solid State Communications* **178**, 1 – 6 (2014).
- [299] Griffiths, J. T., Ren, C. X., Coulon, P.-M., Boulbar, E. D. L., Bryce, C. G., Girgel, I., Howkins, A., Boyd, I., Martin, R. W., Allsopp, D. W. E., Shields, P. A., Humphreys, C. J., and Oliver, R. A. *Applied Physics Letters* **110**(17), 172105 (2017).
- [300] Loitsch, B., Müller, M., Winnerl, J., Veit, P., Rudolph, D., Abstreiter, G., Finley, J. J., Bertram, F., Christen, J., and Koblmüller, G. *New Journal of Physics* **18**(6), 063009 (2016).

Abkürzungsverzeichnis

α	thermischer Ausdehnungskoeffizient
ϵ_0	Permittivität des Vakuums
ϵ_j	Mechanischer Spannungstensor
\hbar	reduziertes Plancksches Wirkungsquantum
λ_{Diff}	Diffusionslänge der generierten Überschussladungsträger
μ	reduzierte Exzitonenmasse
ρ	Dichte
σ	Anregungsvolumen des Primärelektronenstrahls
\vec{P}_{pz}	Piezoelektrische Polarisierung
\vec{P}_{sp}	Spontane Polarisierung
\vec{P}_{tot}	Gesamtpolarisierung
A	relative Atommasse
a	Gitterkonstante in basaler Ebene
a_B	Bohr-Radius des Exzitons
b	bowing-Parameter
b_e	Aufweitung des Primärelektronenstrahls
c	Gitterkonstante in [0001]-Richtung
D	Diffusionskonstante
e	Elementarladung
$E^f(x^q)$	Bildungsenergie von Punktdefekten
e^{-2M}	Debye-Waller-Faktor
E_e	Energie des einfallenden Elektronenstrahls
E_F	Fermi-Level
E_g	Bandlückenenergie
E_V	Valenzbandmaximum
E_0	Ruhenergie der Elektronen
E_{BSF}	Bildungsenergie von Basalflächenstapelfehlern
E_{BX}	Exzitonenbindungsenergie
e_{ij}	Piezoelektrischer Tensor
$E_{ref}(x^q)$	Differenz der freien Energie eines Kristalls mit einem einzigen Punktdefekt in Referenz zu einem perfekten defektfreien Kristall
E_{Ry}	Rydbergenergie des Exzitons
$f(\vec{q})$	atomare Streuamplitude
$G(\vec{r}, z)$	Generationsrate

$I(x)$	CL-Intensität in Abhängigkeit von der Position x
I_0	anfängliche CL-Intensität
I_B	Strahlstrom
k	Kernradius der Nano- bzw. Mikrosäulen
m_e	Masse der Leitungsbandelektronen
m_h	Masse der Valenzbandlöcher
N_D	Dotierkonzentration
q	Ladung
r	Radius der Nano- und Mikrosäulen
$R(\vec{r}, t)$	Rekombinationsrate
R_{Bethe}	Bathe-range
s	Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit
T	Temperatur
t	Schichtdicke der TEM-Lamelle
U_{acc}	Beschleunigungsspannung
W_D	Ausdehnung der Raumladungszone
Z	Ordnungszahl
μ_i	chemisches Potential
ϕ_b	Oberflächenpotential
(A^0, X)	Exziton gebunden am neutralen Akzeptor
$(D^{0/+})$	neutraler/ionisierter Donator
$(D^{0/+}, X)$	Exziton gebunden am neutralen/ionisierten Donator
(e, h)	Band-Band-Übergang
$A^{0/-}$	neutraler/ionisierter Akzeptor
Al_2O_3	Saphir
BL	blaue Defekt-Lumineszenz (engl. blue luminescence)
BSF	Basalflächenstapelfehler (engl. basal plane stacking fault)
CBED	Konvergente Elektronenstrahl-Beugung (engl. convergent beam electron diffraction)
CL	Kathodolumineszenz (engl.: cathodoluminescence)
CVD	chemischer Gasphasenabscheidung (chemical vapor deposition)
DAP	Donator-Akzeptor-Paar-Rekombination (engl. donor-acceptor pair recombination)
EBL	Elektronenbarriere (engl. electron blocking layer)
FEG	Feldemissionskathode (engl. field emission gun)
FIB	Fokussierte Ionenstrahl Präparation (engl. focused ion beam preparation)
FX	freies Exziton
hcp	hexagonal dichtest gepackt (engl. hexagonal closepacked)
HVPE	Hydridgasphasenepitaxie (engl. hydride vapor phase epitaxy)
LED	lichtemittierende Diode (engl. light-emitting diode)
MBE	Molekularstrahlepitaxie (engl. molecular beam epitaxy)

MCP-PMT	Photomultiplier mit Micro-Channel-Plate (engl. micro-channel plate photomultiplier tube)
MOVPE	metallorganische Gasphasenepitaxie (engl. metal organic vapor phase epitaxy)
NBE	bandkantennahe Lumineszenz (engl. near band-edge)
PIPS	Precision Ion Polishing System
QW	Quantenfilm (engl. quantum well)
RIE	reaktives Ionenätzen (engl. reactive ion etching)
SEM	Rasterelektronenmikroskop (engl. scanning electron microscope)
SEM-CL	scanning electron microscope cathodoluminescence spectroscopy
Si	Silizium
SiC	Siliziumcarbid
STEM-CL	scanning transmission electron microscope cathodoluminescence spectroscopy
TD	Durchstoßversetzung (engl. threading dislocation)
YL	gelbe Defektlumineszenz (engl. yellow luminescence)

Publikationsliste

Publikationen in chronologischer Reihenfolge:

- **Marcus Müller**, Peter Veit, Bernhard Loitsch, Julia Winnerl, Sonja Matich, Frank Bertram, Gregor Koblmüller, Jonathan J. Finley und Jürgen Christen,
Nanometer-scale Resolved Cathodoluminescence Imaging: New Insights into GaAs/AlGaAs Core-shell Nanowire Lasers,
Microscopy and Microanalysis **23**, 1470 (2017),
DOI: 10.1017/S1431927617008017
- Andreas Rosenauer, Florian F. Krause, Knut Müller-Caspary, Elias Goldmann, Frank Jahnke, Matthias Paul, Michael Jetter, **Marcus Müller**, Peter Veit, Jürgen Christen, Tilman Schimpke, Jan P. Ahl, Adrian Avramescu und Martin Straßburg,
Quantitative STEM: Comparative Studies of Composition and Optical Properties of Semiconductor Quantum Structures,
Microscopy and Microanalysis **23**, 1690 (2017),
DOI: 10.1017/S1431927617009114
- Ana M. Bengoechea-Encabo, Steven Albert, **Marcus Müller**, Mengyao Xie, Peter Veit, Frank Bertram, Miguel Sanchez-Garcia, Jesus Zuniga-Perez, Philippe de Mierry, Jürgen Christen und Enrique Calleja,
Selective area growth of AlN/GaN nanocolumns on (0001) and (11-22) GaN/sapphire for semi-polar and non-polar AlN pseudo-templates,
Nanotechnology **28**(36), 365704 (2017),
DOI: 10.1088/1361-6528/aa78e6
- Morteza Monavarian, Natalia Izyumskaya, **Marcus Müller**, Sebastian Metzner, Peter Veit, Saikat Das, Ümit Özgür, Frank Bertram, Jürgen Christen, Hadis Morkoç und Vitaliy Avrutin,
Effect of nano-porous SiN_x interlayer on propagation of extended defects in semipolar (11-22)-orientated GaN,
Physica Status Solidi (c) **14**(8), 1700024 (2017),
DOI: 10.1002/pssc.201700024
- Žarko Gacevic, Mark Holmes, Ekaterina Chernysheva, **Marcus Müller**, Almudena Torres-Pardo, Peter Veit, Frank Bertram, Jürgen Christen, José M. González-Calbet, Yasuhiko Arakawa, Enrique Calleja und Snezana Lazic,
Emission of Linearly Polarized Single Photons from Quantum Dots Contained in Nonpolar, Semipolar, and Polar Sections of Pencil-Like InGaN/GaN Nanowires,
ACS Photonics **4**(3), 657 (2017),
DOI: 10.1021/acsp Photonics.6b01030

- **Marcus Müller**, Peter Veit, Florian F. Krause, Tilman Schimpke, Sebastian Metzner, Frank Bertram, Thorsten Mehrstens, Knut Müller-Caspary, Adrian Avramescu, Martin Straßburg, Andreas Rosenauer und Jürgen Christen,
Nanoscope Insights into InGaN/GaN Core-Shell Nanorods: Structure, Composition, and Luminescence,
 Nano Letters **16**(9), 5340 (2016),
 DOI: 10.1021/acs.nanolett.6b01062
- Frank Bertram, **Marcus Müller**, Gordon Schmidt, Peter Veit, Silke Petzold, Steven Albert, Ana M. Bengoechea-Encabo, Miguel Sánchez-García, Enrique Calleja und Jürgen Christen,
Nanoscale Imaging of Structural and Optical Properties Using Helium Temperature Scanning Transmission Electron Microscopy Cathodoluminescence of Nitride Based Nanostructures,
 Microscopy and Microanalysis **22**, 600 (2016),
 Doi: 10.1017/S1431927616003858
- Bernhard Loitsch, **Marcus Müller**, Julia Winnerl, Peter Veit, Daniel Rudolph, Gerhard Abstreiter, Jonathan J. Finley, Frank Bertram, Jürgen Christen und Gregor Koblmüller,
Microscopic nature of crystal phase quantum dots in ultrathin GaAs nanowires by nanoscale luminescence characterization,
 New Journal of Physics **18**(6), 063009 (2016),
 Doi: 10.1088/1367-2630/18/6/063009
- Matin S. Mohajerani, **Marcus Müller**, Jana Hartmann, Hao Zhou, Hergo H. Wehmann, Peter Veit, Frank Bertram, Jürgen Christen und Andreas Waag,
Direct correlations of structural and optical properties of three-dimensional GaN/InGaN core-shell micro-light emitting diodes,
 Japanese Journal of Applied Physics **55**, 05FJ09 (2016),
 Doi: 10.7567/JJAP.55.05FJ09
- **Marcus Müller**, Gordon Schmidt, Sebastian Metzner, Peter Veit, Frank Bertram, Sergiy Krylyuk, Ratan Debnath, Jong-Yoon Ha, Baomei Wen, Paul Blanchard, Abhishek Motayed, Matthew R. King, Albert V. Davydov und Jürgen Christen,
Structural and optical nanoscale analysis of GaN core-shell microrod arrays fabricated by combined top-down and bottom-up process on Si(111),
 Japanese Journal of Applied Physics **55**, 05FF02 (2016),
 Doi: 10.7567/JJAP.55.05FF02
- Morteza Monavarian, Natalia Izyumskaya, **Marcus Müller**, Sebastian Metzner, Peter Veit, Saikat Das, Ümit Özgür, Frank Bertram, Jürgen Christen, Hadis Morkoç und Vitaliy Avrutin,
Improvement of optical quality of semipolar (11-22) GaN on m-plane sapphire by in-situ epitaxial lateral overgrowth,
 Journal of Applied Physics **119**, 145303 (2016),
 Doi: 10.1063/1.4945770

- Žarko Gacevic, Nenad Vukmirovic, Naoemi Garcia-Lepetit, Almudena Torres-Pardo, **Marcus Müller**, Sebastian Metzner, Ana M. Bengoechea-Encabo, Frank Bertram, Peter Veit, Jürgen Christen, José M. González-Calbet und Enrique Calleja,
Influence of composition, strain, and electric field anisotropy on different emission colors and recombination dynamics from InGaN nanodisks in pencil-like GaN nanowires,
Physical Review B **93**, 125436 (2016),
Doi: 10.1103/PhysRevB.93.125436
- Tilman Schimpke, Martin Mandl, Ion Stoll, Bianca Pohl-Klein, Daniel Bichler, Franz Zwaschka, Johanna Strube-Knyrim, Barbara Huckenbeck, Benjamin Max, **Marcus Müller**, Peter Veit, Frank Bertram, Jürgen Christen, Jana Hartmann, Andreas Waag, Hans-Jürgen Lugauer und Martin Straßburg,
Phosphor-converted white light from blue-emitting InGaN microrod LEDs,
Physica Status Solidi (a) **213**(6), 1577 (2016),
Doi: 10.1002/pssa.201532904
- Jan Wagner, Clemens Wächter, Johannes Wild, **Marcus Müller**, Sebastian Metzner, Peter Veit, Gordon Schmidt, Michael Jetter, Frank Bertram, Josef Zweck, Jürgen Christen und Peter Michler,
Defect reduced selectively grown GaN pyramids as template for green InGaN quantum wells,
Physica Status Solidi (b) **253**, 67 (2015),
Doi: 10.1002/pssb.201552427
- **Marcus Müller**, Gordon Schmidt, Sebastian Metzner, Peter Veit, Frank Bertram, Robert A. R. Leute, Dominik Heinz, Junjun Wang, Tobias Meisch, Ferdinand Scholz und Jürgen Christen,
Nanoscale cathodoluminescence imaging of III-nitride-based LEDs with semipolar quantum wells in a scanning transmission electron microscope,
Physica Status Solidi (b) **253**, 112 (2015),
Doi: 10.1002/pssb.201552474
- Ekaterina Chernysheva, Žarko Gacevic, Naoemi Garcia-Lepetit, Herko van der Meulen, **Marcus Müller**, Peter Veit, Frank Bertram, Almudena Torres-Pardo, José M. González-Calbet, Jürgen Christen, Enrique Calleja, José M. Calleja und Snezana Lazic,
Blue-to-green single photons from InGaN/GaN dot-in-a-nanowire ordered arrays,
Europhysics Letters **111**(2), 24001 (2015),
Doi: 10.1209/0295-5075/111/24001
- Arne Urban, **Marcus Müller**, Christopher Karbaum, Gordon Schmidt, Peter Veit, Joerg Malindretos, Frank Bertram, Jürgen Christen und Angela Rizzi,
Optical emission of individual GaN nanocolumns analyzed with high spatial resolution,
Nano Letters **15**, 5105 (2015),
Doi: 10.1021/acs.nanolett.5b01278

- Robert A. R. Leute, Dominik Heinz, Junjun Wang, Tobias Meisch, **Marcus Müller**, Gordon Schmidt, Sebastian Metzner, Peter Veit, Frank Bertram, Jürgen Christen, Martin Martens, Tim Wernicke, Michael Kneissl, Stefan Jenisch, Steffen Strehle, Oliver Rettig, Klaus Thonke und Ferdinand Scholz,
Embedded GaN nanostripes on c-sapphire for DFB lasers with semipolar quantum wells,
 Physica Status Solidi (b) **253**, 180 (2015),
 Doi: 10.1002/pssb.201552277
- Morteza Monavarian, Sebastian Metzner, Natalia Izyumskaya, **Marcus Müller**, Serdal Okur, Fan Zhang, Nuri Can, Saikat Das, Vitaliy Avrutin, Ümit Özgür, Frank Bertram, Jürgen Christen und Hadis Morkoç,
Enhancement of optical and structural quality of semipolar (11-22) GaN by introducing nanoporous SiN_x interlayers,
 SPIE Proceedings **9363**, 93632I (2015),
 Doi: 10.1117/12.2079180
- Snezana Lazic, Ekaterina Chernysheva, Žarko Gacevic, Naoemi Garcia-Lepetit, Herko van der Meulen, **Marcus Müller**, Peter Veit, Frank Bertram, Almudena Torres-Pardo, José M. González-Calbet, Jürgen Christen, Enrique Calleja und José M. Calleja,
Ordered arrays of InGaN-GaN dot-in-a-wire nanostructures as single photon emitters,
 SPIE Proceedings **9363**, 93630U (2015),
 Doi: 10.1117/12.2074898
- Gordon Schmidt, **Marcus Müller**, Peter Veit, Frank Bertram, Jürgen Christen, Marlene Glauser, Jean F. Carlin, Gatien Cosendey, Raphael Butté und Nicolas Grandjean,
Nano-scale luminescence characterization of individual InGaN/GaN quantum wells stacked in a microcavity using scanning transmission electron microscope cathodoluminescence,
 Applied Physics Letters **105**, 032101 (2014),
 Doi: 10.1063/1.4890670
- Steven Albert, Ana M. Bengoechea-Encabo, María Sabido-Siller, **Marcus Müller**, Gordon Schmidt, Sebastian Metzner, Peter Veit, Frank Bertram, Miguel Sanchez-Garcia, Jürgen Christen und Enrique Calleja,
Growth of InGaN/GaN core-shell structures on selectively etched GaN rods by molecular beam epitaxy,
 Journal of Crystal Growth **392**, 5 (2014),
 Doi: 10.1016/j.jcrysgro.2014.01.030
- Frank Bertram, **Marcus Müller**, Gordon Schmidt, Peter Veit, Jürgen Christen, Arne Urban, Joerg Malindretos und Angela Rizzi,
Extended defects in GaN nanocolumns characterized by cathodoluminescence directly performed in a transmission electron microscope,
 Turkish Journal of Physics **38**, 323 (2014),
 Doi: 10.3906/fiz-1405-5

- Steven Albert, Ana M. Bengoechea-Encabo, Francesca Barbagini, David López-Romero, Miguel Sanchez-Garcia, Pierre Lefebvre, Xiang Kong, Uwe Jahn, Achim Trampert, **Marcus Müller**, Frank Bertram, Gordon Schmidt, Peter Veit, Silke Petzold, Jürgen Christen, Philippe De Mierry, Jesus Zuñiga-Perez und Enrique Calleja,
Advances on MBE Selective Area Growth of III- Nitride nanostructures: from nanoLEDs to pseudo substrates,
International Journal of High Speed Electronics and Systems **23**, 1450020 (2014),
Doi: 10.1142/S0129156414500207
- **Marcus Müller**, Gordon Schmidt, Sebastian Metzner, Frank Bertram, Silke Petzold, Peter Veit, Jürgen Christen, Clemens Wächter, Michael Jetter und Peter Michler,
Direct imaging of GaN pyramids covered by InGaN single quantum well using nano-scale Scanning Transmission Electron Microscopy Cathodoluminescence,
Microscopy and Microanalysis **18**, 1838 (2012),
Doi: 10.1017/S143192761201104X
- Gordon Schmidt, **Marcus Müller**, Frank Bertram, Peter Veit, Silke Petzold, Aparna Das, Eva Monroy und Jürgen Christen,
Highly spatially resolved Cathodoluminescence of Single GaN Quantum Dots directly performed in a Scanning Transmission Electron Microscope,
Microscopy and Microanalysis **18**, 1878 (2012),
Doi: 10.1017/S1431927612011245

andere wissenschaftliche Leistungen:

- **Yamaguchi Masahito Award – Students Paper Award** (Erstautor)
April 2017 – International Conference on Light Emitting Devices and their Industrial Application (Yokohama, Japan)
Nano-scale correlation of the optical, structural and compositional properties of InGaN/GaN core-shell nanorod LEDs
- **BIAMS Student Award** (Erstautor)
June 2016 – International Conference: Beam Injection Assessment of Microstructures in Semiconductors (Versailles, France)
Luminescence properties and strain distribution within single GaN-based core-shell micropillars analyzed by nanoscale resolved cathodoluminescence spectroscopy and electron backscatter diffraction
- **Materials Research Society: Best Poster Award** (Erstautor)
April 2015 – Materials Research Society Spring Meeting (San Francisco, USA)
Optical and structural nano-characterization of ordered core-shell GaN micropillars

- **Wilhelm und Else Heraeus Stiftung: Best Poster Award** (Erstautor)
March 2015 – WE-Heraeus Seminar: III-V Nanowire Photonics (Bad Honnef, Germany)
Nano-scale cathodoluminescence imaging of III-nitride based core-shell microrod LEDs directly performed in a scanning transmission electron microscope
- **INOW: Best Poster Award** (Third Place, Erstautor)
August 2014 – International Nano-Optoelectronics Workshop (Saint Petersburg, Russia)
Nano-scale characterization of InGaN/GaN core-shell microrod LEDs by transmission electron microscopy cathodoluminescence

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die von mir eingereichte Dissertation zu dem Thema:

**„Nanocharakterisierung optischer und struktureller Eigenschaften von GaN-basierten
Nano- und Mikrosäulen“**

selbstständig verfasst, nicht schon als Dissertation verwendet habe und die benutzten Hilfsmittel und Quellen vollständig angegeben wurden. Weiterhin erkläre ich, dass ich weder diese noch eine andere Arbeit zur Erlangung des akademischen Grades doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.) an anderen Einrichtungen eingereicht habe.

Regensburg, den 22.10.2017

Dipl.-Phys. Marcus Müller

