

# **Quantitative Bestimmung innerer elektrischer Felder mit Hilfe von Differentieller Phasenkontrastmikroskopie**



Dissertation

zur Erlangung des  
Doktorgrades der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
der Fakultät für Physik  
der Universität Regensburg

vorgelegt von  
Matthias Lohr  
aus Passau

2013

Das Promotionsgesuch wurde am 6.5.2013 eingereicht.  
Die Arbeit wurde von Prof. Dr. Josef Zweck angeleitet.  
Das Promotionskolloquium fand am 18.7.2013 statt.

Prüfungsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. Ingo Morgenstern  
1. Gutachter: Prof. Dr. Josef Zweck  
2. Gutachter: Prof. Dr. Sergey Ganichev  
weiterer Prüfer: Prof. Dr. John Lupton

# Inhaltsverzeichnis

|                                                                                                       |           |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>1 Einleitung</b>                                                                                   | <b>1</b>  |
| <b>2 Experimentelle Grundlagen</b>                                                                    | <b>5</b>  |
| 2.1 Transmissionselektronenmikroskopie . . . . .                                                      | 6         |
| 2.2 Rastertransmissionselektronenmikroskopie . . . . .                                                | 10        |
| 2.3 Elektronenenergieverlustspektroskopie . . . . .                                                   | 12        |
| 2.3.1 Versuchsaufbau . . . . .                                                                        | 13        |
| 2.3.2 Bestimmung der Probendicke . . . . .                                                            | 16        |
| 2.3.3 Theoretische Abschätzung der mittleren inelastischen freien<br>Weglänge von Plasmonen . . . . . | 17        |
| 2.4 Differentielle Phasenkontrastmikroskopie . . . . .                                                | 18        |
| 2.4.1 Versuchsaufbau . . . . .                                                                        | 19        |
| 2.4.2 Kontrastentstehung . . . . .                                                                    | 20        |
| 2.4.3 Einlesen des DPC-Signals . . . . .                                                              | 21        |
| 2.4.4 Signalauswertung DPC . . . . .                                                                  | 22        |
| 2.4.5 Kalibrierung der elektrischen Feldstärke . . . . .                                              | 24        |
| 2.4.6 Normierung des DPC-Signals . . . . .                                                            | 29        |
| 2.4.7 Berechnung der lokalen Feldstärke . . . . .                                                     | 30        |
| 2.5 Probenpräparation . . . . .                                                                       | 31        |
| <b>3 Materialsystem</b>                                                                               | <b>33</b> |
| 3.1 Gruppe-III-Nitride . . . . .                                                                      | 35        |
| 3.2 Kristallstruktur . . . . .                                                                        | 37        |
| 3.3 Innere Felder . . . . .                                                                           | 38        |
| <b>4 Experimente</b>                                                                                  | <b>45</b> |
| 4.1 Messung des STEM-Strahldurchmessers . . . . .                                                     | 45        |
| 4.1.1 Messung an einer Bruchkante . . . . .                                                           | 46        |
| 4.1.2 Messung mit der CCD-Kamera . . . . .                                                            | 48        |
| 4.1.3 Strahlaufweitung durch Wechselwirkung mit der Probe . . . . .                                   | 49        |
| 4.2 Messung des EELS-Akzeptanzwinkels . . . . .                                                       | 50        |
| 4.3 Bestimmung der lokalen Probendicke . . . . .                                                      | 53        |
| 4.3.1 Theoretische Vorhersage des IMFP bei GaN . . . . .                                              | 53        |
| 4.3.2 Messung der Probendicke mit HAADF-STEM . . . . .                                                | 54        |

|                                          |                                                                                       |            |
|------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------|------------|
| 4.3.3                                    | Messung der mittleren inelastischen freien Weglänge von Plasmonen mit EFTEM . . . . . | 56         |
| 4.4                                      | Ergebnisse . . . . .                                                                  | 61         |
| 4.4.1                                    | pn-Übergang . . . . .                                                                 | 62         |
| 4.4.2                                    | Quaternär gepufferte Quantentröge . . . . .                                           | 70         |
| 4.4.3                                    | Doppelquantentrog . . . . .                                                           | 79         |
| 4.4.4                                    | Achtfach-Quantentrog . . . . .                                                        | 82         |
| 4.5                                      | Interpretation der DPC-Messungen . . . . .                                            | 85         |
| 4.5.1                                    | pn-Übergang . . . . .                                                                 | 87         |
| 4.5.2                                    | Quaternär gepufferte Quantentröge . . . . .                                           | 88         |
| 4.5.3                                    | Doppelquantentrog . . . . .                                                           | 91         |
| 4.5.4                                    | Achtfach-Quantentrog . . . . .                                                        | 94         |
| <b>5</b>                                 | <b>Fehlerbetrachtung</b>                                                              | <b>99</b>  |
| 5.1                                      | Fehler der DPC-Kalibrierung . . . . .                                                 | 99         |
| 5.2                                      | Fehler der Dickenbestimmung . . . . .                                                 | 99         |
| 5.3                                      | Fehler des DPC-Verstärkers . . . . .                                                  | 100        |
| 5.4                                      | Fehler der Intensitätsnormierung . . . . .                                            | 101        |
| 5.5                                      | Gesamtfehler und Vergleich mit anderen Methoden . . . . .                             | 102        |
| <b>6</b>                                 | <b>Zusammenfassung</b>                                                                | <b>105</b> |
| <b>Anhang: Ausführliche Auswertungen</b> |                                                                                       | <b>109</b> |
| A.1                                      | Quaternär gepufferte Quantentröge . . . . .                                           | 109        |
| A.1.1                                    | Probe 1 . . . . .                                                                     | 109        |
| A.1.2                                    | Probe 2 . . . . .                                                                     | 112        |
| A.1.3                                    | Probe 3 . . . . .                                                                     | 114        |
| A.2                                      | Doppelquantentrog . . . . .                                                           | 116        |
| A.3                                      | Achtfach-Quantentrog . . . . .                                                        | 118        |
| <b>Abbildungsverzeichnis</b>             |                                                                                       | <b>123</b> |
| <b>Tabellenverzeichnis</b>               |                                                                                       | <b>127</b> |
| <b>Literaturverzeichnis</b>              |                                                                                       | <b>129</b> |
| <b>Eigene Veröffentlichungen</b>         |                                                                                       | <b>143</b> |
| <b>Danksagung</b>                        |                                                                                       | <b>145</b> |

# 1 Einleitung

Unser Alltag wird dominiert von einer Vielzahl an technischen Geräten. Seit der industriellen Revolution im 19. Jahrhundert hat sich – verglichen mit den vorherigen Perioden – die Geschwindigkeit des Fortschritts vervielfacht. Eine der jüngsten großen, technischen Revolutionen stellt wohl die Entwicklung der Halbleitertechnologie dar. Deren Aufkommen und die darauf basierenden Geräte haben unsere Gesellschaft grundlegend verändert. Mit die weitreichendste Errungenschaft war die Erfindung [1] und Realisierung [2, 3] des ersten Transistors in der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts und dem darauf aufbauenden Computer in seiner heutigen Form. Der Grundstein für die Informationsgesellschaft mit ihren fast unbegrenzten Kommunikationsmöglichkeiten war gelegt.

Nicht weniger grundlegend ist die Möglichkeit, den Alltag mit künstlicher Beleuchtung unabhängig vom natürlichen Tageslauf zu machen. Die (Weiter-)Entwicklung von passenden Leuchtmitteln stellt dabei eine der Hauptherausforderungen dar. Die altbekannte und bisher allgegenwärtige Glühbirne wurde jedoch bis zum Jahr 2012 von der Europäischen Union aus Gründen der Energieeffizienz fast vollständig verboten. Leuchtstoff- oder „Energiesparlampen“ (Kompakteuchtstofflampen) sind aufgrund ihres Quecksilbergehalts als Ersatz nur eingeschränkt geeignet und akzeptiert, auch wenn sie weniger Energie bei gleicher Helligkeit benötigen. Zur Kerze zurückzukehren ist aus offensichtlichen Gründen auch keine sinnvolle Option. Auch bei der Beleuchtung wird deshalb die universelle Rolle von Halbleitern wieder erkennbar. Als Leuchtdioden („Light Emitting Diode“ – LED) oder auch Laserdioden („Laser Diode“ – LD) erlauben sie die Erzeugung von Licht mit hoher Effizienz. Da sie sich hinsichtlich des Mechanismus der Lichterzeugung fundamental von Glühlampen unterscheiden, entfällt der sonst oft sehr große, ungenutzte Infrarot-Anteil am Emissionsspektrum. Dies liegt an der Möglichkeit, die elektrischen und optischen Eigenschaften von LEDs und LDs durch geeignete Kombination von Materialien gezielt zu manipulieren und so im Prinzip nur eine Wellenlänge zu erzeugen.

Für ein tiefgreifendes Verständnis der Zusammenhänge, Vorgänge und Querwirkungen bei den für Dioden verwendeten Materialien müssen ihre Eigenschaften möglichst genau bestimmt werden können. Die Methode der Differentiellen Phasen-

kontrastmikroskopie (DPC) im Transmissionselektronenmikroskop (TEM) [4–13] eröffnet die Möglichkeit grundlegend neuer Ergebnisse hinsichtlich interner elektrischer Felder in Festkörpern, welche sowohl für die Grundlagenforschung als auch für Anwendungen von Interesse sind. Zwar erlauben auch die verschiedenen Arten von Lumineszenzmessungen [14–24], Elektroreflektanzmessungen [25], Elektrotransmission [26] oder die Elektronenholografie im TEM [27–34] die Messung interner Felder, jedoch erreicht keine dieser Methoden sowohl hohe örtliche Auflösung bei gleichzeitig großem Gesichtsfeld als auch hohe Auflösung bei der Feldstärke. Im Jahr 2012 konnte gezeigt werden, dass dies auch mit subatomarer Auflösung möglich ist [13]. Durch die vorangegangene Kalibrierung des Versuchsaufbaus ist es möglich, die Felder zu quantifizieren und ihren Fehler abzuschätzen. Die Beschreibung der experimentellen Geräte und Methoden finden sich in Kapitel 2.

Nach vielen Jahren langsamer Fortschritte – beginnend vor etwa einem halben Jahrhundert – wird das Materialsystem der sogenannten Gruppe-III-Nitride (also die Stoffe Aluminiumnitrid (AlN), Galliumnitrid (GaN), Indiumnitrid (InN) und deren ternäre und quaternäre Verbindungen) seit einiger Zeit sehr intensiv erforscht [14, 20, 24, 35–46]. Um definierte Emissionseigenschaften zu erreichen, wird das optisch aktive Material in Schichten mit größerer Bandlücke eingebettet. Eine so geartete Abfolge wird üblicherweise Heterostruktur, die aktive Schicht Quantentrog genannt. Die (injizierten) Ladungsträger besetzen dann diese energetisch günstigeren, gewünschten Bereiche. So ergeben sich unter anderem die Kombinationen von GaN in AlGaN beziehungsweise InGaN in GaN. Strukturen letzterer Zusammensetzung werden in dieser Arbeit untersucht.

Durch die stark unterschiedlichen Werte für die Bandlücke der verschiedenen Verbindungen, welche mit 0,7 eV bis 6,2 eV den kompletten sichtbaren Bereich überstreicht, bietet sich dieses Materialsystem für optische Anwendungen sehr gut an. Aufgrund der speziellen Symmetrie des Kristallgitters – der sogenannten Wurtzit-Struktur – ergeben sich jedoch nachteilige Einflüsse auf die Leistungsfähigkeit von Bauteilen in Form innerer elektrischer Felder. Diese basieren auf dem polaren Charakter der Bindungen und äußern sich entlang einer Kristallachse, der sogenannten c- oder „polaren“ Achse. Dadurch kommt es zur spontanen Polarisation [17, 22, 43, 47–52]. Werden zusätzlich verschiedene Schichten der binären, ternären oder quaternären Verbindungen zu sogenannten Heterostrukturen epitaktisch aufeinander gewachsen, so entstehen durch die Verzerrung des Kristallgitters aufgrund der unterschiedlichen Größen der Atome zusätzliche Flächenladungen an den Grenzen, welche zur piezoelektrischen Polarisation führen [15, 16, 26, 41, 43, 45, 47, 50, 53, 54].

---

Die Polarisation beeinflusst die Bandstruktur und führt zum sogenannten „Quantum Confined Stark Effect“ (QCSE, [49, 55]). Dieser wird für eine Verringerung der Emissionseffizienz bei steigendem In-Gehalt mitverantwortlich gemacht. Lange Zeit konnten auf Basis von InGaN deshalb keine brauchbaren, grün emittierenden Laserdioden hergestellt werden. In der Literatur ist der Effekt deshalb unter dem Begriff „Green Gap“ bekannt [20, 24, 31, 46, 56–58]. Durch freie Ladungsträger (meist eingebracht durch Dotierung der Schichten) können die Ladungen teilweise abgeschirmt werden. Es ergeben sich dadurch ortsabhängige Potentiale, für deren Messung DPC alle Voraussetzungen erfüllt. Eine genaue Beschreibung der Zusammenhänge findet sich in Kapitel 3.

Um die Leistungsfähigkeit von DPC bei der Abbildung interner elektrischer Felder zeigen zu können, werden in dieser Arbeit vier verschiedene Probenstrukturen untersucht. Sie decken eine große Bandbreite, ausgehend von einem pn-Übergang, einem in einen quaternären AlInGaN-Puffer eingebetteten Quantentrog über einen Doppelquantentrog mit unterschiedlichen Trogbreiten bis hin zu einer regelmäßigen Achtfach-Quantentrogstruktur, welche nicht mehr weit von Anwendungen entfernt ist, ab. Mit Ausnahme des explizit erwähnten quaternären Puffers bestehen alle Quantentroge aus InGaN, welches in GaN-Puffer eingebettet ist. In Abschnitt 4.4 werden die Proben zusammen mit ihrer genauen Schichtfolge und den Ergebnissen im Detail vorgestellt. Die verschiedenen Strukturen weisen Felder im Bereich von 10 MV/m bis 180 MV/m auf. Die Ergebnisse des Achtfach-Quantentrogs wurden zur Veröffentlichung eingereicht [59]. Die untere Grenze des Auflösungsvermögens liegt bei etwa 10 MV/m, ist jedoch von der Probendicke abhängig. Zur Messung der Dicke wurde die mittlere inelastische freie Weglänge von Plasmonen, ein materialabhängiger Parameter, bestimmt und ebenso zur Veröffentlichung eingereicht [60].

Um die Genauigkeit der Messungen abschätzen zu können, werden in Kapitel 5 alle in die Berechnung der Feldstärke eingehenden Größen einer Fehlerbetrachtung unterzogen. Es ergibt sich ein absoluter Fehler für die Bestimmung der Felder von 27 %, welcher im Vergleich mit obigen Methoden mindestens gleichwertig ist. Relative Änderungen können mit einem Fehler von etwa 13 % deutlich besser aufgelöst werden.



## 2 Experimentelle Grundlagen

Die eingangs erwähnten LEDs und LDs basieren auf Strukturen, welche sich im Bereich bis wenige 10 nm bewegen. Aus diesem Grund wird eine Untersuchungsmethode benötigt, welche einerseits passende Vergrößerung und Abbildung erlaubt und andererseits die nötigen Detektoren für das Bestimmen weiterer Materialeigenschaften beeinhaltet. Die Transmissionselektronenmikroskopie (TEM, siehe Abschnitt 2.1) bietet all diese Eigenschaften und stellt daher die experimentelle Grundlage dieser Arbeit dar. Der Vorteil der Elektronenmikroskopie liegt in dem vielfach größeren Auflösungsvermögen im Vergleich zu optischen Mikroskopen. Durch die Verwendung von Elektronen anstatt Photonen können Auflösungen bis in den subatomaren Bereich erreicht werden.

Zur Abbildung der Probenstrukturen wird der Rastermodus des TEMs („Scanning TEM“ – STEM, siehe Abschnitt 2.2) benutzt. Als Analysemethoden werden im Speziellen einerseits die Methode der Elektronenenergieverlustspektroskopie beziehungsweise der energiegefilterten Transmissionselektronenmikroskopie (EELS beziehungsweise EFTEM, siehe Abschnitt 2.3) benutzt, in der das Mikroskop im TEM-Modus betrieben wird. Mit Hilfe von EELS/EFTEM ist es möglich, die Probendicke festzustellen. Sie ist essentiell für die Quantifizierung der elektrischen Feldstärke. Es wird dabei die Anregung von Plasmonen *in situ* über deren mittlere inelastische freie Weglänge („Inelastic Mean Free Path“ – IMFP) relativ gemessen [61, 62]. Weiterhin wird der HAADF-Detektor („High Angle Annular Dark Field“) im STEM-Modus eingesetzt. Damit ist es möglich, die Probendicke absolut zu bestimmen [63] und basierend auf der Korrelation von EFTEM- und HAADF-Messungen an identischer Probenstellen den IMFP festzustellen (siehe Abschnitt 4.3). Die Probendicke kann somit auch mit EFTEM absolut ausgewertet werden. Schlussendlich werden mit Hilfe der Differentiellen Phasenkontrastmikroskopie (DPC, siehe Abschnitt 2.4), für welche das Mikroskop wiederum im STEM-Modus betrieben wird, die inneren elektrischen Felder bestimmt. Maßgeblich für das Auflösungsvermögen der Messungen ist der Strahldurchmesser im STEM. In diesem Modus wird nur ein sehr kleiner Probenbereich beleuchtet und die gemessenen Felder können so sehr gut lokalisiert werden. Grundsätzlich ist die Ablenkung des Elektronenstrahls

und somit das gemessene DPC-Signal abhängig vom Produkt aus Probendicke und elektrischer Feldstärke. Im Einzelnen sind jedoch mehrere Messgrößen vor allem für die Quantifizierung nötig. Dies sind im Einzelnen:

- das Differenzsignal der DPC-Messung,
- die Probendicke,
- der Faktor beim Wechsel der Verstärkerstufe und
- die Gesamtintensität.

Sie werden in den folgenden Abschnitten beschrieben.

Eine umfangreiche Einführung in die (Raster-)Transmissionselektronenmikroskopie würde den Rahmen dieser Arbeit überschreiten. Im Folgenden sollen nur die relevanten Methoden ausführlicher erläutert werden. Einen ausführlichen Überblick über die Technik, die Kontrastentstehungsmechanismen und die verschiedenen Arten, diese zu detektieren, bieten die Bücher von Carter/Williams [64], Reimer [65] und Alexander [66].

## 2.1 Transmissionselektronenmikroskopie

Das TEM wurde erstmals 1932 in einer Veröffentlichung von Ernst Ruska und Max Knoll beschrieben [67]. Für diese wegweisende Entdeckung wurde 1986 der Nobel-Preis für Physik verliehen. Seit seiner ersten Realisierung verbesserte sich die Leistungsfähigkeit der Mikroskope unter anderem hinsichtlich Auflösung und Vergrößerung um viele Größenordnungen. In der Realität sind technische Einschränkungen wie zum Beispiel die endliche Breite der Energieverteilung der Strahlelektronen oder diverse Linsenfehler der maßgeblich begrenzende Faktor.

Das Transmissionselektronenmikroskop ist eine spezielle Variante innerhalb der Klasse der Elektronenmikroskope. Das grundlegende Prinzip basiert auf dem Durchstrahlen von Proben. Davon abzugrenzen ist zum Beispiel das Rasterelektronenmikroskop (REM, englisch „Scanning Electron Microscope“ – SEM), welches oft für die Analyse von Oberflächen und für Elektronenstrahlolithografie verwendet wird und zu Bildgebung die rückgestreuten und Sekundärelektronen nutzt. Die benutzten Beschleunigungsspannungen sind im TEM etwa eine Größenordnung größer als beim REM. Ein weiterer Unterschied ist das Auflösungsvermögen. Im Gegensatz zum REM ist im TEM subatomare Auflösung Stand der Technik (siehe beispielsweise [13, 63]). Durch die Transmission von Elektronen kann im TEM das Innere von

Proben untersucht werden. Dies gilt für eine Dicke bis ca. 200 nm, bis zu der die Proben elektronentransparent sind.

Nach Abbe ist das Auflösungsvermögen von optischen Mikroskopen fundamental durch die verwendete Wellenlänge begrenzt. Diese Grenze kann grob durch die halbe Wellenlänge des verwendeten Lichts abgeschätzt werden<sup>1</sup> (siehe zum Beispiel [71]). Es ergibt sich eine Auflösungsgrenze für sichtbares Licht in der Größenordnung von 250 nm. Auch Elektronenmikroskope sind diesem fundamentalen Limit unterworfen. Aufgrund des Welle-Teilchen-Dualismus haben jedoch auch Elektronen eine zu ihrem Impuls äquivalente Wellenlänge. Die theoretische Auflösungsgrenze ist somit durch den Wellencharakter der Elektronen nur von ihrem Impuls beziehungsweise von ihrer Energie und damit von der benutzten Beschleunigungsspannung abhängig. Es kann im Vergleich zu optischen Mikroskopen eine Verbesserung des Auflösungsvermögens um mehrere Größenordnungen erreicht werden. Bestimmend dafür ist die De-Broglie-Wellenlänge  $\lambda$ . Sie ist über den Zusammenhang

$$\lambda = h/p \quad (2.1)$$

definiert. Dabei ist  $h$  das Plancksche Wirkungsquantum und  $p$  der Impuls der Elektronen [72]. Da die Energie der Elektronen über die Beschleunigungsspannung festgelegt wird, kann Gleichung (2.1) unter Berücksichtigung relativistischer Korrekturen in

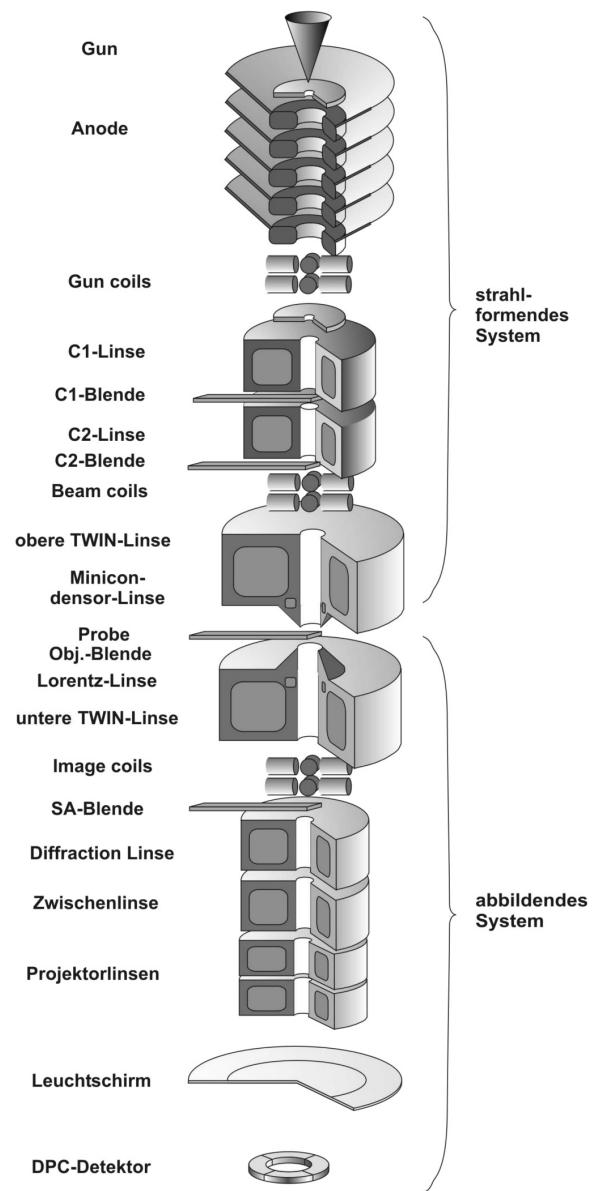
$$\lambda = \frac{hc}{\sqrt{2E_U E_0 + E_U^2}} \quad (2.2)$$

umgeformt werden. Darin gehen die Lichtgeschwindigkeit  $c$ , die Ruhemasse des Elektrons  $m_0$ , die Ruheenergie  $E_0 = m_0 c^2$  und die kinetischen Energie der Elektronen  $E_U = eU$  mit der Elementarladung  $e$  und der Beschleunigungsspannung  $U$  ein.

Im TEM werden typischerweise Beschleunigungsspannungen im Bereich von 100 kV bis 400 kV verwendet. Für Elektronen ergibt sich somit eine Wellenlänge von 3,7 pm bis 1,6 pm, was um eine Größenordnung kleiner ist, als die kovalente Bindungslänge von Wasserstoff mit 31 pm [73]. Die Elektronen werden dabei auf 0,55 c bis 0,83 c beschleunigt. In dieser Arbeit wurde mit der für das vorliegende Mikroskop maximalen Beschleunigungsspannung von 300 kV gearbeitet. Durch die hohe Auflösung und die vielfältigen Analysemethoden eignet sich das TEM besonders für Untersuchungen von Strukturen im Subnanometerbereich.

---

<sup>1</sup> Ausnahmen bilden dabei beispielsweise die Methoden „Stimulated Emission Depletion“ (STED, [68]) und „Ground State Depletion“ (GSD, [69]), für welche Auflösung von Objekten mit mehr als einer Größenordnung kleiner als die verwendete Wellenlänge gezeigt werden konnte [70].

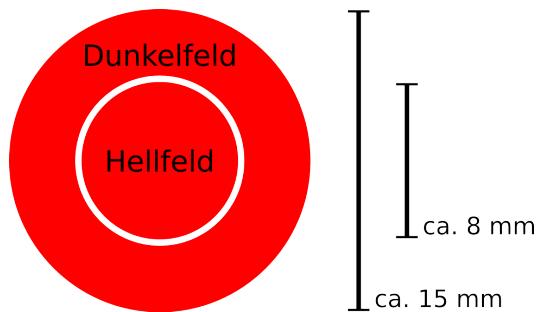


**Abbildung 2.1:** Innerer Aufbau eines TEMs. Die Elektronen werden von der „Gun“ emittiert und in der Anode mit der gewünschten Spannung beschleunigt. Im Bereich von „Gun coils“ bis „obere TWIN-Linse“ wird der Elektronenstrahl weiter geformt. Nach Durchlaufen der Probe wird das entstandene Bild im „abbildenden System“ vergrößert auf den Leuchtschirm oder einen Detektor abgebildet (Abbildung aus [9]).

Ein TEM kann grundlegend in zwei Abschnitte eingeteilt werden: das strahlformende und das abbildende System. Zum ersten Teil gehört eine Kathode, gefolgt vom Elektronenbeschleuniger und (magnetischen) Linsen, welche den Strahl zur Beleuchtung der Probe vorbereiten. Der zweite Teil ist mit seinen Linsen unter anderem für das Nachvergrößern und Positionieren des Strahls auf die verschiedenen Detektoren zuständig. Mehrere Blenden in unterschiedlichen Ebenen erlauben eine zusätzliche Beeinflussung der Abbildung.

Abbildung 2.1 zeigt den internen Aufbau eines TEMs. Als Elektronenquelle fungiert die Kathode („Gun“), welche entweder als Glühkathode (meist auf Basis von Wolfram oder Lanthanhexaborid –  $\text{LaB}_6$ ) oder Feldemissionskathode („Field Emission Gun“ – FEG) ausgeführt ist. Die FEG wird – im Gegensatz zur Glühkathode – deutlich weniger stark geheizt. Dies hat zur Folge, dass die Energieverteilung der emittierten Elektronen schmäler ist und damit die Abbildungsleistung verbessert wird. Noch besser sind die Eigenschaften der sogenannten „kalten“ FEG („Cold FEG“), welche eine Weiterentwicklung der FEG darstellt, bei der die Temperatur noch weiter abgesenkt ist. Die Elektronen können die Kathode tunnelnd verlassen, indem eine Extraktionsspannung im Bereich einiger Kilovolt an sie angelegt wird. Im Folgenden werden sie durch eine Wehneltanordnung gebündelt und durch die nachfolgende Anode auf die gewünschte Energie beschleunigt. Im Kondensor genannten, nächsten Abschnitt des Mikroskops (mit „C1“ und „C2“ bezeichnet), wird der Elektronenstrahl geformt. Eigenschaften wie Strahlstromdichte oder Kohärenz können hier beeinflusst werden. Die Objektivlinse sorgt für die Beleuchtung der Probe. Sie ist symmetrisch aus einer oberen und unteren Teillinse aufgebaut, welche im vorliegenden Mikroskop als obere und untere „TWIN“-Linse bezeichnet ist (siehe Abbildung 2.1). Dazwischen wird die Probe eingebracht. In Abhängigkeit vom Modus beleuchtet der Strahl die Probe flächig oder punktförmig (TEM beziehungsweise STEM).

Ein nachfolgendes System aus magnetischen Linsen formt den „abbildenden“ Teil des Mikroskops. Die Wechselwirkung des Strahls mit der Probe verursacht Veränderungen der Intensitätsverteilung, die später den erwarteten Bildkontrast ergeben. Der Elektronenstrahl wird schlussendlich entweder auf einen Leuchtschirm projiziert, wo er direkt betrachtet werden kann oder durch einen von mehreren Detektoren aufgefangen und zur weiteren Auswertung digitalisiert. Der Leuchtschirm kann dazu aus dem Strahlengang entfernt werden. Im TEM-Betrieb beleuchtet der Strahl die Probe flächig. Das daraus resultierende, vergrößerte Abbild wird auf eine zweidimensionale CCD-Kamera (englisch „Charge-Coupled Device“, ein lichtempfindlicher Halbleitersensor) projiziert, welche das Bild parallel aufnimmt.



**Abbildung 2.2:** Schematische Darstellung der (ortsfesten) Hell- und Dunkelfeld-Detektoren beim STEM mit typischen Größenangaben. Der ungebeugte Strahl wird in diesem Mikroskopiemodus auf den inneren Detektor gelenkt, wohingegen die gebeugten und gestreuten Elektronen vom äußeren Detektor erfasst werden.

Um optimale Kontraste zu erhalten, versucht man mit Hilfe von Blenden und/oder verschiedenen Detektoren nur diejenigen Bestandteile des transmittierten Strahls zu betrachten, die die gewünschten Informationen transportieren. So ist es möglich, gezielt Probeneigenschaften zu selektieren und zu erfassen. Dies kann im Bild- oder Beugungsmodus geschehen.

## 2.2 Rastertransmissionselektronenmikroskopie

Im Gegensatz zum TEM-Modus wird im STEM-Betrieb eine Strahlsonde im Bereich von wenigen Nanometern Durchmesser gebildet und über die Probe gerastert. Der Elektronenstrahl wird dazu durch spezielle Spulen oberhalb und unterhalb der Probe (siehe „Beam Coils“ und „Image Coils“ in Abbildung 2.1) jeweils von der optischen Achse ab- und wieder zurückgelenkt. In diesem Modus können – je nach Ausstattung – mehrere Detektoren für verschiedene Eigenschaften zur Bildentstehung herangezogen werden. Der jeweilig benutzte Detektor bleibt dabei ortsfest. Das Signal entsteht durch Interaktion der Elektronen mit dem bestrahlten Probenbereich. Für jeden Bildpunkt wird der Strahl stationär gehalten und die jeweiligen Signale aufgezeichnet. In diesem Betrieb ist es daher möglich, Informationen über Probenorte mit der Größe des Strahldurchmessers zu erhalten. STEM eignet sich somit sehr gut für analytische und quantitative Untersuchungen. Das Mikroskop arbeitet in diesem Fall im Beugungsmodus.

Das direkte Bild ergibt sich in diesem Modus durch Detektion der ungestreuten Elektronen am kreisförmigen Hellfeld-Detektor („Bright Field“ – BF). Für das Erfassen der gestreuten Elektronen stehen zwei Systeme zur Verfügung, welche

sich darin unterscheiden, in welchem Winkelbereich gestreute Elektronen erfasst werden. Direkt an den Hellfeld-Detektor schließt sich der ringförmige Dunkelfeld-Detektor an („(Annular) Dark Field“ – (A)DF). Er deckt den Winkelbereich von ca. 10 mrad bis 50 mrad ab (50 mrad entsprechen etwa  $3^\circ$ ). Abbildung 2.2 zeigt die Anordnung von BF und ADF schematisch. Hinsichtlich des Streuwinkels schließt daran der HAADF-Detektor an. Er erfasst die noch stärker gestreuten Elektronen in einem Bereich von etwa 50 mrad bis 200 mrad [64]. Da das HAADF-Signal stark von der Ordnungszahl Z der in der Probe enthaltenen Atomkerne abhängig ist, wird dafür auch der Begriff „Z-Kontrast“ benutzt. Um die Empfindlichkeit variieren zu können, kann die sogenannte „Kameralänge“ des Mikroskops verändert werden. Sie beschreibt den über das abbildende System einstellbaren Weg, welche die Elektronen zwischen Probe und Detektor zurücklegen müssen. In dieser Arbeit wird das Signal des (modifizierten) ADF (siehe Abschnitt 2.4) und des HAADF (siehe Abschnitt 4.3) zur Auswertung verwendet. Das Hellfeldsignal wird nur zur reinen Abbildung der Strukturen, nicht jedoch zur Analyse verwendet.

Die Abbildungsqualität im STEM-Modus hängt im Gegensatz zum TEM-Modus nur vom strahlformenden Linsensystem ab. Dies röhrt daher, dass die der Probenebene nachfolgenden Linsen ausschließlich die Aufgabe haben, den Elektronenstrahl auf den STEM-Detektor zurückzuführen. Die Vergrößerung wird dabei nicht über die nachfolgenden Linsen des abbildenden Systems realisiert, sondern ergibt sich ausschließlich durch die Größe des Bereichs, den der Strahl auf der Probe abrastert. Der Einfluss von Linsenfehlern auf den Strahl bei seiner Verschiebung ist bei den verwendeten hohen Vergrößerungen im Bereich jenseits von 100 000 jedoch so gering, dass man in guter Näherung von Fehlerfreiheit sprechen kann.

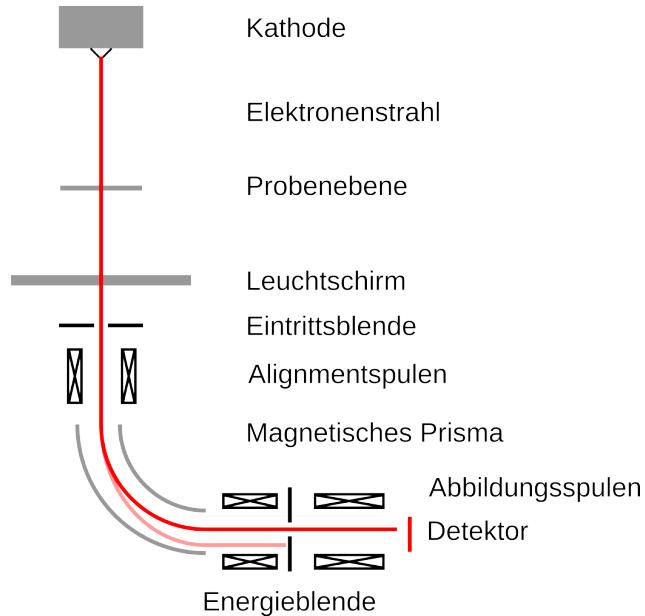
Da im TEM Elektronen zur Abbildung benutzt werden, muss man auch die Wechselwirkung zwischen Strahl und Probe beachten. Üblicherweise sind die Proben gewollt oder ungewollt mit einer leitenden Kohlenstoffschicht überzogen. Diese verhindert meist Aufladungen der Probe, welche das Mikroskopieren stark erschweren oder unmöglich machen. Aufladungen sind bei der Abbildung deutlich, oft in Form von stärker werdenden Verzerrungen bei steigender Vergrößerung zu erkennen. Weniger eindeutig sind jedoch Effekte, welche die elektrischen Eigenschaften der Probe beeinflussen. So kann der intensive Beschuss einer begrenzten Fläche mit Elektronen lokal temporäre Veränderungen hervorrufen. Für die in dieser Arbeit üblicherweise verwendeten Vergrößerungen bis etwa 500 000-fach können keine diesbezüglichen Effekte festgestellt werden und werden deshalb vernachlässigt. Oberhalb davon wird die Strahlstromdichte vor allem bei STEM so groß, dass ihre Berücksichtigung geboten ist.

Bei einem Strahlstrom von typischerweise  $1 \mu\text{A}$  und einem Strahldurchmesser von  $1 \text{ nm}$  ergibt sich bei STEM eine Strahlstromdichte in der Größenordnung von  $1 \times 10^{27} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Bei dieser Stromdichte in Kombination mit der großen Beschleunigungsspannung ist ein Energieübertrag in die Probe wahrscheinlich. Der Einfluss von zum Beispiel auf diese Weise erzeugten Abschirmladungen auf das elektrische Feld und somit auch auf die optischen Eigenschaften wurde untersucht und ergab sehr deutliche Änderungen [18]. Dabei wurde eine Erzeugungsrate von Ladungsträgern von  $3,5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  angenommen. Um diese Rate bei STEM zu erreichen, muss nur etwa jedes  $1 \times 10^8$ -te Strahlelektron Ladungsträger anregen. Es ist deshalb nachvollziehbar, dass der Elektronenstrahl Einfluss auf das Ergebnis beispielsweise in Form von Exzitonenerzeugung hat.

## 2.3 Elektronenenergieverlustspektroskopie

Neben der grundlegenden Aufgabe der vergrößerten Abbildung von Objekten kann das TEM eine Vielzahl von Analysen durchführen. Ein häufig eingesetztes Verfahren ist die Elektronenenergieverlustspektroskopie („Electron Energy Loss Spectroscopy“ – EELS) beziehungsweise die energiegefilterte Transmissionselektronenmikroskopie („Energy Filtered Transmission Electron Microscopy“ – EFTEM). Dadurch können elastische und inelastische Streuprozesse untersucht werden, welche aus Wechselwirkungen mit Phononen oder Elektronen resultieren. Einen umfangreichen Einblick in die Elektronenenergieverlustspektroskopie bietet zum Beispiel das Buch von Egerton [74].

Mit EELS können Spektren aufgenommen werden, welche die Energieverluste des gewählten Bildausschnitts in Form eines Histogramms integral darstellen. EFTEM erlaubt im Gegensatz dazu die Aufnahme eines energiegefilterten Bildes der Probe. Wird der Energiefilter so gewählt, dass nur Elektronen zur Bildentstehung beitragen, die die gewünschte Information tragen, können Eigenschaften gezielt sichtbar gemacht werden. So ist es unter anderem möglich, aus dem Absorptionsspektrum die in der Probe vorhandenen Elemente zu bestimmen. Weiter kann über die Anregung von Plasmonen auf die zur Quantifizierung von DPC nötige lokale Probendicke geschlossen werden. In den folgenden Abschnitten soll deshalb der Versuchsaufbau und die *in-situ*-Messung der Probendicke erläutert werden.

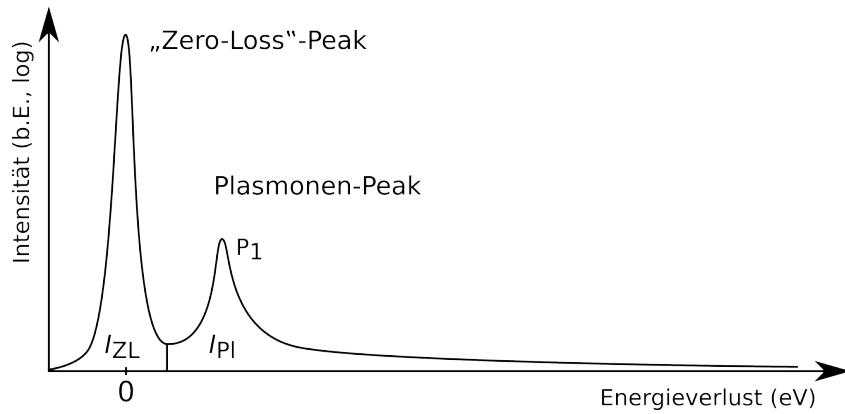


**Abbildung 2.3:** Schematische Funktionsweise eines EELS. Der von der Kathode kommende Elektronenstrahl durchdringt die Probe in der Probenebene und unterliegt darin Wechselwirkungen, welche seine Energie verringern können. Der Elektronenstrahl wird über Alignmentspulen ausgerichtet, durch die Eintrittsblende bezüglich des Raumwinkels eingeschränkt, im magnetischen Prisma energetisch aufgetrennt und über eine Energieblende abhängig von der Verlustenergie gefiltert. Die Abbildungsspulen nach dem Prisma werden benötigt, um auf den Detektor entweder ein Spektrum oder ein energiegefiltertes Bild (EELS beziehungsweise EFTEM) zu erhalten (Abbildung nach [64]).

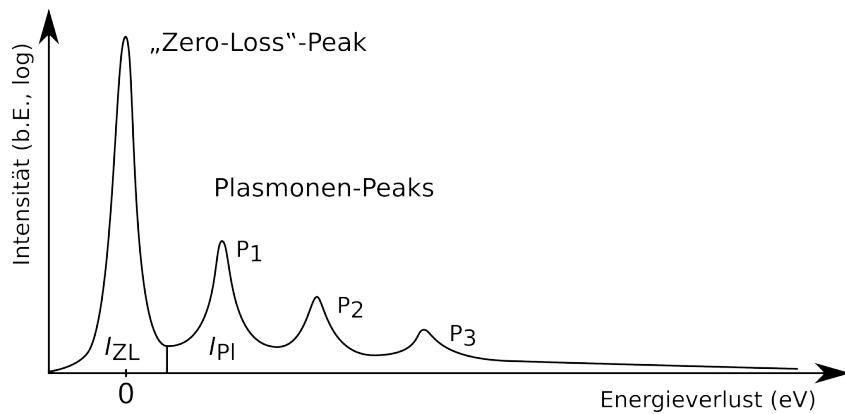
### 2.3.1 Versuchsaufbau

Die Detektion der energiegefilterten Elektronen übernimmt ein gesonderter Anbau. Er ist im vorliegenden Fall (in Strahlrichtung) nach dem Leuchtschirm bzw. den (S)TEM Detektoren an die Mikroskopsäule angebaut. Ein magnetisches Prisma am Eingang des Detektors lenkt den Strahl um ca.  $90^\circ$  ab und fächert so die Elektronen abhängig von ihrer Energie örtlich auf. Zwei Blenden erlauben die Einschränkung der Analyse auf einen bestimmten Akzeptanzwinkel und das Filtern eines bestimmten Energiefensters als Bandpass (siehe Abbildung 2.3). Vor- und nachgelagerte Spulen erlauben ein Ausrichten des Strahls und die Wahl des Abbildungsmodus (EELS beziehungsweise EFTEM).

Betrachtet man ein typisches Spektrum, so kann es in drei Hauptbereiche unterteilt



(a) EELS-Spektrum bei Einfachanregung



(b) EELS-Spektrum bei Mehrfachanregung

**Abbildung 2.4:** Darstellung typischer EELS-Spektren mit Plasmonenanregungen. Neben dem verlustfreien „Zero-Loss“-Signal sind die Peaks bei Einzel- (P<sub>1</sub>, Grafik a) und Mehrfachanregung (P<sub>1</sub>/P<sub>2</sub>/P<sub>3</sub>, Grafik b) deutlich erkennbar (Abbildung nach [64]).

werden: das Signal ohne Energieverlust („Zero-Loss“), den Bereich geringer („Low-Loss“) und hoher („High-Loss“ bzw. „Core-Loss“) Verluste. Der Übergang zwischen den letzten beiden ist bei 50 eV festgelegt und trennt die Signale der weniger stark gebundenen Elektronen in den äußeren Schalen von den stärker gebundenen Elektronen innerer Schalen [64]. Energieverluste können bis in den Bereich von wenigen keV gemessen werden.

Um energiegefilterte Bilder zu erhalten, wird das Signal jedoch nicht als ein einziges integrales Spektrum der gesamten beleuteten Probenstelle aufgezeichnet. Stattdessen wird nach der Energieblende wieder ein zweidimensionales Bild geformt. Der Kontrast des aufgenommenen Bildes hängt maßgeblich von den Einstellungen der beiden Blenden des Spektrometers ab (siehe Abbildung 2.3). Sie begrenzen einerseits den Raumwinkel, unter dem gestreute Elektronen überhaupt in das Spektrometer eintreten und somit zur Bildentstehung beitragen können, andererseits schränken sie den Bereich des Elektronenenergieverlustspektrums ein, der zur Kontrastentstehung beiträgt. Die Eintrittsblende befindet sich noch vor dem magnetischen Prisma am Eingang des Spektrometers. Sein Durchmesser definiert in Verbindung mit der Kameralänge des Mikroskops den Akzeptanz- oder „Cut-Off“-Winkel. Elektronen, die in einen größeren Raumwinkel gestreut werden, werden durch die Blende an dieser Stelle gefiltert. Die Elektronen werden im darauffolgenden magnetischen Prisma entsprechend ihrer Energie örtlich aufgetrennt. Die zweite Blende ermöglicht somit das Auswählen eines bestimmten Energiebereichs. Für die Eintrittsblende stehen für das in dieser Arbeit benutzte Spektrometer 1 mm, 2 mm, 3 mm und 5 mm, für die Energieblende 1 eV bis 26 eV in Schritten von 1 eV zur Verfügung.

Der Raumwinkel, in den ein Elektron mit der größten Wahrscheinlichkeit gestreut wird, lässt sich mit Hilfe des differentiellen Streuquerschnitts berechnen. Dieser charakteristisch vom Energieverlust abhängige Winkel  $\Theta_S$  ergibt sich zu

$$\Theta_S = \frac{E_V}{\gamma m_0 v^2} \quad (2.3)$$

mit der mittleren Verlustenergie  $E_V$ , der Ruhemasse  $m_0$  und der Geschwindigkeit der Elektronen  $v$  [64]. Die durch die verwendete Beschleunigungsspannung von 300 keV erforderlichen relativistischen Korrekturen werden durch den Lorentzfaktor  $\gamma$  berücksichtigt:

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}} \quad (2.4)$$

Weiterhin ist der Winkel wichtig, ab dem die Streuintensität quasi null beträgt. Mit ihm kann abgeschätzt werden, ob die verwendete Blende die gestreuten Elektronen vollständig oder nur teilweise zur Bildentstehung nutzt. Dieser Winkel wird meist Cut-Off-Winkel  $\Theta_C$  genannt. Für Materialien, deren Elektronen als (überwiegend) „freie Elektronen“ beschrieben werden können, ist der Cut-Off-Winkel typischerweise ein bis zwei Größenordnungen größer als der mittlere Streuwinkel  $\Theta_S$ . Für die zur Dickenbestimmung wichtige inelastische Streuung (siehe folgender Abschnitt) ist

diese Näherung darüber hinaus besser als für elastische Streuung [74]. Typische Werte für  $\Theta_C$  liegen im Bereich von etwa 10 mrad [64].

### 2.3.2 Bestimmung der Probendicke

Wie in Abschnitt 2.4.5 erläutert wird, hängt die Stärke des DPC-Signals neben dem elektrischen Feld auch von der lokalen Probendicke ab. Aus diesem Grund ist es nötig, die Dicke mit zumindest ähnlicher Genauigkeit wie die DPC-Messung zu bestimmen. Durch die in Abschnitt 2.5 beschriebene Vorgehensweise zur Probenpräparation (vergleiche Abbildung 2.10) ist eine Bestimmung der lokalen Probendicke *ex situ* mit Methoden wie Profilometrie oder Rasterkraftmikroskopie („Atomic Force Microscopy“ – AFM) jedoch aus zwei Gründen so gut wie unmöglich. Zum einen ist es fast ausgeschlossen, bei den von beiden Seiten gedünnten Proben einen Referenzpunkt festzulegen. Zum anderen ist das Auffinden des relevanten Probenausschnitts auf dem 3 mm Durchmesser großen TEM-Präparat mit dem typischen maximalen Rasterfenster eines AFM von  $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$  eine sehr zeitraubende Angelegenheit. Darüber hinaus ist die Wahrscheinlichkeit, eine freitragende, unter 100 nm dicke Lamelle durch die Messung zu beschädigen oder zu zerstören, sehr hoch. Aus diesem Grund ist eine *in-situ*-Messung unerlässlich.

Von den verschiedenen Arten von Wechselwirkungen, welche zwischen den Strahl-elektronen und der Probe stattfinden, eignen sich inelastische Streuvorgänge zur *in-situ*-Dickenbestimmung. Die Elektronen des Strahls regen dabei Elektronen der Probe zum Schwingen an. Diese kollektiven Schwingungen sind quantisiert und können durch ein Quasiteilchen beschrieben werden – das Plasmon [61]. Plasmonen können dabei als Volumen- oder Oberflächenplasmonen existieren. Im vorliegenden Fall werden jedoch nur Volumenplasmonen berücksichtigt, da sie im Gegensatz zu Oberflächenplasmonen eine mindestens doppelt so große Energie haben und deshalb vernachlässigt werden können. Dies gilt auch für sehr dünne Proben [64].

Die Strahlelektronen verlieren bei jedem Streuereignis die Anregungsenergie eines Plasmons, welche materialabhängig ist. Üblicherweise liegt sie im Bereich von 10 eV bis 40 eV, bei GaN beträgt sie etwa 21 eV. Das im Spektrometer gemessene Plasmonenignal befindet sich gegenüber der Energie des einfallenden Strahls von 300 keV im Bereich kleiner Energieverluste, dem Low-Loss-Bereich (siehe oben). Je nach Probendicke ist auch Mehrfach- (definiert als bis 20 Prozesse) und Vielfachstreuung (ab 20 Prozesse) eine einzelnen Elektrons möglich [64]. Dies ist durch weitere Peaks bei Energien erkennbar, die dem Vielfachen der Einfachanregung entsprechen. Abbildung 2.4 zeigt schematisch je ein typisches Spektrum mit den relevanten Inten-

sitäten bei Ein- und Mehrfachanregung. Der Zero-Loss-Strahl dominiert das Signal dabei bei Weitem. Auch wenn die Skizze einen Energiegewinn des Nullstrahls als endliche Amplitude im „negativen Energieverlustbereich“ suggeriert, entspricht dies nicht der Wirklichkeit. Neben einer Auflösungsgrenze des Spektrometers von etwa 0,3 eV haben die Strahlelektronen durch ihre thermische Anregung eine endliche Energieverteilung [64]. Da das Maximum der Intensitätsverteilung beim Justieren als Nullreferenz benutzt wird, ergibt sich dieser Effekt scheinbar.

Die Messung der Probendicke wird über zwei EFTEM-Bilder realisiert. Die Dicke  $t$  hängt über

$$t = \ln \left( \frac{I_{\text{ZL}} + I_{\text{Pl}}}{I_{\text{ZL}}} \right) \cdot \lambda \quad (2.5)$$

von der Gesamtintensität aller vorhandenen Plasmonenpeaks  $I_{\text{Pl}}$ , der Intensität des Zero-Loss Peaks  $I_{\text{ZL}}$  und der mittleren inelastischen freien Weglänge  $\lambda$  ab [74, 75]. Die Gesamtintensität ergibt sich hier durch ein ungefiltertes EFTEM-Bild, die Zero-Loss-Intensität durch den um den verlustfreien Strahl angebrachten Energiefilter. Für die vorliegenden Spektren wurde eine Breite von 10 eV gewählt. Die obige Beziehung wird auch „Log-Ratio“-Formel genannt.

Im Mikroskop nimmt die Software je ein ungefiltertes und gefiltertes Bild auf. Beide Bilder werden basierend auf Gleichung (2.5) miteinander verrechnet. Das Ergebnis ist wiederum ein Bild (auch Dickenkarte oder „Thickness Map“ genannt), in dem jedes Pixel die Probendicke in Einheiten von  $\lambda$  zeigt. Kennt man  $\lambda$ , so kann die Dicke direkt bestimmt werden (siehe Abschnitt 4.3).

### 2.3.3 Theoretische Abschätzung der mittleren inelastischen freien Weglänge von Plasmonen

Um die zu erwartende mittlere inelastische freie Weglänge abschätzen zu können, wurde von Malis *et al.* eine empirische Formel vorgeschlagen [75]. Sie beschreibt den IMFP in Abhängigkeit vom Akzeptanzhalbwinkel  $\beta$  des EELS [64, 74, 75]:

$$\lambda = \frac{106F(E_0/E_{\text{Pl}})}{\ln(2\beta(E_0/E_{\text{Pl}}))} \quad (2.6)$$

$E_0$  bezeichnet dabei die Energie des Elektronenstrahls,  $E_{\text{Pl}}$  die Schwerpunktenergie der Plasmonanregung und  $F$  einen relativistischen (Korrektur-)Faktor, definiert durch:

$$F = \frac{1 + E_0/1022}{(1 + E_0/511)^2} \quad (2.7)$$

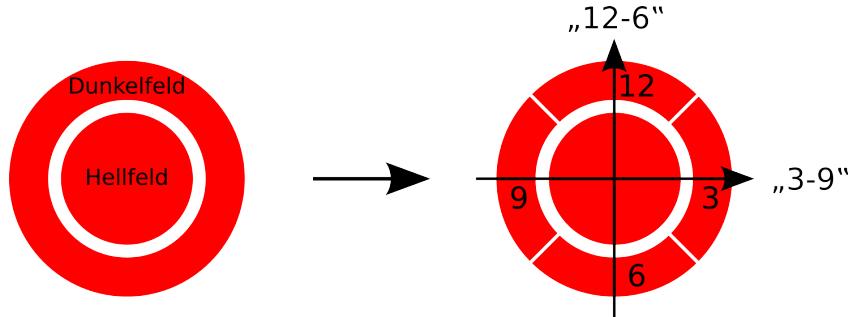
Gleichung (2.6) gilt hierbei im Rahmen der Dipolnäherung. Der Gültigkeitsbereich lässt sich über das Kriterium  $\beta \ll \sqrt{E_{\text{Pl}}/E_0}$  abschätzen.  $E_{\text{Pl}}$  wird dabei mit 21,9 eV angenommen [75, 76]. Der scheinbare Widerspruch zum Literaturwert des Maximums der Plasmonanregung von 19,4 eV für GaN [77] ist in der Asymmetrie des Plasmonenpeaks begründet, bei dem Maximum und Schwerpunkt nicht zusammenfallen [76].

Neben der Primärenergie der Elektronen  $E_0$  ist für die Berechnung von  $\lambda$  der Akzeptanzhalbwinkel  $\beta$  des Spektrometers relevant. Eine direkte Abschätzung des Winkels ist schwierig, da die Bestimmung der geometrischen Verhältnisse mit großen Fehlern behaftet ist. Man schränkt aus diesem Grund den von der Probe kommenden Winkelbereich durch eine weitere Blende direkt unterhalb der Probe ein (siehe Objektivblende, Abbildung 2.1). Diese Blende ist so gewählt, dass sie den Streuwinkel des Elektronenstrahls stärker beschränkt als die Eintrittsblende des Spektrometers. Da die Blende eine konstante Lage im Mikroskop hat und somit nicht von bei der Messung veränderten Parametern abhängt, hält sie den Streuwinkel konstant. Seine Bestimmung ist in Abschnitt 4.2 durchgeführt.

In diesem Zusammenhang ist der erwartete Streuwinkel  $\Theta_E$  wichtig, da möglichst viele Elektronen zur Messung beitragen sollen. Das Maximum des typischen Winkels beträgt für Wechselwirkungen mit Plasmonen im Energiebereich von 5 eV bis 25 eV weniger als etwa 0,1 mrad. Der Cut-Off-Winkel  $\Theta_C$ , welcher die Obergrenze der gestreuten Intensität definiert, kann über  $\Theta_C = \sqrt{2\Theta_E}$  berechnet werden. Er ergibt sich zu circa 0,45 mrad. Typische experimentelle Cut-Off-Winkel sind im Bereich von 5 mrad und mehr. Es tragen somit quasi alle inelastisch gestreuten Elektronen zur Signalentstehung bei.

## 2.4 Differentielle Phasenkontrastmikroskopie

Die Differentielle Phasenkontrastmikroskopie (DPC) ist eine Abbildungstechnik, die in den 1970er Jahren für das TEM als Messmethode vorgeschlagen wurde [4–6]. Wenige Jahre später war die Methode für magnetische Messungen etabliert [7, 8, 10, 11]. Neben der Anwendung im TEM wird Differentieller Phasenkontrast auch in weiteren Bereichen genutzt. Dazu zählen zum Beispiel optische und Röntgenmikroskopie [78–81]. Speziell in Kombination mit dem Rastermodus des TEM ergeben sich zwei Hauptvorteile dieser Methode: Auf der einen Seite kann die Richtung, in die die Elektronen gestreut werden, direkt detektiert werden. Im konventionellen Dunkelfeld-STEM liegt dagegen nur die Information vor, ob und wie stark gestreut wurde, nicht aber die Richtung. DPC ergänzt diese Möglichkeit. Zum Anderen ist



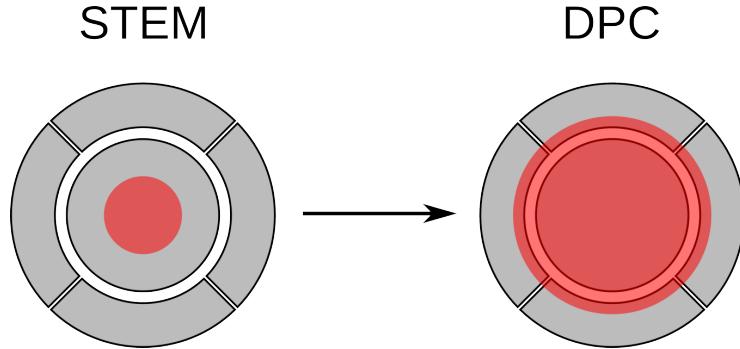
**Abbildung 2.5:** Skizze des alten Dunkelfeld- (links) und des neu konstruierten DPC-Detektors (rechts). Um neben der reinen Helligkeitsinformation auch richtungsabhängig messen zu können, musste ein segmentierter Kreisring eingebaut werden [9]. Die Segmente werden in Anlehnung an eine Uhr mit „3“, „6“, „9“ und „12“ bezeichnet. Durch sie werden zwei orthogonale Achsen „12–6“ und „3–9“ definiert.

eine Auflösung von aktuell 80 pm Stand der Technik [13]. DPC eignet sich sowohl für die Bestimmung magnetischer als auch elektrischer Felder. Beide Feldarten wurden am vorliegenden Aufbau untersucht ([9] und vorliegende Arbeit). Allerdings wurden bisher ausschließlich qualitative Ergebnisse veröffentlicht.

#### 2.4.1 Versuchsaufbau

Um mit dem vorliegenden Versuchsaufbau DPC-Messungen zu ermöglichen, musste das verwendete Mikroskop modifiziert werden. In einer Vorgängerarbeit wurde der dazu nötige Umbau realisiert [9]. Es wurde der konventionelle Dunkelfeld-Detektor, der in Form eines durchgehenden Kreisrings vorliegt, durch einen in vier Segmente geteilten Kreisring ersetzt. Die jeweils paarweise gegenüberliegenden Segmente definieren zwei orthogonale Achsen. Entlang dieser Richtungen ist neben einer Messung der Signalintensität, wie sie der konventionelle Aufbau erlaubt, zusätzlich eine richtungsabhängige Detektion möglich.

Abbildung 2.5 zeigt den alten und neuen Detektor schematisch. Um die Vorstellung zu erleichtern, werden die Segmente wie bei einer Uhr anhand der Positionen der Stunden benannt: Die Teilstücke „12“, „3“, „6“ und „9“ befinden sich entsprechend „oben“, „rechts“, „unten“ und „links“. Entlang der beiden Richtungen „12–6“ und „3–9“ liegen die neu definierten Achsen. Um einen größeren experimentellen Spielraum zu erlauben, existieren zwei Dunkelfeldringe mit unterschiedlichen Radien. Der äußere Detektorring ist in der Skizze nicht gezeigt. Der Radius bewegt sich für den inneren



**Abbildung 2.6:** Anpassung des STEM-Strahldurchmessers für DPC-Messungen. Um bestmögliche Messergebnisse erzielen zu können, wird der Strahl aufgeweitet, bis er den inneren Rand des verwendeten DPC-Rings gerade beleuchtet (rote, runde Fläche). Dies optimiert das Signal-Rausch-Verhältnis [6, 9, 82].

Ring zwischen 8 mm und 15 mm und für den äußeren zwischen 16 mm und 21 mm. Welcher Ring verwendet werden soll, kann über die Messsoftware ausgewählt werden. Über die Wahl des Detektorringes und der Kameralänge kann die Empfindlichkeit auf Kosten des Rauschens variiert werden. Dies liegt daran, da sich mit größerer Kameralänge die Verschiebung des Elektronenstrahls aufgrund des (konstanten) Ablenkwinkels am Detektor stärker auswirkt, sich aber gleichzeitig die Intensität durch die größere beleuchtete Fläche verringert wird.

#### 2.4.2 Kontrastentstehung

Die Kontrastentstehung im DPC-Modus unterscheidet sich deutlich von der im STEM-Betrieb. Im Gegensatz zum Hell- bzw. Dunkelfeld-STEM, wo die auf die jeweiligen Detektoren treffenden Elektronen direkt ausgewertet werden, wird beim DPC ein differentielles Signal betrachtet. Die absolute Helligkeit spielt dabei nur eine untergeordnete Rolle.

Zur Messung des DPC-Signals wird der STEM-Strahl, der sich normalerweise komplett innerhalb des Hellfeld-Detektors befindet, aufgeweitet. Er wird so justiert, dass er den inneren Rand des benutzten Rings gerade noch beleuchtet (siehe Abbildung 2.6). Dies hat eine Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses zur Folge. Der Grund dafür liegt im Fehlen der inneren Kreisfläche, welche keinen Beitrag zum gewünschten Signal liefert, sondern nur das gesamte Intensitäts- und damit auch das Rauschniveau hebt. Die Signalqualität kann so effektiv erhöht werden, was mehrfach untersucht wurde [6, 9, 82]. Wird der Elektronenstrahl in der Probe durch

ein vorhandenes elektrisches Feld beeinflusst, erfolgt eine Auslenkung aus seiner Ruhelage. Es ergibt sich eine Änderung der beleuchteten Flächen der Segmente. Durch die Differenzbildung gegenüberliegender Segmente erhält man für die beiden orthogonalen Richtungen ein Maß für die Ablenkung. Da die auftretenden Ablenkwinkel klein sind, kann in erster Näherung ein linearer Zusammenhang angenommen werden. Er wurde für den vorliegenden DPC-Aufbau bestätigt [9].

Neben einer Verschiebung unterliegt das Signal auch Helligkeitsschwankungen, welche zum Beispiel durch Dickenänderungen der Probe zustande kommen. Auf die sich daraus ergebenden Einflüsse wird in Abschnitt 2.4.6 im Detail eingegangen.

### 2.4.3 Einlesen des DPC-Signals

Der Umbau des STEM-Detektors machte es notwendig, auch für die Messdatenaufnahme eine eigene Lösung zu entwickeln. Dies wurde von Thomas Uhlig im Jahr 2002 realisiert [9]. Um die Daten des nun auf acht Segmente erweiterten DPC-Detektors digitalisieren zu können, wurde der Versuchsaufbau um einen Analog-Digital/Digital-Analog-Wandler („Analog-to-Digital/Digital-to-Analog-Converter“ – ADC/DAC) mit 16 bit Auflösung (entspricht 65 536 Abstufungen) erweitert. Die auf ihm eigenständig laufende Echtzeitsoftware übernimmt sowohl die Aufgabe, den Elektronenstrahl auf der Probe zu positionieren, als auch die Daten der acht Segmente für jede dieser Positionen einzulesen. Das Mikroskop verfügt zur Strahlpositionierung über zwei analoge Eingänge, bei denen der zu rasternde Bereich angesteuert werden kann.

Nach dem Start des Messprozesses durch die PC-Software beginnt der ADC/DAC-Konverter über die Analogschnittstelle ein Zeilen- und Spaltensignal von  $\pm 5$  V in die Rastereinheit des Mikroskops einzuspeisen, wodurch jeder Punkt des gewählten Bildausschnitts angesprungen werden kann. Das Spannungssignal deckt dabei unabhängig von der Auflösung den gesamten Bildbereich ab. Der Konverter liest abhängig von der eingestellten Auflösung und Mittelung eine komplette Zeile ein, speichert das Ergebnis in einem Puffer und signalisiert dies dem PC. Nach Übernahme der Daten durch den PC wird die nächste Zeile abgerastert. Das Einlesen eines Bildes dauert üblicherweise weniger als 2 Minuten. Die eingelesenen Daten aller vier Segmente werden als zweidimensionales Datenfeld in einer Textdatei abgespeichert. In einer zweiten Datei werden die verwendeten Einstellungen zu Dokumentationszwecken mit hinterlegt.

Durch die Wartezeit, die am Ende jeder Zeile entsteht, verbleibt der Elektronenstrahl bis zu 10 ms (die übliche Wartezeit zwischen zwei Abfragen des Messrechners)

am letzten Pixel stehen, bevor die Messung der nächsten Zeile durch den PC freigegeben wird. Ein „Aufwachsen“ von Kohlenstoff-Kontamination ist die Folge. Dies geschieht umso deutlicher, je höher die gewählte Vergrößerung ist, da der Strahl länger in einem relativ kleinen Bildausschnitt bleibt. Der Nachteil dieser Kontamination ist ein teilweises Unbrauchbarmachen der gemessenen Probenstelle durch einen Kohlenstoffstreifen. Der Vorteil ist die sehr gute Wiedererkennbarkeit der Probenstelle im Nachhinein. Auf diese Weise kann der genaue Messausschnitt auf Übersichtsaufnahmen rekonstruiert werden. Dies gilt ebenso für Dickenmessungen, die typischerweise nach den DPC-Messungen aufgenommen werden. Der Nachteil der verschiedenen Bildausschnitte der beiden Methoden kann so kompensiert werden.

Neben den eigentlichen Messungen kann für jede Probe ein sogenanntes „Leerbild“ aufgezeichnet werden. Es ermöglicht eine Korrektur systematischer Fehler bei der Auswertung. Da die möglichen Fehler bei den verwendeten Vergrößerungen (und somit sehr kleinen örtlichen Variationen des Elektronenstrahls) vernachlässigbar sind, wurden bei der Auswertung Leermessungen nicht berücksichtigt.

#### 2.4.4 Signalauswertung DPC

Zur Berechnung des elektrischen Feldes muss zuerst die Strahlverschiebung aus dem DPC-Signal ermittelt werden. Dazu wird das Differenzsignal gegenüberliegender Segmente berechnet. Entlang der beiden orthogonalen Achsen ergibt sich das Signal für jeden Punkt  $x$  zu:

$$\text{Signal}_{12-6}(x) = \text{Signal}_{12}(x) - \text{Signal}_6(x) \quad (2.8a)$$

$$\text{Signal}_{3-9}(x) = \text{Signal}_3(x) - \text{Signal}_9(x) \quad (2.8b)$$

Weiterhin besteht die Möglichkeit, die Daten auf ein um  $45^\circ$  gedrehtes Koordinatensystem zu projizieren. Dazu werden die Summen zweier jeweils aneinander stoßender Segmente von den ihnen gegenüberliegenden abgezogen. Die Normierung ergibt sich durch die Anforderung, die Länge der Feldvektoren konstant zu halten:

$$\text{Signal}_{(12+3)-(6+9)}(x) = (\text{Signal}_{12+3}(x) - \text{Signal}_{6+9}(x)) / \sqrt{2} \quad (2.9a)$$

$$\text{Signal}_{(3+6)-(9+12)}(x) = (\text{Signal}_{3+6}(x) - \text{Signal}_{9+12}(x)) / \sqrt{2} \quad (2.9b)$$

Diese Berechnung wird durch eine Software übernommen, welche im folgenden Abschnitt beschrieben wird.

## Software

Im Rahmen der technischen Realisierung des DPC-Aufbaus wurde neben der Hardware auch eine passende Software entwickelt [9]. Da allerdings die bisher verwendete, proprietäre Entwicklungsumgebung vom Softwarehersteller nicht weiter unterstützt wurde, wurde eine Neuimplementierung der Aufnahme- und Auswertungssoftware nötig. Die Mess- und Steuersoftware des nachgelagerten PCs und die Software zur späteren Auswertung wurde aus diesem Grund vollständig neu erstellt. Um platform- und herstellerunabhängig zu sein, wurde die Programmiersprache „C++“ in Kombination mit der grafischen Klassenbibliothek „Qt“ gewählt [83]. Die Software des ADC/DAC wurde dabei bis auf technische Optimierungen komplett übernommen.

Die Vorverarbeitung und teilweise Auswertung der Messergebnisse geschieht über eine Auswertungssoftware, welche in zwei Varianten vorliegt:

- Variante eins kann die verschiedenen Bilder direkt als Grafik darstellen, darunter die einzelnen Segmente, die Differenzbilder und das Summensignal. Weiter kann es ein Falschfarbenbild darstellen, in welchem die Strahlablenkung auf Pixelebene visualisiert wird. Dazu wird jedem Bildpunkt die Richtung und Länge des Feldvektors per Farbe und Helligkeit zugewiesen. Die dargestellte Helligkeit sowie deren Kontrastfunktion können ebenso angepasst werden. Es besteht zusätzlich die Möglichkeit, einen Bereich zu wählen, in dem das elektrische Feld null sein muss (zum Beispiel im Vakuum außerhalb der Probe). In dem gewählten Bereich wird der Durchschnittsvektor berechnet und vom gesamten Bild subtrahiert. Dadurch kann ein eventuell vorhandener Offset korrigiert werden. Das so erzeugte Bild kann dann als Grafik und die beiden Differenzdatenfelder „12–6“ und „3–9“ als Textdateien für den Import und die weitere Analyse abgespeichert werden.
- Variante zwei der Auswertungssoftware hat keine direkte grafische Ausgabe. Sie erlaubt hingegen eine Stapelverarbeitung beliebig vieler Messungen und kann, je nach Auswahl, mehrere Operationen durchführen. Sie ermöglicht das Extrahieren der vier Segmente, die Korrektur mit einem Referenzbild (Leermessung), das Bilden der Differenzen gegenüberliegender Segmente (dem gewünschten DPC-Signal), das Berechnen des Summensignals aus allen vier Segmenten und das Abspeichern derselben wiederum als Textdatei. Die Auswertungssoftware kann auf Wunsch auch (durch das Dateiformat bedingt dynamikreduzierte) Vorschaubilder erzeugen und mit den anderen Textdateien abspeichern, welche ein schnelles Auffinden der gewünschten Messungen erlaubt.

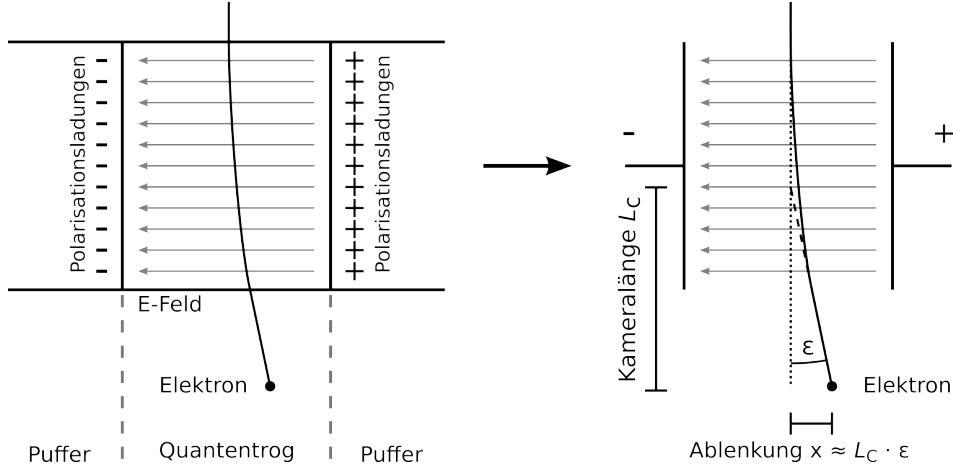
### Datenauswertung

Um aus den berechneten Differenzbildern das elektrische Feld berechnen zu können, muss das Differenzsignal mit der Probendicke korreliert werden. Am besten zu realisieren ist dies über Linienanalysen der verschiedenen Signale, welche aus den verschiedenen Bildern extrahiert werden. Dies lässt sich sehr gut mit dem Programm „ImageJ“ [84] durchführen, da es alle verwendeten Datenformate direkt und mit voller Dynamik einlesen kann. Man umgeht damit die Beschränkung auf 256 Graustufen (8 bit), welche typische Grafikformate wie PNG oder JP(E)G systembedingt haben. Nach dem Einlesen der beiden Differenzbilder „12–6“ und „3–9“ (siehe Abschnitt 2.4.1) und dem Summensignalbild „(3+6+9+12)/4“ aller vier Segmente, welches die Gesamtintensität enthält, werden die Daten an identischen Positionen extrahiert. Zusammen mit der Auswertung der zugehörigen Dickenmessung werden die Daten in ein Analyseprogramm importiert und die Anzahl der Datenpunkte durch Interpolation angeglichen. Darauf aufbauend kann die lokale Feldstärke berechnet werden (siehe Abschnitt 2.4.7). Die dazu nötige Kalibrierung des Aufbaus wird im folgenden Abschnitt beschrieben.

#### 2.4.5 Kalibrierung der elektrischen Feldstärke

Die Kalibrierung des DPC-Versuchsaufbaus wurde von Ralph Schregle im Rahmen seiner Diplomarbeit durchgeführt [85]. Es werden im Folgenden die für diese Arbeit relevanten Schritte erläutert.

Zur Bestimmung innerer elektrischer Felder wird die Ablenkung des Elektronenstrahls mit Hilfe des DPC-Detektors gemessen, welcher dieser in der Probe erfährt. Um den Zusammenhang zwischen Feld und Ablenkung kalibrieren zu können, müssen beide Größen direkt zugänglich sein. Da die Situation innerhalb der Probe durch die ausgedehnten Flächenladungen mit einem Plattenkondensator vergleichbar ist (siehe Abbildung 2.7), wurde ein Mikroskophalter konstruiert, in welchem ein definiertes elektrisches Feld erzeugt und die Reaktion des Elektronenstrahls darauf bestimmt werden kann [85]. Abbildung 2.8 zeigt die technische Zeichnung der Halter spitze. An Stelle einer Probe enthält er einen Kondensator mit zwei Platten mit einer Fläche von  $1 \times 1\text{mm}^2$  und einem Abstand von ebenfalls 1 mm. Sie sind in einen isolierenden Halter eingebettet. Ein Blech oberhalb des isolierenden Halters dient als Strahlschutz. Würde der Elektronenstrahl den Isolator direkt treffen, wären langlebige Aufladungen und somit ein Verfälschen der Messergebnisse die Folge. Die beiden Kupferstücke sind über Drähte an eine Vakuumdurchführung angeschlossen. Dadurch lassen sich mit einem externen Netzteil Spannungen bis mehrere hundert



**Abbildung 2.7:** Vereinfachte Darstellung der Bewegung von Elektronen des TEM-Strahls im Quantentrog bei vorhandenem elektrischen Feld. An den Übergangsbereichen zwischen Puffer und Trog auf der linken Seite werden durch die piezoelektrischen Eigenschaften von GaN Flächenladungen erzeugt. Diese Situation kann durch einen Plattenkondensator vereinfacht dargestellt werden (rechte Seite). Da der Ablenkinkel  $\varepsilon$  im Bereich von Mikro- bis Milliradian liegt, ist das Anwenden der Kleinwinkelnäherung ( $\tan \varepsilon \approx \varepsilon$ ) erlaubt. Für die Ablenkung  $x$  ergibt sich dadurch  $x = L_C \cdot \varepsilon$ . Auf die DPC-Messungen übertragen heißt dies, dass das Messsignal dem Produkt aus Feldstärke und Probendicke proportional ist.

Volt anlegen.

Um die laterale Ablenkung  $x$  des Elektronenstrahls am DPC-Detektor ermitteln zu können, müssen zwei Größen bekannt sein, die Kameralänge  $L_C$  und der Ablenkinkel  $\varepsilon$ . Die Kameralänge bezeichnet dabei den elektronenoptischen Abstand zwischen Probe und Detektor, welcher durch Linsen verändert werden kann, obwohl der reale Abstand konstruktionsbedingt konstant ist. Streng genommen muss die Kameralänge ab dem Punkt gemessen werden, wo der Elektronenstrahl die optische Achse virtuell verlässt. Da sich  $L_C$  jedoch im Bereich von cm bis wenige m bewegt, kann der virtuelle Ausgangspunkt der Ablenkung mit der Probenebene gleichgesetzt werden.  $\varepsilon$  bewegt sich typischerweise im Bereich von Mikro- bis Milliradian, weshalb die Kleinwinkelnäherung  $\tan \varepsilon \approx \varepsilon$  angewendet werden kann. Es ergibt sich daraus der Zusammenhang

$$x \approx L_C \cdot \varepsilon \quad (2.10)$$

Die Ablenkung  $x$  ist über das DPC-Differenzsignal messbar. Mit Kenntnis des

Ablenkwinkels und der Kameralänge kann also bei bekannter Probendicke auf die mittlere Feldstärke geschlossen werden.

Über den Zusammenhang

$$E = \frac{U}{d} \quad (2.11)$$

ergibt sich das Feld, welches den Elektronenstrahl ablenkt. Für einen Abstand von  $d = 1 \text{ mm}$  und eine Spannung von  $100 \text{ V}$  ergibt sich ein elektrisches Feld von  $1 \times 10^5 \text{ V/m}$ . Bei bekannter Stärke  $|E|$  und durchstrahlter Länge  $L$  des Feldes und des relativistischen Impulses der Elektronen lässt sich der Ablenkinkel zu

$$\varepsilon = \frac{p_x}{p_z} = \frac{e|E|L}{mv^2} \quad (2.12)$$

abschätzen [65]. Dabei werden die Impulskomponenten in Richtung des Elektronenstrahls  $p_z = mv$  und in Feldrichtung  $p_x = e|E|L/v$  benutzt. Aufgrund der sehr geringen absoluten wie relativen Änderungen von  $p_x$  gegenüber  $p_z$  wird Letzteres als konstant angenommen.

Auf gleiche Weise kann ein Zusammenhang mit magnetischen statt elektrischen Feldern hergestellt werden. Er ergibt sich zu

$$\varepsilon = \frac{p_x}{p_z} = \frac{e|B|L}{mv} \quad (2.13)$$

mit der magnetischen Induktion  $B$  [65]. Für magnetische Felder wurde das Detektionslimit des DPC-Systems zu

$$\Delta B \cdot L = (2,5 \pm 0,5) \times 10^{-9} \text{ T} \cdot \text{m} \quad (2.14)$$

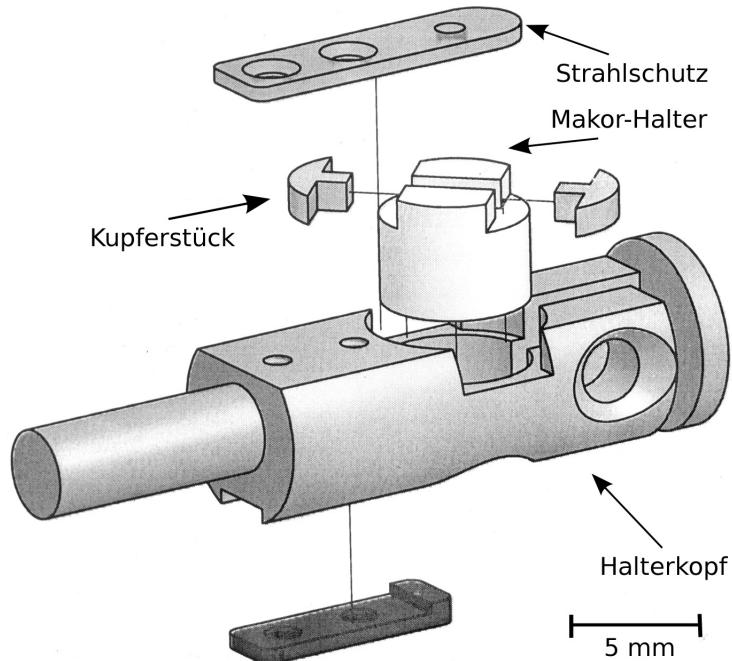
und der zugehörige minimale Ablenkinkel zu

$$\varepsilon = (1,8 \pm 0,4) \times 10^{-6} \text{ rad} \quad (2.15)$$

bestimmt [9]. Mit Gleichung (2.12) kann eine Abschätzung für die Empfindlichkeit der Messung elektrischer Felder getroffen werden. Mit dem Resultat von Gleichung (2.15),  $m = 1,44 \times 10^{-30} \text{ kg}$ ,  $v = 2,33 \times 10^8 \text{ m s}^{-1}$  und  $e = 1,6 \times 10^{-19} \text{ A s}$  resultiert ein Wert von:

$$\Delta E_{\min}^{\text{Abschätzung}} \cdot L = (8,8 \pm 1,9) \times 10^{-1} \frac{\text{V}}{\text{m}} \text{m} \quad (2.16)$$

Bei Annahme einer typischen Probendicke von  $L = 100 \text{ nm}$  (was der durchstrahlten Länge entspricht) ergibt sich so ein (unteres) Detektionslimit für das in der Probe



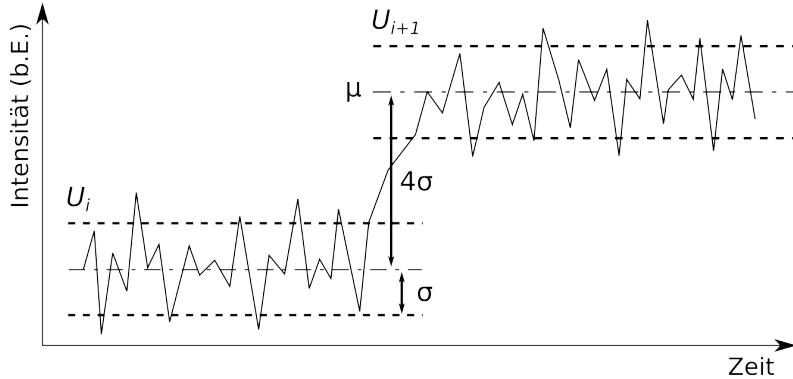
**Abbildung 2.8:** Technische Zeichnung des Mikroskophalters, der speziell für die Kalibrierung des DPC-Systems entwickelt und gefertigt wurde. Anstatt einer Probe enthält er einen Kondensator aus Kupferplatten mit einer Fläche von  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  und einem Abstand von ebenfalls 1 mm. Diese werden durch einen isolierenden und drehbaren Halter festgehalten. Das Strahlschutzblech verhindert langlebige Aufladungen des Isolators, welche aus dem direkten Auftreffen von Strahlelektronen resultieren. Die Kupferstücke sind über Drähte, welche im Inneren des Halters durchgeführt werden, an eine externe Spannungsquelle angeschlossen. Dadurch lassen sich Spannungen bis mehrere hundert Volt und somit ein definiertes elektrisches Feld anlegen (Abbildung aus [85]).

vorhandene elektrische Feld von:

$$\Delta E_{\min}^{100 \text{ nm}} \approx 9 \times 10^6 \frac{\text{V}}{\text{m}} = 9 \frac{\text{MV}}{\text{m}} \quad (2.17)$$

Aus Gleichung (2.16) folgt weiterhin diejenige Spannung, welche mindestens nötig ist, um bei Benutzung des Kalibrierhalters die Mindestablenkung zu erreichen. In diesem Fall ergibt sich mit der „Dicke“ des Kondensators  $L = 1 \text{ mm}$  eine Spannung von knapp einem Volt.

Zur Kalibrierung wurden Serien von Spannungsschritten unterschiedlicher Grö-



**Abbildung 2.9:** Kriterium für die Kalibrierung des DPC-Messaufbaus. Für jeden extern angelegten Spannungswert  $U_i$  wurde eine Reihe von Messpunkten aufgenommen und deren Mittelwert  $\mu$  sowie die Standardabweichung  $\sigma$  berechnet. Als Kriterium für die Unterscheidbarkeit zweier Spannungswerte  $U_i$  und  $U_{i+1}$  wurde eine Differenz von  $4\sigma$  festgelegt.

ße gemessen. Für jeden extern angelegten Spannungswert  $U_i$  wurde eine Reihe von Messpunkten aufgenommen und der Mittelwert und die Standardabweichung berechnet. Als Kriterium für die Unterscheidung zweier Messwerte  $U_i$  und  $U_{i+1}$  wurde darauf basierend ein Kriterium von  $4\sigma$  festgelegt. Abbildung 2.9 skizziert den Ausschnitt einer Messung schematisch.

Diejenige Messung, deren Spannungsschritte das Kriterium gerade erfüllen, wurde zur Festlegung der unteren Auflösung verwendet. Über den Zusammenhang zwischen angelegter Spannung am Kalibrierhalter und elektrischem Feld in Verbindung mit den geometrischen Eigenschaften des Kalibrierhalters (Plattenabstand und durchstrahlte Länge  $L = d = 1 \text{ mm}$ ) ergibt sich in Übereinstimmung mit Gleichung (2.16) für die Auflösungsgrenze ein Wert von:

$$\Delta E_{\min}^{\text{Experiment}} \cdot L = \frac{\Delta U_{\min}}{d} \cdot L \stackrel{L=d}{=} \Delta U_{\min} = (6,4 \pm 1,5) \times 10^{-1} \text{ V} \quad (2.18)$$

Das Ergebnis der Kalibrierung in Einheiten der Differenz des DPC-Signals resultiert in:

$$\Delta E^{\text{Experiment}} = \frac{\Delta I_{\text{DPC-Signal}}}{42 \cdot L} \left( \frac{\text{V}}{\text{m}} \right) \quad (2.19)$$

Dieses Resultat beschreibt die Situation bei Verwendung des Kalibrierhalters. Für die experimentelle Bestimmung der elektrischen Feldstärke sind weitere Korrekturfaktoren nötig, welche die Wechselwirkungen bei Messungen von realen Proben

berücksichtigen. Diese werden im folgenden Abschnitt beschrieben.

#### 2.4.6 Normierung des DPC-Signals

Neben dem in Abschnitt 2.3.1 beschriebenen Effekt, welchen die lokale Probendicke auf das Messsignal hat, müssen zur quantitativen Bestimmung der Feldstärke zwei weitere Faktoren berücksichtigt werden. Diese sind die Gesamtintensität des DPC-Signals und die Gesamtverstärkung der benutzten Verstärkerkette.

Bei gleichförmiger Beleuchtung der Segmente ist das DPC-Signal unempfindlich auf Helligkeitsschwankungen. Verdoppeln sich die Intensitäten zweier gegenüberliegender Segmente (zum Beispiel die Segmente „12“ und „6“) homogen, so wird das Differenzsignal dadurch nicht beeinflusst, da mit einer angenommenen Intensität  $I_{12} = I_6$  für jeden Messpunkt folgt:

$$I_{12} - I_6 = \Delta I_{12-6} = 0 \quad (2.20a)$$

$$2I_{12} - 2I_6 = 2\Delta I_{12-6} = 0 \quad (2.20b)$$

Ist andererseits durch das Vorhandensein eines Feldes der Strahl aus dem Zentrum des Detektors verschoben, so misst man die gewünschte Signaldifferenz. Diese ist jedoch zusätzlich von der Gesamtintensität abhängig. Für angenommene Intensitäten von  $I_{12} = 10\,000$  und  $I_6 = 9\,000$  ergibt sich:

$$I_{12} - I_6 = \Delta I_{12-6} = 1000 \quad (2.21a)$$

$$2I_{12} - 2I_6 = 2\Delta I_{12-6} = 2000 \quad (2.21b)$$

Neben der Differenz muss daher auch die Gesamtintensität und somit die Summe der vier Segmente in der Berechnung berücksichtigt werden. Die Intensität, die sich bei der Kalibriermessung ergab, wird dazu als Referenz verwendet:

$$I_{\text{Referenz}} = 38\,225 \quad (2.22)$$

Der Wert stellt das (normierte) Rohsignal des Digital-Analog-Konverters (16 bit) dar. Durch den stationären Strahl und die bei der Kalibrierung nicht vorhandene Probe ist dieser Wert konstant. Da bei steigender Helligkeit das Differenzsignal ansteigt und umgekehrt, geht die experimentelle Gesamtintensität indirekt proportional in die Berechnung ein. Es ergibt sich als Korrekturfaktor somit

$$\frac{I_{\text{Referenz}}}{I_{\text{Experiment}}(x)} = \frac{38\,225}{I_{\text{Experiment}}(x)} \quad (2.23)$$

mit der Gesamtintensität  $I_{\text{Experiment}}(x)$  der jeweiligen Messung. Diese ist im Gegensatz zu  $I_{\text{Referenz}}$  vom Ort abhängig, da sich die Intensität durch die schwankende Dicke und weitere Materialeigenschaften während der Messung im Allgemeinen ändert.

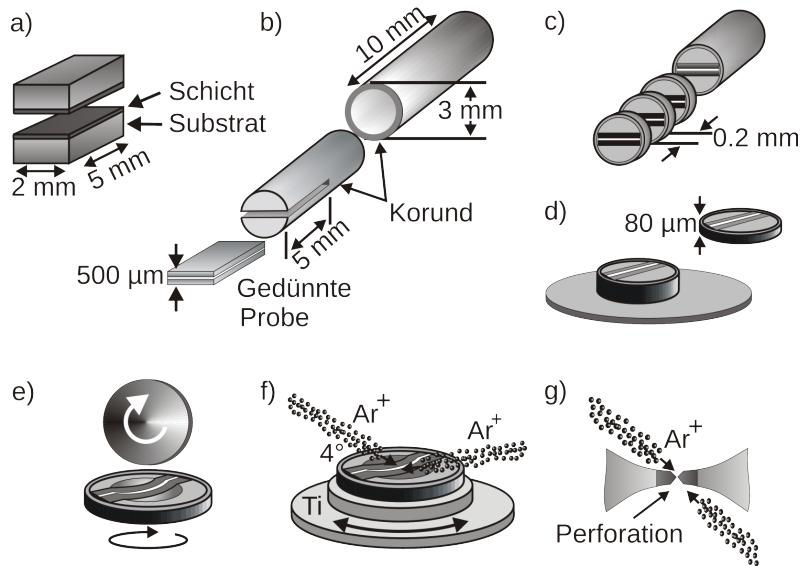
Neben der Normierung der Gesamtintensität ist weiterhin eine Normierung bezüglich der Verstärkung nötig. Um auf wechselnde Signalstärken bei unterschiedlichen Proben beziehungsweise Probenbereichen reagieren zu können, kann die Gesamtverstärkung in vier festen Stufen eingestellt werden. Es werden typischerweise zwei Stufen benutzt (Stufen „2“ und „3“ laut Geräteoption). Sie unterscheiden sich um einen Faktor von etwa 10. Diese Dynamik deckt die Anforderungen aller bisher gemessener Proben ab. Die in Abschnitt 2.4.5 beschriebene Kalibrierung des DPC-Aufbaus wurde mit der Stufe „2“ durchgeführt. In diesem Fall wurde die Strahlintensität nicht verringert. Bei den Messungen von realen Proben hingegen muss das Signal normalerweise mehr verstärkt werden, weshalb auch Stufe „3“ eingesetzt wird. Es ist also nötig, den Umrechnungsfaktor zwischen beiden Stufen zu bestimmen. Eine detaillierte Beschreibung mit Fehlerbetrachtung ist in Abschnitt 5.3 zu finden.

#### 2.4.7 Berechnung der lokalen Feldstärke

Zur expliziten Berechnung der elektrischen Felder werden die vorangegangenen Ergebnisse zusammengefasst. Es ergibt sich folgender Ausdruck:

$$\Delta E = \frac{\Delta I_{\text{DPC-Signal}}}{42} \frac{1}{t_{\text{Probe}}} \frac{1}{\alpha_{\text{Verstärker}}} \frac{I_{\text{Referenz}}}{I_{\text{DPC-Signal}}} \left( \frac{\text{V}}{\text{m}} \right) \quad (2.24)$$

$\Delta I_{\text{DPC-Signal}}$  bezeichnet dabei die Signaldifferenz einer DPC-Messung. Um das Signal besser interpretieren zu können, werden nicht die beiden Richtungen „12–6“ und „3–9“ dargestellt, sondern wird das Signal in Polarkoordinaten „R–Φ“ umgerechnet. Es wird in den Grafiken im Folgenden dabei nur die Amplitude R des DPC-Signals beziehungsweise das daraus berechnete elektrische Feld dargestellt. Da die Felder ausschließlich entlang der c-Achse auftreten, wird die Phase nicht betrachtet [37, 47–49, 86, 87]. Experimentell wird bei der Probenpräparation und dem Einbau ins Mikroskop sichergestellt, dass durch die Orientierung der Probe der Elektronenstrahl senkrecht zur Feldrichtung steht (vergleiche Abbildung 2.7). Die Auswertung der Feldstärke erfolgt als Differenz zwischen Bereichen mit (erwartetem) und ohne Feld.



**Abbildung 2.10:** Beschreibung der konventionellen Probenpräparation einer Querschnittsprobe. Zwei  $2 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$  große Waferstücke werden mit den zu untersuchenden Schichten aufeinandergeklebt (a), auf  $0,5 \text{ mm}$  gedünnt und in einen Kupfer- oder Korund-Zylinder eingeklebt (b). Die aus diesem Zylinder gesägten Scheiben (c) werden erst plan auf  $80 \mu\text{m}$  (d), dann in Form einer Mulde auf  $20 \mu\text{m}$  geschliffen (e). Abschließend entsteht durch den Beschuss von Argon-Ionen das Loch (f, g), an dessen Rändern die Probe elektronentransparent ist (Abbildung aus [88]).

## 2.5 Probenpräparation

Die vorliegenden Proben wurden alle quer zur Wachstumsrichtung präpariert. Durch diese Vorgehensweise erhält man Proben, bei denen man die zu untersuchenden Strukturen beziehungsweise Schichtfolgen senkrecht zur Wachstumsrichtung (also von der Seite) betrachten kann. Dazu werden zwei ca.  $2 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$  große Teile des zu präparierenden Wafers mit einer Diamantdrahtsäge ausgesägt (Abbildung 2.10a). Dabei werden die Streifen so ausgeschnitten, dass sie je einmal entlang der gebräuchlichen  $[11\bar{2}0]$ - beziehungsweise a- und  $[10\bar{1}0]$ - beziehungsweise m-Richtung verlaufen. Dies hat später den Vorteil, dass man die Probe entlang der beiden Kristallachsen im Mikroskop ausrichten kann. Für die Kalibrierung der Probendicke ist dies sogar essentiell, da die Simulation aktuell nur Daten für die „a“-Richtung beinhaltet (siehe Abschnitt 4.3.3).

Die beiden Waferstücke werden mit den zu untersuchenden Seiten aneinander

geklebt. Nach dem Dünnen des so entstandenen Stapels auf etwa 0,5 mm wird dieser in einen Kupfer- oder Korund-Zylinder ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) eingeklebt (Abbildung 2.10b). Die daraus gesägten, ca. 200  $\mu\text{m}$  dicken Scheiben, werden weiter auf 80  $\mu\text{m}$  gedünnt (Abbildungen 2.10c und d). Schlussendlich wird die Probe von beiden Seiten zuerst mit einem Muldenschleifer geschliffen (Abbildung 2.10e) und dann mit Argon-Ionen trockengeätzt (Abbildung 2.10f) bis ein Loch entstanden ist (Abbildung 2.10g). An den Rändern dieses Lochs ist die Probe dann dünn genug, um elektronentransparent zu sein (üblicherweise zwischen 10 nm und 150 nm).

Diese als „konventionelle Präparation“ bezeichnete Vorgehensweise dauert etwa eine Woche. Nichtsdestotrotz hat sie gegenüber anderen, oft schnelleren Methoden, wie zum Beispiel dem Ionenstrahlschneiden („Focused Ion Beam“ – FIB), Vorteile. Dazu gehören neben einer auch im Bereich von wenigen Nanometern weitgehend ebenen Oberfläche ein geringer Grad an Oberflächenamorphisierung (je nach Beschleunigungsspannung beim Ionensätzen im Bereich von 2 nm bis 25 nm [28, 89]). Diese führt zu Veränderungen der Kristallstruktur und somit zu einem möglichen Verfälschen der Messergebnisse. Aus diesem Grund wird die aufwendige Prozedur allgemein trotzdem oft bevorzugt.

## 3 Materialsystem

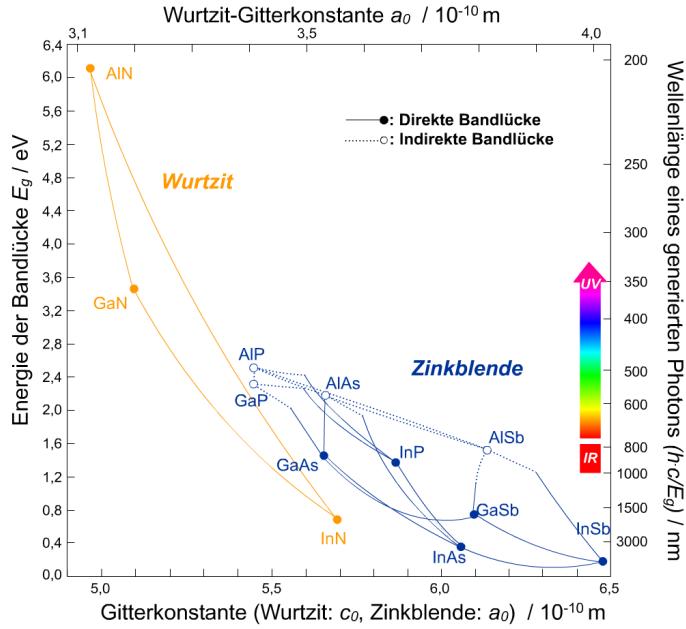
Alle in der vorliegenden Arbeit untersuchten Proben basieren auf den Elementen Aluminium, Gallium und Indium (Gruppe III im Periodensystem) in Verbindungen mit Stickstoff (Gruppe V). Da Stickstoff in allen Verbindungen vorhanden ist, nennt man Materialien aus beliebigen Kombinationen dieser Elemente auch „Gruppe-III-Nitride“. In diesem Abschnitt wird das Materialsystem mit seinen relevanten Eigenschaften vorgestellt und das Entstehen der zu messenden Effekte beschrieben. Auf die allgemeinen Grundlagen der Festkörper- und Halbleiterphysik soll jedoch nicht eingegangen werden, da sich viele Bücher diesem Thema ausführlich und umfassend widmen (siehe zum Beispiel [91–93]). Einen breiten Überblick über die wichtigsten Eigenschaften von GaN-basierten Halbleiterstrukturen bieten neben den Übersichtsartikeln von Jain [36] und Feneberg [41] die Bücher von Schubert [39] und Piprek [40].

Gruppe-III-Nitride haben halbleitende Eigenschaften und werden seit Mitte der 1990er Jahre intensiv erforscht. Sie sind auch aktuell noch Forschungsschwerpunkt im Bereich von Leucht- und Laserdioden [20, 24, 29, 35–38, 42–46, 53, 57, 58, 77, 94–96]. Durch eine geeignete Mischung der Elemente Al, Ga und In können wichtige Eigenschaften des Materialsystems beeinflusst werden. Einer der entscheidenden Parameter ist dabei die Bandlückenenergie. Sie definiert die Energie, welche Elektronen bei der Rekombination vom Leitungs- ins Valenzband abgeben und bestimmt damit die Wellenlänge des emittierten Lichts. Da die Energielücke von AlN bei etwa 6,2 eV, die von InN hingegen bei ca. 0,7 eV liegt<sup>1</sup> [40, 42, 97] (siehe Tabelle 3.1), kann – zumindest theoretisch – jeder Zwischenwert eingestellt werden. Dadurch kann der gesamte sichtbare Spektralbereich abgedeckt werden, was dieses Materialsystem für optische Anwendung im sichtbaren Bereich äußerst interessant macht. Abbildung 3.1 zeigt eine Übersicht der wichtigsten Verbindungen.

Galliumnitrid wurde erstmals erfolgreich im Jahr 1938 synthetisiert [36]. Es konnten kleine Kristallnadeln durch das Vorbeileiten von Ammoniak an heißem Gallium erzeugt werden. Bis zu einer kommerziellen Verwendbarkeit dauerte es

---

<sup>1</sup>Nach jahrelangen, kontroversen Diskussionen über die Bandlückenenergie ist der Wert von 0,69 eV inzwischen allgemeiner Konsens.



**Abbildung 3.1:** Übersicht über die elektrischen Eigenschaften und die Kristallgeometrie einiger geläufiger III-V-Halbleiter. Die ternären Verbindungen, welche auf AlN, GaN und InN basieren, decken in der Wurtzitstruktur den sichtbaren Spektralbereich vollständig ab. Zusätzlich haben sie eine direkte Bandlücke, was für optische Anwendungen von Vorteil ist. Im Gegensatz dazu erreichen III-V-Verbindungen in Zinkblendestruktur nur den grünen Spektralbereich (Abbildung aus [90]).

jedoch weitere 30 Jahre. Erste zusammenhängende Schichten konnten 1969 auf Saphirsubstrat abgeschieden werden [39]. Es wurde ein Fremdsubstrat als Grundlage gewählt, da GaN nicht in den benötigten Mengen und Qualität verfügbar war. Die Haupteinschränkung dabei ist die unterschiedliche Gitterkonstante von GaN und dem verwendeten Substrat. Sind sie nicht annähernd identisch, führt dies zu Verspannungen und somit Veränderungen von Materialeigenschaften. So war durch die große Gitterfehlanpassung die Kristallqualität des aufgewachsenen GaN so gering, dass optische und elektrische Messungen weder sinnvoll noch reproduzierbar waren. Erst 1983 konnte dieses Problem gelöst werden [14].

Um das Anwachsen von GaN auf Saphir zu erleichtern, wird zwischen dem Substrat und dem nachfolgenden GaN eine Aluminiumnitrid-Pufferschicht (AlN) von typischerweise 10 nm bis 20 nm aufgewachsen. Auf die AlN-Schicht folgt eine üblicherweise 1 µm bis 3 µm dicke Volumenschicht aus GaN, welche die Kristallqualität

durch Verringerung der Versetzungsichte verbessern soll. Auf diese Schicht wird schlussendlich die gewünschte, optisch aktive Struktur aufgewachsen. Dieser zweistufige Wachstumsprozess verbessert die Qualität der nachfolgenden GaN-Schicht maßgeblich [14]. Eine letzte große Hürde auf dem Weg zur Verwirklichung von Anwendungen war das erfolgreiche Realisieren p-aktiver Leitfähigkeit Ende der 80er Jahre [36]. Damit wurde das Material auch für industrielle Produkte interessant. Durch die Dotierung, welche mit Silizium n-aktive, mit Magnesium p-aktive Leitfähigkeit ermöglicht, können die elektronischen (und oft auch optischen Eigenschaften) wie Bandstruktur, Ladungsträgerdichte, Leitfähigkeit, Abschirmung, etc. beeinflusst werden [40].

Trotz der relativ großen Gitterfehlanpassung zwischen Saphir und GaN von ca. 14 % [96, 98] und den daraus resultierenden Problemen wie zum Beispiel die oft hohe Dichte an Gitterfehlern, ist es eines der wichtigsten Substratmaterialien. Dies liegt vor allem daran, dass ein direktes GaN-Substrat bisher weder in benötigter Qualität noch Menge produziert werden kann und an der guten Verfügbarkeit und Qualität von Saphir auch in großen Mengen bei geringen Kosten. Darüber hinaus ist Saphir thermisch und mechanisch sehr stabil und es man konnte in der Vergangenheit mit diesem Material viel Erfahrung sammeln [36]. Ein direktes GaN-Substrat ist bisher in benötigter Qualität und Menge kaum erhältlich und der Preis für die Massenproduktion immer noch zu hoch.

### 3.1 Gruppe-III-Nitride

Bestimmte Eigenschaft der Gruppe-III-Nitride qualifizieren diese insbesondere für optische Anwendungen. Sie können höheren Temperaturen und Leistungen ausgesetzt werden als andere Halbleiter [36] und haben eine große (direkte) Energielücke für blaue und grüne Emittoren, welche durch passende Mischung beliebig verändert werden kann. Alle Mischungen aus Al, Ga und In mit N haben halbleitende Eigenschaften und eignen sich deshalb auch in Kombination zum Wachstum von Strukturen, welche in einer oder mehreren Dimensionen eingeschränkt sind. Die aktuell am intensivsten erforschten Kombinationen sind Puffer aus AlGaN mit GaN-Quantentrögen und Puffer aus GaN mit InGaN-Trögen. In dieser Arbeit wurden Schichten der zweiten Gruppe untersucht.

Ganz allgemein dienen Quantentrogstrukturen dazu, örtliche wie energetische Charakteristika kontrollieren zu können und somit elektrische und optische Eigenschaften festzulegen. Zum einen können dazu die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten von Ladungsträgern auf örtlich definierte Bereiche eingeschränkt werden, wodurch

**Tabelle 3.1:** Wichtige Eigenschaften gängiger Gruppe-III-Nitride [40, 42, 97]. Dabei bezeichnen  $a$  und  $c$  die Gitterkonstanten in der  $c$ -Ebene und dazu senkrecht,  $E_{\text{Gap}}$  die Bandlückenenergie und  $\lambda$  die zugehörige Emissionswellenlänge.

| Verbindung | $a$ (nm) | $c$ (nm) | $E_{\text{Gap}}$ (eV) | $\lambda$ (nm) |
|------------|----------|----------|-----------------------|----------------|
| AlN        | 0,311    | 0,498    | 6,2                   | 200            |
| GaN        | 0,319    | 0,519    | 3,4                   | 365            |
| InN        | 0,354    | 0,571    | 0,69                  | 1771           |

sich Parameter wie Stromdichte oder -pfade kontrollieren lassen. Zum anderen können durch das Einstellen der Energieniveaus in Form der Materialzusammensetzung (führt zur Energiefülle der Tröge) und Trögbreite (führt durch die Form eines Potentialtopfs zur Quantisierung der Energiezustände innerhalb des Trogs) die optischen Eigenschaften beeinflusst werden. Quantentröge stellen dabei zweidimensionale Strukturen dar. Eine noch größere Einschränkung erreicht man mit Quantendrähten (eindimensional) und Quantenpunkten (nulldimensional). In dieser Arbeit werden nur Quantentröge betrachtet.

Die wichtigsten Eigenschaften der drei binären Verbindungen AlN, GaN und InN sind in Tabelle 3.1 dargestellt. Da GaN und InN den sichtbaren Spektralbereich einfassen, lässt sich mit der ternären Verbindung  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  mit  $x \in [0; 1]$  die Emissionswellenlänge (zumindest theoretisch) beliebig im Bereich von etwa 365 nm bis 1800 nm einstellen. Wird auch AlN hinzugezogen, kann der Bereich auch ins Ultraviolette erweitert werden. Wie jedoch auch aus den Werten in Tabelle 3.1 ersichtlich wird, verändert sich durch das Einbringen von In die Gitterkonstante deutlich. Dies führt zu Komplikationen, welche im Abschnitt 3.3 diskutiert werden. Das System AlN/AlInN wird für Ultraviolett-Anwendungen eingesetzt, weshalb hier nicht weiter darauf eingegangen wird.

Die Energiefülle  $E_{\text{Gap}}$  und die Wellenlänge  $\lambda$  des von einem Quantentrog emittierten Lichts hängen über

$$E_{\text{Gap}} = \frac{hc}{\lambda} \quad (3.1)$$

mit dem Planckschen Wirkungsquantum  $h$  und der Lichtgeschwindigkeit  $c$  zusammen. Über Formel  $\lambda = c/\nu$  mit der Frequenz  $\nu$  lassen sich Bandlückenenergie, Wellenlänge und Frequenz der Struktur in Zusammenhang bringen. Andererseits kann die Energiefülle auch über die genaue Zusammensetzung und somit anhängig vom In-Anteil  $x$  der Verbindung bestimmt werden. Beim verwendeten Materialsystem

lässt sie sich über den Zusammenhang

$$E_{\text{Gap}}(x) = 3,5 - 2,63x + 1,02x^2 \quad (3.2)$$

bestimmen [36], wobei  $x$  den In-Anteil bezeichnet.

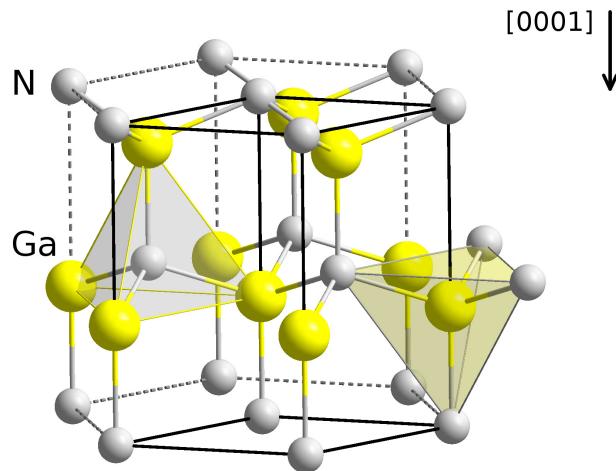
Eigenheiten des hexagonalen Kristallsystems GaN/InGaN beeinflussen jedoch die experimentell beobachteten Emissionswellenlängen zum Teil erheblich. Für Anwendungen ist diese Eigenschaft jedoch maßgeblich, weshalb auf die Einflussfaktoren im folgenden Abschnitt eingegangen werden soll.

## 3.2 Kristallstruktur

Die Gruppe-III-Nitride kristallisieren normalerweise in der Wurtzitstruktur. Unter bestimmten Bedingungen kann auch eine kubische Phase auftreten, welche jedoch nicht diskutiert werden soll. Wurtzit besitzt Eigenschaften, welche die optischen und elektrischen Eigenschaften deutlich beeinflussen und daher im Folgenden erläutert werden sollen. GaN gehört strukturell zur sogenannten Wurtzit-Raumgruppe „P6<sub>3</sub>mc“ und hat eine ausgezeichnete Kristallrichtung, welche als „c“-Achse ([0001]-Richtung) definiert ist. Die senkrecht dazu orientierte Ebene besitzt eine sechszählige Symmetrie. Durch die zweiatomige Basis ergibt sich die systematische Bezeichnung für das Kristallsystem zu „dihexagonal-pyramidal“ [91, 99] (vergleiche Abbildung 3.2).

Beim untersuchten GaN besteht die Basis aus zwei Atomen – Gallium und Stickstoff. Diese werden im Kristall in Form der dichtesten Kugelpackung angeordnet. In Abhängigkeit von der Stapelfolge der Ebenen ergeben sich unterschiedliche Strukturen. Bei der vom Diamant abgeleiteten Zinkblendestruktur ergeben sich verschobene, aber identische Schichten, die in [111]-Richtung orientiert sind. Im Gegensatz dazu unterscheiden sich bei Wurtzit benachbarte Schichten (in c-Richtung) durch eine Drehung um 180° voneinander [101]. Dies hat zur Folge, dass ein kubischer (Beispiel GaAs) oder hexagonaler (Beispiel GaN) Kristall entsteht. In den jeweiligen Ebenen senkrecht zur [111]-beziehungsweise [0001]-Richtung ergeben sich dadurch monoelementare Lagen.

Die nächsten Nachbaratome befinden sich aufgrund der  $sp^3$ -Hybridisierung der Elektronenorbitale in den Ecken eines Tetraeders. Eine Richtung (die c-Richtung) zeichnet sich dadurch aus, dass eine der tetraedrischen Bindungen parallel zu einer der drei Raumrichtungen ist. Die tetraedrischen Bindungen zerstören die Inversionssymmetrie des Kristalls, da die Kristallebenen entlang der c-Richtung paarweise abwechselnde Abstände haben (siehe Abbildung 3.2). (Diese Symmetriebrechung ist



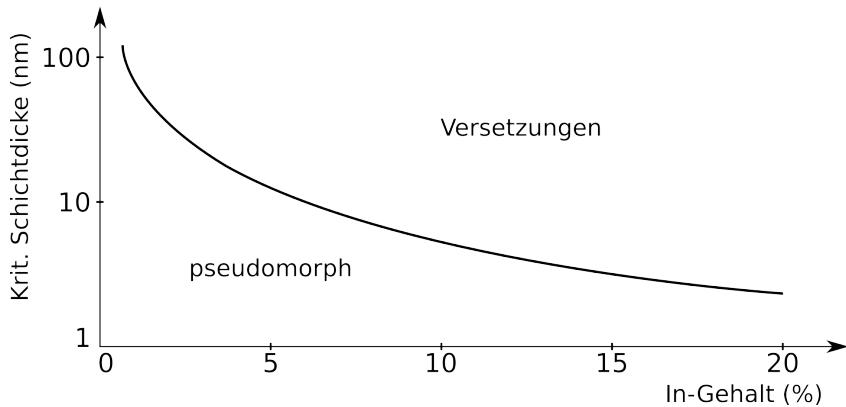
**Abbildung 3.2:** Darstellung der Kristallstruktur von GaN. Die größeren Galliumatome sind gelb dargestellt, die kleineren Stickstoffatome grau. Sowohl die tetraedrischen Bindungen als auch die Abfolge von monoelementaren Ebenen ist erkennbar (Abbildung aus [100]).

eine notwendige Bedingung für das Auftreten von Polarisationseffekten.) Durch die wechselnden einfachen und doppelten Abstände der Ebenen kann zusätzlich eine Orientierung bezüglich dieser Richtung festgelegt werden. Da sich in den Ebenen senkrecht zur c-Achse jeweils nur eine Sorte Atome befindet, ergeben sich am Rand des Kristalls in c-Richtung Facetten mit Ga- beziehungsweise N-Abschluss. Sie werden nach dem Typ der Oberflächenatome auch „Ga-“ bzw. „N-face“ genannt<sup>2</sup>. Die (positive) c-Richtung ist Ga-terminiert (siehe zum Beispiel [94]). Makroskopisch ist diese Ladung bei Normalbedingungen an der Oberfläche durch Adsorbate nahezu vollständig abgeschirmt. Nach einer Oberflächenreinigung kann die Ladung jedoch wieder experimentell nachgewiesen werden [51].

### 3.3 Innere Felder

Aufgrund der polaren Bindungen und dem Auftreten von Verspannung durch Einbringen von In in den Kristall treten innere Felder beim Wachsen von Heterostrukturen aufgrund von Partialladungen an den Grenzflächen der Schichten auf. Innerhalb der jeweiligen Schicht kompensieren sich die Partialladungen bei gleichbleibender

<sup>2</sup>engl. „face“ bezeichnet die Oberfläche/Kristallfläche.



**Abbildung 3.3:** Schematischer Verlauf der kritischen Schichtdicke einer auf GaN aufgewachsenen InGaN-Schicht abhängig vom In-Gehalt. Die Linie trennt die beiden Bereiche, in denen pseudomorphes Wachstum möglich ist (unterhalb) beziehungsweise wo mit dem Ausbilden von Versetzungen zu rechnen ist (oberhalb). Durch Versetzungen kann die Verspannung abgebaut werden, welche durch das Einbringen von Indium erzeugt wird (vergleiche zum Beispiel [36, 102–107]).

Zusammensetzung. Existiert aber beispielsweise ein Gradient des In-Gehalts, so treten auch innerhalb einer Schicht Nettoladungen auf. Basierend auf der hexagonalen Kristallsymmetrie und den daraus resultierenden Eigenschaften ergeben sich elektrische Felder, die durch zwei verschiedene Mechanismen zustande kommen. Auf sie wird in diesem Abschnitt genauer eingegangen.

Auf der einen Seite ergibt sich durch die polare Bindung zwischen Ga und N die oben beschriebene partielle Ladungstrennung basierend auf der Trennung von Kern- und Elektronenschwerpunkt. Aufgrund der Unterschiede in den Elektronegativitäten von Ga, In und N (1,81, 1,78 und 3,04 nach Pauling) verschieben sich die Elektronen zu einem Bindungspartner hin – im vorliegenden Fall zum Stickstoff. Die Ladungsschwerpunkte der Elektronen stimmen somit nicht mehr mit denen der Atome überein. Dieser Effekt tritt aufgrund der Kristallsymmetrie entlang der c-Richtung auf und resultiert in einer Verlängerung der Bindung [40]. Dadurch unterscheidet sie sich entlang der c-Richtung von den anderen drei Bindungen. Es entstehen dadurch Ebenen mit abwechselnd positiven und negativen Partialladungen. Diese Asymmetrie beeinflusst auch die Bandstruktur. Im Gegensatz zur ungestörten Situation verändert sich das Valenzband am  $\Gamma$ -Punkt – die dreifache Degeneration spaltet zu einer einfachen und doppelten Degeneration auf [40]. Aus ihr resultiert

die sogenannte spontane Polarisation [17, 22, 43, 47–52].

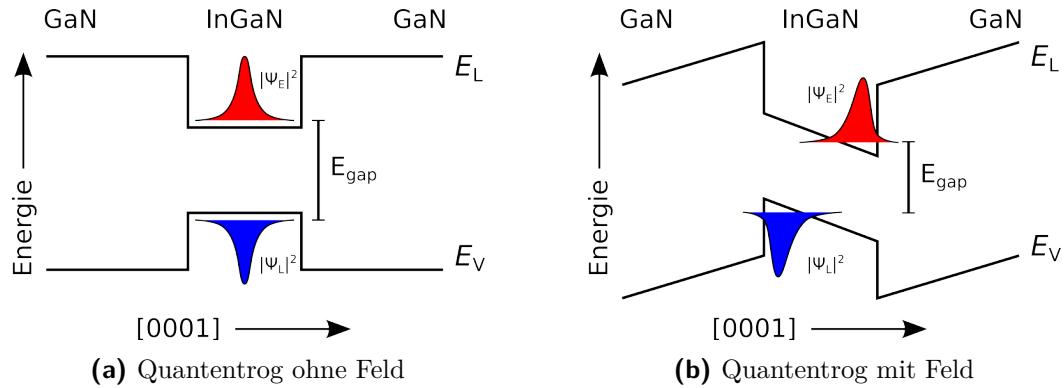
Die spontane Polarisation ist eine Eigenschaft, die nur bei Ferro- und Pyroelektrika auftritt und innerhalb der Gruppe der III-V-Halbleiter nur bei den Nitriden zu beobachten ist. In Ferroelektrika kann die Richtung der Polarisation durch Anwenden eines externen Feldes invertiert und somit gemessen werden. In Pyroelektrika ist dies nicht der Fall, weshalb die spontane Polarisation in diesem Fall nicht auf die gleiche Weise experimentell zugänglich ist. Die Richtung, entlang welcher sich das Feld ausrichtet, ist, wiederum bedingt durch die verringerte Symmetrie, die c-Achse. Sie wird auch „pyroelektrische Achse“ genannt (vergleiche [40]).

Bei Galliumarsenid hingegen, welches in der Zinkblende-Struktur kristallisiert, taucht die spontane Polarisation nicht auf, obwohl sich in beiden Kristallen der nächste Nachbar in den Ecken eines Tetraeders befindet. Der Unterschied besteht in der Stapelfolge der Ebene der übernächsten Nachbarn, welche für Wurtzit im Gegensatz zur Zinkblende-Struktur in c-Richtung um  $60^\circ$  verdreht ist. Es ergibt sich somit für Zinkblende die Stapelfolge „ABCABC“, für Wurtzit hingegen „ABABAB“.

In Strukturen mit reduzierten Dimensionen können jedoch beide Phasen auftreten. Bei GaAs konnte dieser Effekt 2013 nachgewiesen werden. In diesem Fall ergibt sich – wie bei Wurtzit-GaN – spontane Polarisation [23, 108]. Dies konnte im Fall von Nanodrähten eindrucksvoll gezeigt werden [109].

Auf der anderen Seite kommt der piezoelektrischen Polarisation eine tragende Rolle zu [15–17, 19, 26, 27, 32, 33, 41, 43, 45, 47–50, 52–54, 86, 110–112]. Sie ergibt sich aus Verspannungen des Kristallgitters. Wächst man beispielsweise eine InGaN-Schicht auf einen Galliumnitridkristall auf um die Bandlücke darin zu verändern, werden dadurch auch die kristallinen Eigenschaften beeinflusst. Wie in Tabelle 3.1 erkennbar ist, hat InN eine größere Gitterkonstante als GaN. Dies führt im ersten Schritt zur Verspannung der InGaN-Schicht. Unterhalb der sogenannten „kritischen Schichtdicke“ wird die Schicht pseudomorph verspannt und nimmt die Gitterkonstante des Substrats an. In der Ebene (a- und b-Richtung) wird sie biaxial kompressiv verspannt und gleicht die Kompression entlang der c-Achse durch eine größere Gitterkonstante aus [36, 102–107]. Dadurch wird potentielle Energie im Kristall akkumuliert. Sobald das Ausbilden von Kristallfehlern energetisch günstiger wird, werden die Verspannungen über diesen Mechanismus schrittweise relaxiert. Abbildung 3.3 zeigt schematisch die kritische Schichtdicke für eine auf GaN aufgewachsene InGaN-Schicht in Abhängigkeit der eingebrachten In-Menge. Die eingezeichnete Linie trennt die Bereiche, wo pseudomorphes Wachstum stattfindet (unterhalb) und Versetzungen ausgebildet werden (oberhalb).

Um einen möglichst homogenen Kristall zu erhalten, wird pseudomorphes Wachs-



**Abbildung 3.4:** Schematische Darstellung der Auswirkungen des „Quantum Confined Stark Effect“ auf einen InGaN Quantentrog, welcher in GaN eingebettet ist. In Abbildung (a) ist die theoretische Situation ohne jegliche Polarisationsfelder dargestellt. Dabei bezeichnen  $E_L$  und  $E_V$  Leitungs- und Valenzband und  $\Psi_E$  und  $\Psi_L$  die Elektron- und Lochwellenfunktion. Weder Trog noch Puffer sind von Feldern beeinflusst. In Abbildung (b) verbiegen spontane und piezoelektrische Polarisationsfelder die Bänder, was zu einer effektiven, energetischen Absenkung der Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern mit der daraus resultierenden Rotverschiebung der Emissionswellenlänge führt. Ebenso ergibt sich eine örtliche Verschiebung der Wellenfunktionen, welche eine verringerte Übergangswahrscheinlichkeit hervorruft.  $E_{\text{Gap}}$  stellt dabei die effektive Bandlücke dar.

tum bevorzugt. Die Verzerrung des Gitters durch das Einbringen von In werden die auf der Kristallgeometrie basierenden Unterschiede in den Bindungslängen verstärkt. Eine weitere Ladungsverschiebung ist die Folge. Diese ebenfalls entlang der c-Richtung orientierte Verschiebung bewirkt die piezoelektrische Polarisation. Sie überlagert die vorhandene spontane Polarisation und wirkt ihr bei GaN entgegen [16, 51, 87]. Da sich die spontane Polarisation von GaN und InN und somit auch der ternären Verbindung nur sehr wenig unterscheiden, dominiert die piezoelektrische Polarisation das Gesamtfeld [54].

Wie die spontane ist auch die piezoelektrische Polarisation im (homogenen) Volumenmaterial kompensiert, tritt jedoch an Inhomogenitäten in Form von Polarisationsladungen zu Tage. Die Ladungen können beispielsweise an Kristallfehlern oder den gewünschten Übergängen zwischen Quantentrogen und dem umgebenden Puffermaterial auftreten. Zwischen diesen Flächenladungen bilden sich die elektrischen Felder aus, die die gewünschten Quantentrogstrukturen maßgeblich beeinflussen

können. Die Felder führen zu einer Bandverbiegung von Valenz- und Leitungsband, welche ihrerseits die freien Ladungsträger örtlich verschieben. Diese versuchen, die ortsfesten (Kern-)Ladungen abzuschirmen. Dieser Effekt wird „Quantum Confined Stark Effect“ (QCSE) genannt [55]. Ein verbleibendes elektrisches Nettofeld ist die Folge. Es resultieren zwei maßgebliche Folgen: Zum einen werden die Elektronen und Löcher örtlich voneinander getrennt, was eine entsprechende Verschiebung der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten innerhalb des Quantentrogs zur Folge hat. Daraus resultiert eine Verringerung des Überlappintegrals und somit der Wahrscheinlichkeit für einen optischen (strahlenden) Übergang. Durch die erhöhte Lebensdauer der angeregten Zustände können mehr nichtstrahlende Übergänge stattfinden, was die Effizienz der Emission verringert und einen Anteil am sogenannten „Efficiency Droop“ hat [20, 24, 31, 46, 56–58]. Zum anderen resultiert aus der Verkippung der Bänder eine verringerte Bandlücke und Änderungen in den Energieniveaus innerhalb des Quantentrogs. Eine Rotverschiebung der Emissionswellenlänge ist die Folge.

Abbildung 3.4 zeigt die beiden Effekte schematisch. Dabei stellt Abbildung 3.4a den (theoretischen) Fall ohne jegliche Polarisation dar. Sowohl der InGaN Quantentrog als auch das umgebende GaN Puffermaterial sind nicht durch Felder beeinflusst. Die Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern haben ihr Maximum an derselben Stelle (symmetrisch im Zentrum des Quantentrogs), die Bandlückenenergie ist unbeeinflusst. In Abbildung 3.4b ist die Situation skizziert, die durch den QCSE hervorgerufen wird. Die Bandverbiegung im Puffer ist dabei durch die spontane Polarisation, die entgegengesetzte Verbiegung im Quantentrog durch die piezoelektrische Polarisation verursacht (vergleiche [51]). Die Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern werden örtlich getrennt und es ergibt sich eine geringere effektive Bandlücke.

Im Zusammenhang mit regelmäßigen (Multi-)Quantentrogstrukturen muss hinsichtlich der Bandstruktur ein weiterer Effekt beachtet werden, welcher diese inhomogen verändert. Es handelt sich um eine asymmetrische Abschirmung von Polarisationsladungen beim Vorliegen mehrerer Tröge. Es wird erwartet, dass bei einer Dotierung des Volumenmaterials im Gegensatz zu einer Dotierung der Deckenschicht die elektrischen Felder der zuerst gewachsenen („unteren“) Tröge stärker abgeschirmt werden als die oberflächennahen [16]. Die Folge ist eine Abweichung der elektronischen und optischen Eigenschaften der betroffenen Tröge, was sich vor allem in einer zu den restlichen Trögen unterschiedlichen Emissionswellenlänge äußern kann.

Die DPC-Methode erlaubt eine Bestimmung der effektiven Polarisation mit hoher Auflösung sowohl bezüglich des Ortes als auch der Feldstärke. Die neuen Erkenntnisse,

welche dadurch möglich sind, eröffnen vielfältige neue Möglichkeiten. So ist neben einem aus der genauen Kenntnis des Felder resultieren tieferen Verständnis der Materialeigenschaften eine Weiterentwicklung und Optimierung von Anwendungen möglich.



# 4 Experimente

Für die Quantifizierung elektrischer Felder im vorgestellten Materialsystem sind unterschiedliche Messungen nötig. Neben den eigentlichen DPC-Daten müssen auch verschiedene weitere Parameter bestimmt werden. Die Ergebnisse werden in aufsteigender Reihenfolge ihrer Relevanz im Folgenden vorgestellt.

Alle Messungen wurden an einem TEM „Tecnai F30 SuperTwin FEG Regensburg Special“ der Firma FEI durchgeführt. Um sie experimentell nachvollziehen zu können, sind die gewählten Mikroskopparameter in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Die externen Messungen zur Bestimmung der inelastischen mittleren freien Weglänge von GaN (siehe Abschnitt 4.3.2) und die Bestimmung des In-Gehalts zweier Proben (siehe Abschnitt 4.4.2 und Abschnitt 4.5.4) wurden an einem „Titan 80/300 TEM/STEM“ ebenso von der Firma FEI realisiert.

## 4.1 Messung des STEM-Strahldurchmessers

Der Strahldurchmesser ist eine wichtige experimentelle Größe, die eine Bewertung der Messung hinsichtlich ihrer Ortsauflösung erlaubt. Je kleiner das Probenvolumen ist, das mit dem Elektronenstrahl interagiert, desto besser kann das detektierte Signal örtlich lokalisiert werden. Zwar kann der Strahl im zur Verfügung stehenden Mikroskop mit einer Genauigkeit im Bereich von etwa 200 pm positioniert werden, der Strahldurchmesser selbst ist jedoch etwa einen Faktor 5 größer. 2013 liegt er bei aktuellen Geräten bei etwa 80 pm, die Genauigkeit der Positionskontrolle ist dementsprechend größer, was auch Messungen im subatomaren Bereich erlaubt [13]. Aus diesem Grund ist der Strahldurchmesser – interpretiert als die Halbwertsbreite des Intensitätsprofils – zur Beurteilung der Ergebnisse wichtig. Durch sie kann man den Bereich abschätzen, über den integriert wurde, bevor das Signal den Detektor erreicht. Dies ist vor allem für die Bewertung der Ergebnisse in den (in Strahlrichtung) meist nur wenige Nanometer breiten Quantentrogen wichtig. So sollte der Strahldurchmesser zumindest nicht größer sein als die zu beobachtende Struktur, da das Signal sonst nicht mehr ausschließlich dem Quantentrog zugeordnet werden kann.

**Tabelle 4.1:** Experimentelle TEM-Parameter, die bei den Messungen des Strahldurchmessers und des elektrischen Feldes benutzt wurden. Sie lassen teilweise keine direkten Rückschlüsse auf physikalische Größen zu, sind jedoch für die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse relevant. Soweit bekannt werden die physikalischen Größen mit angeführt.

| Parameter               | Wert                     |
|-------------------------|--------------------------|
| Beschleunigungsspannung | 300 keV                  |
| Gun Lens                | „3“                      |
| Spot Size               | „9“                      |
| Kondensor-2-Blende (C2) | „3“ (Durchmesser 100 µm) |
| Strahlmodus             | „Nanoprobe“              |

In idealisierter Betrachtungsweise wird der Elektronenstrahl bei STEM-Messungen als punktförmig angenommen. In der Realität ergibt sich aufgrund von physikalischen Beschränkungen und technischen Unzulänglichkeiten eine endliche Größe des Elektronenstrahls in der Probenebene. In diesem Abschnitt wird das Ergebnis zweier verschiedener Messungen des Durchmessers ohne Probe und die theoretisch erwartete Aufweitung des Strahls in Probe vorgestellt.

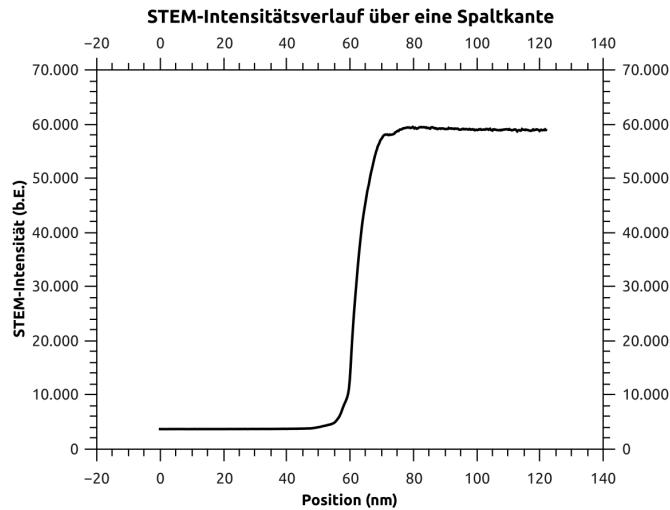
#### 4.1.1 Messung an einer Bruchkante

Die im TEM aufgrund des rotationssymmetrischen Aufbaus von Säule und Blenden erwartete Intensitätsverteilung des Elektronenstrahls folgt der einer Airy-Funktion. Zur Bewertung des Strahldurchmessers wird die Halbwertsbreite („Full Width at Half Maximum“ – FWHM) des zentralen Maximums der Verteilung verwendet. Da schon das erste Nebenmaximum der Funktion um fast zwei Größenordnungen kleiner ist als das Hauptmaximum, genügt es, nur den zentralen Spot zu betrachten. Dieser kann meist durch eine Gauß-Verteilung angenähert werden.

Die Bestimmung des Strahldurchmessers erfolgt im ersten Fall durch Messung des Intensitätsverlaufs beim Rastern des Strahls über eine Probenkante. Um dafür eine möglichst glatte Kante zu erhalten, wurde ein Wafer entlang einer Kristallrichtung gebrochen. Die für die Messung nötige, vollständige Absorption des Elektronenstrahls ist durch die Dicke des Wafers von 350 µm (entspricht etwa der 2500-fachen üblichen Probendicke) hinreichend gut gegeben. Das Ergebnis der Messung ist das Integral der Intensitätsverteilung in Richtung der Abtastzeile.

Um den minimalen Durchmesser sicher bestimmen zu können, wurde eine Kippserie erstellt. Über einen Bereich von 1,4° wurden in 0,1°-Schritten STEM-Bilder der

## 4.1 Messung des STEM-Strahldurchmessers



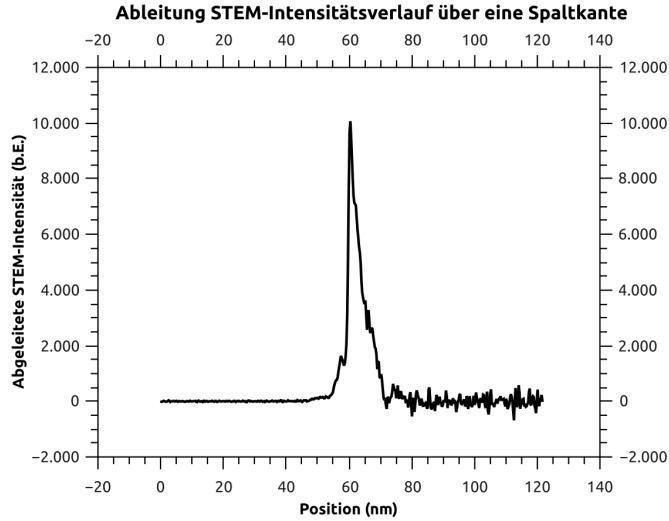
**Abbildung 4.1:** Intensitätsverlauf beim Überfahren einer Spaltkante mit dem STEM-Strahl. Aus dem Verlauf des Intensitätsprofils kann auf den Strahldurchmesser geschlossen werden.

halb in den Sichtbereich ragenden Probenkante aufgenommen. Linienanalysen über die Kante wurden differenziert und die Halbwertsbreite abgelesen. Ein Anfitten der Kurven stellte sich als nicht sinnvoll heraus, da das Signal der Probenkante durch Streueffekte nicht symmetrisch ist. Die Messung des geringsten Durchmessers ist in Abbildung 4.1 dargestellt.

Abbildung 4.2 zeigt das differenzierte Intensitätssignal. Man erkennt sehr gut die asymmetrische Form des Signals. Die linke Flanke des Peaks steigt sehr steil und gleichmäßig an, wohingegen die rechte Seite eine deutliche Verbreiterung und Stufen zeigt. Die asymmetrische Verbreiterung lässt sich auf unregelmäßige Streuung der Strahlelektronen an der Probenkante zurückführen. Das Ergebnis stellt daher eine (großzügige) obere Abschätzung des Strahldurchmessers dar. Die Streuung kann auch die Signalschwankungen ab einer Position von etwa 70 nm erklären. Die Stufen, die an den beiden Flanken des Peaks sichtbar sind, können durch eine nicht perfekt gebrochene Waferkante beziehungsweise Kontamination an selbiger erklärt werden. Sie beeinflussen die Auswertung der Strahlbreite jedoch nicht und können deshalb ignoriert werden. Als Wert für die Halbwertsbreite ergibt sich:

$$FWHM_{\text{Elektronenstrahl, Kante}} = (3,9 \pm 0,1) \text{ nm} \quad (4.1)$$

Der Fehler ergibt sich aus der Ablesegenauigkeit der Halbwertsbreite. Die dabei



**Abbildung 4.2:** Ableitung des Intensitätsverlaufs von Abbildung 4.1. Die asymmetrische Form des Maximums ist sehr deutlich erkennbar. Sie lässt sich auf die asymmetrische Streuung der Strahlelektronen an der Bruchkante zurückführen. Das Ergebnis stellt daher eine großzügige obere Abschätzung des Strahldurchmessers dar.

**Tabelle 4.2:** Mikroskop-Parameter für die Strahlbreitenbestimmung mit Hilfe der CCD-Kamera. Sie unterscheiden sich zum Teil von den in Abschnitt 4.1.1 benutzten Einstellungen (vergleiche Tabelle 4.1).

| Parameter               | Wert         |
|-------------------------|--------------|
| Beschleunigungsspannung | 300 keV      |
| Gun Lens                | „5“          |
| Spot Size               | „5“          |
| Kondensor 2 Blende      | „3“          |
| Strahlmodus             | „Microprobe“ |

benutzten Mikroskopparameter sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst.

### 4.1.2 Messung mit der CCD-Kamera

Neben der im vorigen Abschnitt beschriebenen Methode wurde der Strahldurchmesser gleichzeitig auf eine andere Art und Weise bestimmt [113]. Dazu wurde der Elektronenstrahl direkt auf die CCD-Kamera des Mikroskops gerichtet. Es sind dabei

jedoch Vorsichtsmaßnahmen zu beachten, da das direkte Beleuchten des Sensors neben einer Sättigung beziehungsweise einem Übersprechen von Pixeln auch eine (physikalische) Zerstörung zur Folge haben kann.

Bei den Messungen wurde der Strahl direkt mit der CCD-Kamera aufgezeichnet, der Intensitätsverlauf angefittet und dessen Halbwertsbreite ausgewertet. Sie resultiert in [113]:

$$FWHM_{\text{Elektronenstrahl, CCD}} = (1,7 \pm 0,3) \text{ nm} \quad (4.2)$$

Die verwendeten Parameter sind in Tabelle 4.2 aufgeführt. Da bei dieser Methode der Strahl aufgrund der fehlenden Probe nicht beeinflusst wird, fällt das Ergebnis erwartungsgemäß etwas geringer aus als bei Verwendung der Bruchkante. Die abweichende Einstellung der „Gun Lens“ beeinflusst das Ergebnis nicht, da aus ihm nur ein veränderter Strahlstrom und somit Helligkeit folgt. Einen relevanten Einfluss haben jedoch die Einstellungen für die „Spot Size“ und den Strahlmodus.

Die in diesem Abschnitt benutzten Werte führen prinzipiell zu größeren Strahldurchmessern als die im vorigen Abschnitt. Beide Ergebnisse stellen daher eine obere Abschätzung dar. Durch Veränderungen der beiden Parameter kann also auch das Ergebnis 4.2 noch verbessert werden.

### 4.1.3 Strahlaufweitung durch Wechselwirkung mit der Probe

Für die verwendeten Parameter (siehe Tabelle 4.1) gibt der Hersteller des Mikroskops einen Strahldurchmesser von ca. 1 nm an. Die vorliegenden experimentellen Ergebnisse legen nahe, dass dieser Wert regelmäßig erreicht wird. Für die folgende Abschätzung wird daher angenommen, dass der Elektronenstrahl beim Eintritt in die Probe einen Durchmesser von  $d_{\text{vorher}} = 1 \text{ nm}$  hat.

Trifft ein Elektronenstrahl auf eine Probe, wird er in ihrem Inneren durch Interaktion aufgeweitet. Dieser Effekt ist indirekt proportional zur verwendeten Beschleunigungsspannung und tritt vor allem bei der Elektronenstrahlolithographie im Rasterelektronenmikroskop („Scanning Electron Microscope“ – SEM) auf. Bei den dort verwendeten Spannungen im unteren zweistelligen keV-Bereich muss der Effekt berücksichtigt werden. Da im vorliegenden Fall 300 keV verwendet werden und die Probendicke sehr begrenzt ist, wirkt sich der Effekt deutlich geringer aus. Der aufgeweitete Elektronenstrahl  $d_{\text{nachher}}$  nach Durchstrahlen einer typischen Probe kann über den folgenden Zusammenhang zu

$$d_{\text{nachher}} = 8 \times 10^{-12} \frac{Z}{E_0} N^{\frac{1}{2}} t^{\frac{3}{2}} = 4,78 \text{ nm} \quad (4.3)$$

bestimmt werden [64]. Dabei ist  $Z = 19$  die verwendete chemische Ordnungszahl (wofür der Durchschnitt von Gallium und Stickstoff benutzt wurde),  $E_0 = 300$  keV die Strahlenergie,  $N = 8,9 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$  die Zahl der Atome pro Volumen (aus [114]) und  $t = 100 \text{ nm}$  die Probendicke. Die formale Definition des Strahldurchmessers und somit der Auflösung  $R$  ist durch

$$R = \frac{d_{\text{vorher}} + R_{\text{max}}}{2} = 2,94 \text{ nm} \quad (4.4)$$

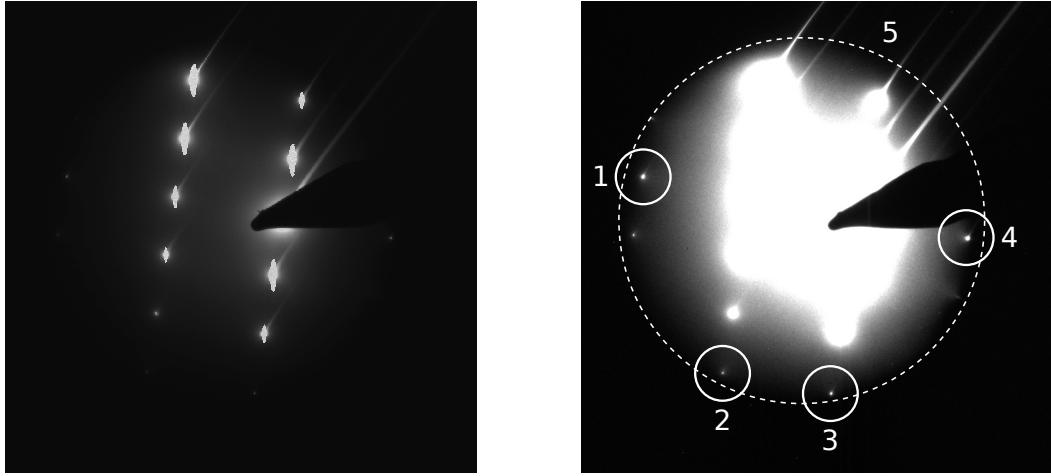
mit  $R_{\text{max}} = \sqrt{d_{\text{vorher}}^2 + d_{\text{nachher}}^2} = 4,88 \text{ nm}$  gegeben [64].  $R$  gibt den Strahldurchmesser an, nachdem die Hälfte der Probe durchstrahlt wurde. Es resultiert somit bei einer GaN-Probe mit einer Dicke von 100 nm eine formale Strahlbreite von knapp 3 nm.

Aus den vorangegangenen Ergebnissen kann also ein Strahldurchmesser vor Eintritt in die Probe von 1 nm angenommen werden. Durch Interaktion mit einer 100 nm dicken Probe wird dieser im Mittel auf etwa 3 nm aufgeweitet. Dieser Wert ist in einem Fall vergleichbar, ansonsten kleiner als die im Folgenden untersuchten Strukturen und erlaubt somit eine lokale Auflösung der zu messenden Felder.

## 4.2 Messung des EELS-Akzeptanzwinkels

Für die Messung der Probendicke wird das Elektronenenergieverlustspektrometer benutzt. Für die Abschätzung der dazu benötigten mittleren inelastischen freien Weglänge (siehe Abschnitt 4.3.3) ist der Akzeptanzwinkel des Spektrometers von grundlegender Bedeutung (siehe Abschnitt 2.3.3), weshalb er bestimmt werden muss.

Für die EELS-Messungen werden üblicherweise nur Elektronen ausgewertet, welche einen begrenzten Streuwinkel haben. Stärker gestreute Elektronen werden ausgeblendet. Dies geschieht über das Einbringen einer Blende, der sogenannten Objektivblende (siehe Tabelle 4.1), zwischen der Probenebene und der unteren Objektivlinse. Diese Blende kann so gewählt werden, dass sie den Streuwinkel im weiteren Verlauf stärker als alle anderen Blenden einschränkt. Dadurch kann man den Akzeptanzwinkel des Spektrometers mit dem Austrittswinkel der Objektivblende gleichsetzen, solange sichergestellt ist, dass die Blende des Spektrometers einen größeren Winkelbereich bei der Messung zulässt. Die Objektivblende definiert somit die bei der Bildentstehung berücksichtigten maximalen Streuwinkel. Diese Vorgehensweise wurde gewählt, da die geometrischen Verhältnisse im Bereich von Probe und Objektivlinse festgelegt sind. Eine geometrische Bestimmung direkt über die Eintrittsblende des Spektrometers erweist sich durch die variable Kameralänge



(a) Beugungsbild mit Originalkontrast

(b) Beugungsbild kontrastverstärkt

**Abbildung 4.3:** Messung des Akzeptanzwinkels des EELS-Systems mit Hilfe des Beugungsbildes eines GaN-Kristalls entlang der  $[11\bar{2}0]$  Richtung mit eingebrachter Objektivblende. In Abbildung a kann man zwei Reihen von Beugungspunkten erkennen. Auf der rechten Seite ist der „Beam Stop“ erkennbar, welcher die Kamera vor der zu hohen Intensität des zentralen Beugungspunktes schützt. In Abbildung b wurde der Kontrast verstärkt. Dadurch kann man vier weitere Beugungspunkte deutlicher erkennen (1 bis 4, durch Kreise markiert). Die Punkte 1 und 4 stellen die gerade noch erkennbaren, waagrechten Beugungsreflexe entlang der  $[10\bar{1}0]$  oder m-Richtung dar, die Punkte 2 und 3 die Reflexe entlang der senkrechten  $[0001]$  oder c-Richtung. Kreis 5 (gestrichelt) deutet die Blende an.

als sehr viel schwieriger und unsicherer.

Abbildung 4.3 zeigt das Beugungsbild eines GaN-Kristalls entlang der  $[11\bar{2}0]$ - oder a-Richtung. In Abbildung 4.3a kann man zwei Reihen von Beugungspunkten erkennen, welche sogenanntes „Blooming“ zeigen. Dabei handelt es sich um den Effekt sättigender und deshalb übersprechender Pixel. Weiterhin erkennbar ist der „Beam Stop“, welcher die Kamera vor der zu hohen Intensität des zentralen Beugungsmaximums schützt sowie die Linien, welche von den Beugungspunkten nach rechts oben reichen. Diese resultieren aus dem Ein- und Ausblenden des Strahls bei der Messung durch den sogenannten „Beam Blanker“. Abbildung 4.3b zeigt dasselbe Bild mit verstärktem Kontrast. Es sind darin vier weitere Beugungspunkte erkennbar (mit „1“ bis „4“ markierte Kreise). Die Punkte 1 und 4 stellen die gerade noch erkennbaren Beugungsreflexe dar, welche entlang der  $[10\bar{1}0]$ - oder m-Richtung liegen.

**Tabelle 4.3:** Experimentelle Daten zur Bestimmung des Akzeptanzwinkels. Die Gitterkonstanten von a- und c-Richtung stammen aus [38], die der m-Richtung und die De-Broglie-Wellenlänge  $\lambda$  wurden berechnet (siehe Text) und die Beugungsordnungen in Abbildung 4.3 abgelesen.

| Parameter                                 | Wert     |
|-------------------------------------------|----------|
| Gitterkonstante a-Richtung $[11\bar{2}0]$ | 0,319 nm |
| Gitterkonstante m-Richtung $[10\bar{1}0]$ | 0,276 nm |
| Gitterkonstante c-Richtung $[0001]$       | 0,519 nm |
| $\lambda_{\text{Elektron, 300keV}}$       | 1,97 pm  |
| Sichtbare Beugungsordnungen in m-Richtung | 3        |
| Sichtbare Beugungsordnungen in c-Richtung | 5        |

Es sind in dieser Richtung drei Beugungsordnungen erkennbar. Der schwache Reflex unterhalb von Punkt 1 bleibt unbeachtet, da er im Gegensatz zu den Punkten 1 und 4 nicht entlang der Verbindungsgeraden liegt. Die Punkte 2 und 3 zeigen die Reflexe der  $[0001]$ - oder c-Richtung. Es sind sechs Reflexe und damit fünf Beugungsordnungen entlang der beiden senkrechten, äquivalenten Richtungen erkennbar. Kreis 5 deutet die Kante der Blende an.

Tabelle 4.3 zeigt die für die Berechnung des Akzeptanzhalbwinkels verwendeten Werte. Die Gitterkonstanten von a- und c-Richtung stammen aus der Literatur [38]. Der Gitterebenenabstand in m-Richtung wurde über die Beziehung

$$a_{[10\bar{1}0]} = a_{[11\bar{2}0]} \cdot \cos(30^\circ) \quad (4.5)$$

aus der üblicherweise angegebenen a-Richtung berechnet. Dies ist durch die vorliegende Kristallsymmetrie möglich. Über die von De Broglie postulierte Formel

$$\lambda = \frac{h}{p} \quad (4.6)$$

lässt sich aus dem Impuls  $p$  eines Teilchens seine äquivalente Wellenlänge  $\lambda$  mit dem Planckschen Wirkungsquantum  $h$  berechnen. Für Elektronen mit einer Energie von 300 keV ergibt sich ein Wert von 1,97 pm (siehe Tabelle 4.3).

Der Akzeptanzwinkel wird üblicherweise als Halbwinkel  $\beta$  angegeben. Er kann als Vollwinkel in m- und c-Richtung für die Objektivblende über die Bragg-Bedingung

$$n\lambda = 2d \sin(2\beta) \quad (4.7)$$

**Tabelle 4.4:** Ergebnisse der Bestimmung des Akzeptanzwinkels. Wie in Abbildung 4.3 zu sehen ist, werden die Reflexe in [0001]-Richtung durch den Blendenrand teilweise verdeckt. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass der Abstand der [0001]-Reflexe dem Blendendurchmesser sehr nahe kommt, weswegen deren Halbwinkel im weiteren Verlauf verwendet wird.

| Halbwinkel               | Wert                 |
|--------------------------|----------------------|
| $\lambda_{[10\bar{1}0]}$ | $(4,8 \pm 0,5)$ mrad |
| $\lambda_{[0001]}$       | $(5,4 \pm 0,3)$ mrad |

aus den Messdaten bestimmt werden. Da die Blende kreisförmig ist und keine Bruchteile von Reflexen ausgewertet werden können, wird der größere der beiden Winkel für die Abschätzung von  $\lambda$  benutzt. Die Ablesefehler sind in c-Richtung sehr klein, da hier die Spots 1 und 4 aus Abbildung 4.3 durch den starken Intensitätverlust offensichtlich direkt am Rand der Blende liegen. Senkrecht dazu ist der Fehler etwas größer, wobei auch in diesem Fall der Rand der Blende durch die Spots 2 und 3 erkennbar ist. Er wird daher auf 5 % und 10 % für die beiden Richtungen abgeschätzt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.4 angegeben.

## 4.3 Bestimmung der lokalen Probendicke

Wie in Abschnitt 2.3.2 beschrieben, ist die Kenntnis der Probendicke Voraussetzung für die Quantifizierung der elektrischen Felder. Da die Proben durch die Art des konventionellen Präparationsprozesses (siehe Abschnitt 2.5) örtlich zum Teil deutlich variierende Dicken haben, muss diese lokal und mit ähnlicher Auflösung wie das Feld selbst gemessen werden. Es wurde die zur Verfügung stehende, auf EELS/EFTEM basierende Methode (siehe Abschnitt 2.3.2), welche relative Resultate liefert, mit einer Zweiten korreliert, um absolute Dicken bestimmen zu können. Die Ergebnisse dieser Messungen sowie die theoretischen Erwartungen werden in diesem Abschnitt vorgestellt.

### 4.3.1 Theoretische Vorhersage des IMFP bei GaN

Wie in Abschnitt 2.3.3 beschrieben, hängt die Formel zur Abschätzung der mittleren inelastischen freien Weglänge vom Akzeptanzwinkel des EELS ab. Setzt man (wie in Abschnitt 4.2 erläutert) das Ergebnis der Messung von 5,4 mrad aus Tabelle 4.4

ein, so ergibt sich ein Wert von:

$$\lambda_{\text{theoretisch}} = (149 \pm 15) \text{ nm} \quad (4.8)$$

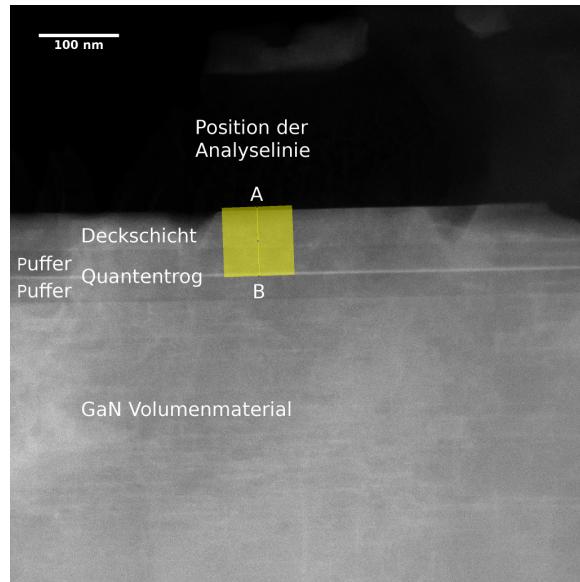
Die Formel zur Abschätzung des IMFP wurde erst kürzlich einer genauen Analyse unterzogen [115]. Dabei wurde für einen Akzeptanzhalbwinkel von 5 mrad die beste Übereinstimmung mit dem Experiment nachgewiesen. Der Fehler von Gleichung (2.6) wurde in obiger Veröffentlichung zu 10 % bestimmt. Er führt zur angegebenen Unsicherheit von 15 nm.

#### 4.3.2 Messung der Probendicke mit HAADF-STEM

Im Jahr 2009 gelang es, aus einer Kombination von HAADF-STEM-Messungen („High Angle Annular Dark Field“) und Simulationen die Probendicke *in situ* absolut zu bestimmen [63]. Diese Methode wurde als Referenz gewählt, da sie auch im TEM durchgeführt werden kann, sehr zuverlässige Ergebnisse liefert und die zu untersuchende Probe in keiner Weise zusätzlich (präparatorisch) behandelt werden muss.

Durch eine Kooperation mit der Arbeitsgruppe Rosenauer an der Universität Bremen war es möglich, die HAADF-STEM-Messungen an dem Gerät durchzuführen, an dem die Methode entwickelt wurde. Als Messstelle wurde ein Bereich gewählt, der den Anforderungen sowohl experimentell (darunter die Gesamtintensität des Elektronenstrahls) als auch hinsichtlich der Wiederauffindbarkeit (über markante Probenstellen) genügt. Die Auswertung der HAADF-Bilder erfolgte mit der in [63] beschriebenen Methode. Sie basiert auf einem Vergleich der Streuung in Abhängigkeit der lokalen Probendicke mit den zugehörigen simulierten Werten. Um dies feststellen zu können wurde die Dicke einer GaN-Probenlamelle direkt von der Seite gemessen. Im nächsten Schritt wurde sie um 90° gekippt und das HAADF-Signal bei Transmission bestimmt. Simulationen des erwarteten Signals bei Orientierung entlang der [11̄20]- oder a-Richtung wurden daraufhin an die Messungen angepasst und somit kalibriert. Alle Dickenmessungen erfolgten deshalb ausschließlich in dieser Kristallrichtung.

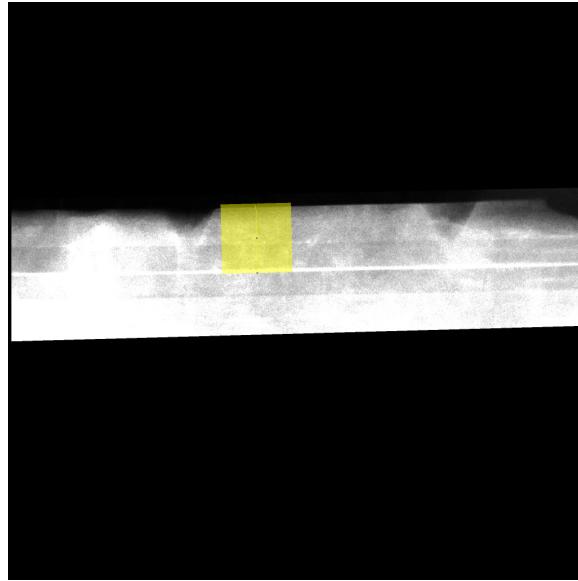
Die im Folgenden zur Auswertung der Ergebnisse herangezogenen Linienanalysen sind zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses zusätzlich gemittelt. Der Bereich, über den integriert wird, ist durch die Breite der halbtransparenten gelben Fläche senkrecht zur gelben Verbindungsgeraden der Anfangs- und Endpunkte „A“ und „B“ in den Messungen angedeutet. Die Breite der Mittelung beträgt üblicherweise 200 Pixel. Bei den Dickenmessungen ist die Zahl der gemittelten Pixel aufgrund des



**Abbildung 4.4:** Intensitätsbild der HAADF-Messung der Dicken-Kalibrierprobe. Die Struktur wird in Abschnitt 4.4.2 im Detail erläutert. Die Stelle, an der die Linienanalyse durchgeführt wurde, ist durch eine gelbe Fläche gekennzeichnet. „A“ und „B“ kennzeichnen Anfang und Ende der Linie. Das Signal wurde über die Breite der Fläche (senkrecht zur Linie) integriert.

abweichenden Bildausschnitts bei der Messung um etwa einen Faktor 2 bis 3 geringer. Bei der Auswertung wurde das Signal daher auf den Wert der DPC-Messungen interpoliert.

Abbildung 4.4 zeigt die HAADF-Aufnahme der Probenstelle, an der die Kalibrierung der Dickenmessung durchgeführt wurde. Das Ergebnis der Auswertung für den relevanten Bereich von Abbildung 4.4 ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Sie stellt die Intensität des vom HAADF-Detektor aufgezeichneten Signals dar. Die Probe selbst wird in Abschnitt 4.4.4 genauer beschrieben. Die Position der örtlich identischen Analyselinie ist eingezeichnet. Sie liegt entlang des Dickengradienten, um ein Verfälschen der Ergebnisse aufgrund der Mittelung zu vermeiden. Das Dickenprofil entlang der Analyselinie ist in Abbildung 4.8 gezeigt. Es bildet die Grundlage zur Bestimmung der mittleren inelastischen freien Weglänge von Plasmonen in GaN und damit zur Kalibrierung des TEMs für weitere Messungen.



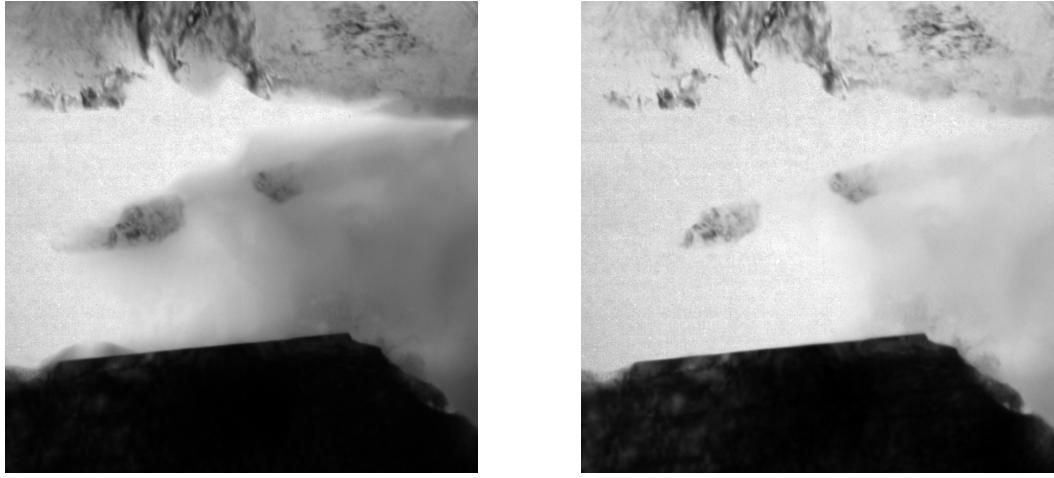
**Abbildung 4.5:** Aus dem HAADF-Bild (Abbildung 4.4) erzeugte Dickenkarte des für die Messung relevanten Bildausschnitts. Die Helligkeitswerte spiegeln die Probendicke wider. Das Dickenprofil der eingezeichneten Markierung ist in Abbildung 4.8 dargestellt.

**Tabelle 4.5:** Parameter der EELS-Dickenmessungen. Sie wurden zusätzlich zu den in Tabelle 4.1 aufgeführten Werten verwendet.

| Parameter                 | Wert  |
|---------------------------|-------|
| Objektivblende            | „3“   |
| EELS-Eintrittsblende      | 5 mm  |
| Breite des Energiefilters | 10 eV |

### 4.3.3 Messung der mittleren inelastischen freien Weglänge von Plasmonen mit EFTEM

Die Messung der Probendicke erfolgt mit Hilfe von EFTEM. Die Dickenkarten wurden nach der Log-Ratio-Formel erstellt (vergleiche Gleichung (2.5)). Diese Methode ist in die TEM-Steuersoftware integriert und liefert eine relative Dickeninformation in Einheiten der mittleren inelastischen freien Weglänge („Inelastic Mean Free Path“ – IMFP) von Plasmonen. Aus dem Vergleich von relativen EFTEM-Messungen mit den absoluten Ergebnissen der HAADF-STEM-Messungen, welche



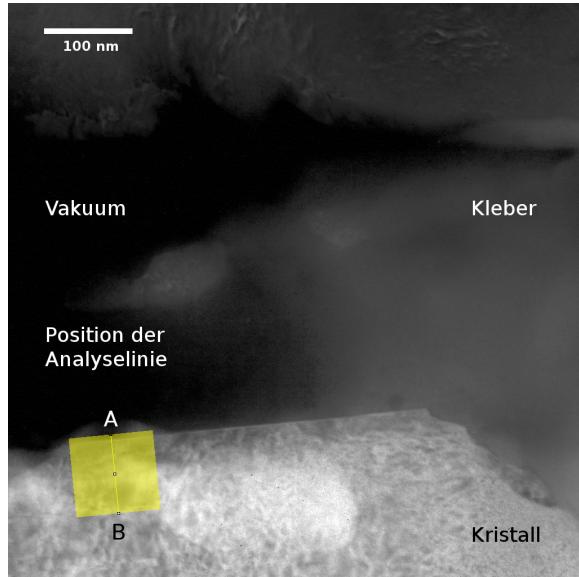
(a) Energiegefiltertes TEM-Bild

(b) Ungefiltertes TEM-Bild

**Abbildung 4.6:** Beispiel für ein energiegefiltertes und ein ungefiltertes TEM-Bild. Die linke Aufnahme zeigt das gefilterte Resultat. Dunkle Flächen stellen Bereiche dar, in denen Elektronen inelastische Streuung erfahren haben und deshalb durch das Energiefilter ausgeblendet wurden. In der rechten, ungefilterten Aufnahme ist die Intensität im oberen und mittleren Bereich der Probe erkennbar größer. Die nach Gleichung (2.5) resultierende Dickenkarte ist in Abbildung 4.7 dargestellt.

im vorherigen Abschnitt erläutert wurden, kann der IMFP  $\lambda$  bestimmt und somit die EFTEM-Messungen kalibriert werden. Für zukünftige Messungen genügt neben der Kenntnis von  $\lambda$  die Verwendung der in Tabelle 4.5 und Tabelle 4.1 genannten Mikroskopparameter.

Für die Dickenbestimmung werden zwei Bilder aufgenommen – je eins mit und ohne Energiefilterung (siehe Abbildung 4.6). Das gefilterte Bild – das Zero-Loss-Bild – enthält nur die Elektronen ohne Energieverlust (mit der Breite des Energiefilters von 10 eV um den Zero-Loss-Peak). Es liefert den Nenner von Gleichung (2.5). Das zweite, ungefilterte Bild beinhaltet das gesamte Energiespektrum. Es enthält neben dem Zero-Loss-Signal auch das Plasmonensignal. Der Quotient von Gleichung (2.5) lässt sich somit direkt bilden. Auf diese Weise wird die Berechnung der Dickenkarte erleichtert, da Zähler und Nenner direkt vorliegen und nicht aus einem Bild extrahiert werden müssen. Um potentielle Driftprobleme zu vermeiden, werden beide Aufnahmen vor der Division zusätzlich über eine Korrelation ausgerichtet. Abbildung 4.7 zeigt das Ergebnis der Dickenberechnung. Es liegt in Einheiten der mittleren inelastischen freien Weglänge der Plasmonen vor. Für diese Messung



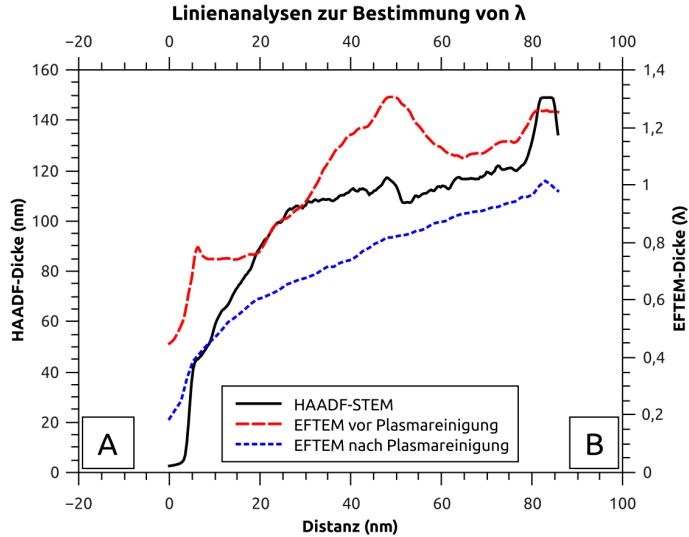
**Abbildung 4.7:** Dickenkarte, welche basierend auf Abbildung 4.6 gemäß Gleichung (2.5) berechnet wurde. Man kann den untersuchten Bereich unten sehr gut anhand der Form des Kristalls erkennen. Die Originalkontrastwerte, welche die Dicke in mittleren inelastischen freien Weglängen widerspiegeln, bewegen sich im Bereich von 0 bis  $2\lambda$ . Die innere Struktur des Probenmaterials ergibt sich durch das (notwendige) Einbringen der Objektivblende. Sie blockiert Teilstrahlen ab einem bestimmten Streuwinkel (siehe Abschnitt 4.2). In Bereichen mit amorphem Kleber, welche homogen streuen (Mitte rechts), ist die Intensität hingegen gleichförmig verteilt.

bewegen sich die Werte im Bereich von  $0$  bis  $2\lambda$ .

Die Bildausschnitte können aufgrund technischer Einschränkungen nicht identisch zur HAADF-STEM-Aufnahme (siehe Abbildung 4.4) gewählt werden. Zur Auswertung werden aus diesem Grund an gleichen Probenorten Linienanalysen durchgeführt. Die Deckungsgleichheit der Messungen wird durch markante, eindeutig wiedererkennbare Probenstellen sichergestellt. Die Auswertung für die mittlere inelastische freie Weglänge  $\lambda$  erfolgt durch Division der absoluten HAADF-Dicke durch die relative EFTEM-Dicke:

$$\lambda(x) = \frac{t_{\text{HAADF}}^{\text{abs}}(x)}{t_{\text{EFTEM}}^{\text{rel}}(x)} \quad (4.9)$$

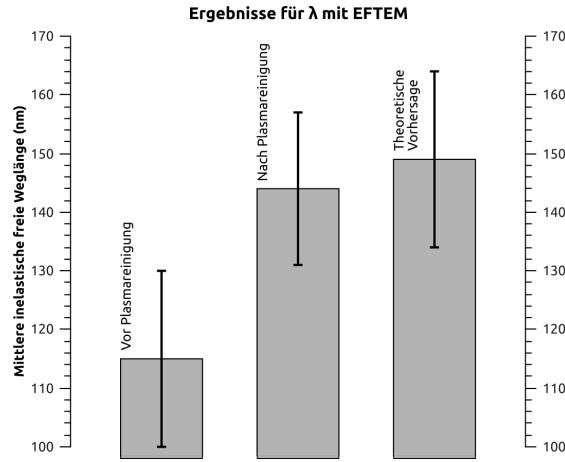
Das Ergebnis ist ein Wert für  $\lambda$  an jedem Messpunkt. Der Mittelwert der Messung



**Abbildung 4.8:** Ergebnisse der Linienanalysen zur Bestimmung des IMFP  $\lambda$  von HAADF und EFTEM vor und nach der Plasmareinigung. „A“ und „B“ beziehen sich auf die Angaben in Abbildung 4.4. Man kann den mittleren Rückgang der Dicke der EFTEM-Messung von ca.  $0,2\lambda$  nach dem Ätzen gut erkennen. Der Peak in der Messung vor der Reinigung lässt sich mit einer zusätzlichen, ungleichmäßigen Verschmutzung erklären, die vollständig entfernt wurde.

wird als mittlere inelastische freie Weglänge interpretiert, die Standardabweichung als der Fehler der Messung.

Die obige Linienanalyse ergibt eine Wert von  $\lambda_{\text{vorher}}^{\text{experimentell}} = (115 \pm 15) \text{ nm}$ . Er liegt deutlich unter dem in Gleichung (4.8) abgeschätzten Wert von  $\lambda_{\text{theoretisch}} = (149 \pm 15) \text{ nm}$ . Die Ursache für die Abweichung liegt in der Bedeckung der Probe mit kohlenstoffhaltiger Kontamination. Die Kontamination ist durch den Kontakt der Probe mit C-basierten Molekülen aus der Luft, dem bei der Probenpräparation verwendeten Kleber, etc. unvermeidbar, quasi unkontrollierbar und somit nicht reproduzierbar. Je länger der Kontakt besteht, desto unberechenbarer ist der Einfluss der parasitären Kohlenstoffschicht. Darüber hinaus liegt die zu erwartende mittlere inelastische freie Weglänge von amorphem Kohlenstoff laut Gleichung (2.6) bei rund 200 nm. Es wurde dabei eine Plasmonenverlustenergie von 14,2 eV angenommen [74]. Die zusätzliche Schicht resultiert somit in einer Überschätzung der Dicke bei der EFTEM-Messung, was durch die inverse Proportionalität zu einem Unterschätzen von  $\lambda$  führt (siehe Gleichung (4.9)). Ein Wiederabtragen der Verunreinigungen ist somit unabdingbar.



**Abbildung 4.9:** Experimentelle und theoretische Ergebnisse der Bestimmung der mittleren inelastischen freien Weglänge mit EELS. Der linke und mittlere Balken zeigt jeweils den Mittelwert und die Standardabweichung der Messung von  $\lambda$  vor und nach der Plasmareinigung. Der rechte Balken stellt das Ergebnis der theoretischen Abschätzung dar (siehe Gleichung (4.8)).

Die Standardmethode für die Entfernung der Kohlenstoff-Kontamination ist das Trockenätzen in einem Sauerstoff- oder Argon-Plasma. Die Ätzraten sind dabei so gering, dass vorrangig die Kohlenstoffverbindungen abgetragen werden. Bei entsprechender Dauer können bei Bedarf auch amorphisierte Oberflächenschichten schonend abgetragen werden [116]. Diese treten vor allem bei der Probenpräparation mit einer FIB auf.

Um die Probendicke ohne den Effekt der Verunreinigungen mit EFTEM feststellen zu können, wurde die Probe direkt vor einer zweiten Messung für insgesamt 10 Minuten von beiden Seiten mit Sauerstoff-Plasma im Bereich von  $1 \times 10^{-1}$  Pa bis  $1 \times 10^{-2}$  Pa gereinigt. Veränderungen des Kristalls selbst sowie ein merkliches Abtragen von kristallinem Material ist bei den verwendeten Parametern selbst bei einer Zeit von einigen Minuten vernachlässigbar, da der Druck des Plasmas nicht groß genug ist (vergleiche [116]). Die erneute Auswertung derselben Probenstelle ergibt einen Wert von  $\lambda_{\text{experimentell}}^{\text{nachher}} = (144 \pm 13)$  nm. Abbildung 4.8 zeigt das Ergebnis der Linienanalyse mit den Werten der Messungen von HAADF und EFTEM ohne und mit Reinigung.

Der Wert nach der Reinigung stimmt mit der theoretischen Vorhersage sehr gut überein (siehe Abbildung 4.9 und Tabelle 4.6). Bei der Auswertung wurde nur der Bereich der Deckschicht mit reinem GaN berücksichtigt, um ein Verfälschen des

**Tabelle 4.6:** Ergebnisse der EFTEM-Dickenmessungen. Die Plasmabehandlung umfasste ein zehnminütiges Abätzen der Kohlenstoff-basierten Verunreinigungen von beiden Seiten.

| Messung                 | Ergebnis          |
|-------------------------|-------------------|
| Vor Plasmabehandlung    | $(115 \pm 15)$ nm |
| Nach Plasmabehandlung   | $(144 \pm 13)$ nm |
| Theoretische Vorhersage | $(149 \pm 15)$ nm |

Ergebnisses durch Kanteneffekte oder den Puffer beziehungsweise den Quantentrog auszuschließen. Da das experimentelle mit dem theoretischen Ergebnis im Rahmen der Messgenauigkeit übereinstimmt, wird für die Berechnung der Probendicke daher im weiteren Verlauf das Ergebnis von

$$\lambda_{\text{experimentell}} = (144 \pm 13) \text{ nm} \quad (4.10)$$

für die mittlere inelastische freie Weglänge verwendet [60].

Es wurden weitere Messungen zur Bestimmung von  $\lambda$  durchgeführt, welche jedoch bis zu 40 % unter dem erwarteten Wert liegen. Allen diesen Messungen ist gemein, dass eine Verunreinigung durch Kohlenstoff zum Zeitpunkt der Messung vorlag. Eine Reinigung der Probe war zum Zeitpunkt der Messung nicht möglich, da das Plasmareinigungsgerät noch nicht verfügbar war. Eine Unterschätzung der mittleren inelastischen freien Weglänge ist, wie oben beschrieben, die Folge. Ein Nachmessen war aus unterschiedlichen Gründen nicht mehr möglich (keine HAADF-Referenzdaten, Probe zerstört, etc.).

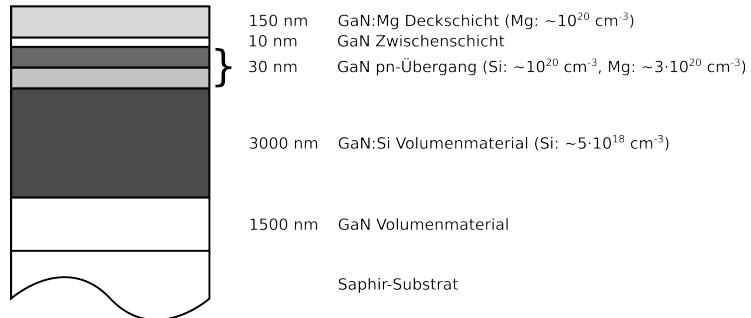
In der Literatur finden sich Werte für  $\lambda$  von 149 nm [33] bis 61 nm [30]. Da nicht alle relevanten Parameter aus den Veröffentlichungen bekannt sind, ist ein direkter Vergleich nicht möglich.

## 4.4 Ergebnisse

In diesem Abschnitt werden die DPC-Messergebnisse vorgestellt und beschrieben. Der Vergleich mit Simulationen und Messungen anderer Gruppen sowie die Interpretation der Ergebnisse erfolgt in Abschnitt 4.5.

Die in dieser Arbeit untersuchten Proben stammen von Kooperationspartnern der DFG Forschergruppe FOR 957 („Polarization Control in Nitrides“ – PolarCoN) und von OSRAM Opto Semiconductors GmbH (Regensburg). Alle vorgestellten Proben

### Probenaufbau pn-Übergang



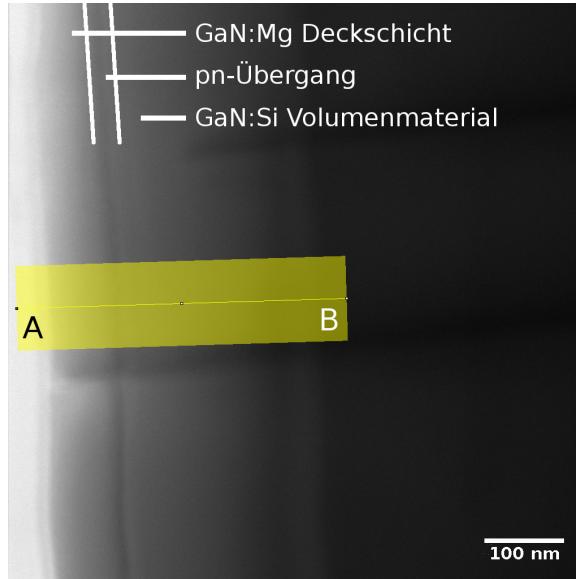
**Abbildung 4.10:** Schematischer Aufbau der Probe „pn-Übergang“. Sie enthält einen 30 nm breiten Übergang, welcher durch die geschweifte Klammer markiert ist, oberhalb gefolgt von einer GaN-Schicht ohne explizite Dotierung. Dieser pn-Übergang ist in einen weiteren pn-Übergang eingebettet, welcher aus dem untenliegenden Volumenmaterial und der Deckschicht gebildet wird. Die Messungen deuten darauf hin, dass der „äußere“ und nicht der 30 nm breite pn-Übergang vermessen wurde.

wurden in c-Richtung (hexagonale Kristallrichtung [0001]) auf Saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) als Substratmaterial gewachsen. Entlang dieser („polar“ genannten) Richtung treten die spontanen und piezoelektrischen Effekte auf. Sie wurde gewählt, da das erwartete Messsignal am größten ist. In allen anderen Richtungen ist nur die jeweilige Projektion der Felder messbar, oder es ist sogar ein Vorzeichenwechsel vorhanden, was die Interpretation der Resultate erschweren würde [19, 41, 117].

Die Proben umfassen verschiedene Typen von aktiven Schichten, wobei das Spektrum von einem einfachen pn-Übergang über Einfach- zu Vielfachquantenfilmen reicht. Die Diversität der Strukturen wurde gewählt, um an möglichst vielen verschiedenen Schichtfolgen die Leistungsfähigkeit von DPC zeigen zu können.

#### 4.4.1 pn-Übergang

Die einfachste Struktur, um (definiert) innere elektrische Felder zu bestimmen, ist ein pn-Übergang. Es werden dabei zwei Schichten des gleichen Grundmaterials epitaktisch übereinander gewachsen, die durch unterschiedliche Dotierung verschiedene Eigenschaften erhalten. Auf der einen Seite wird mit Donatoren (n-Seite) ein Elektronenüberschuss, auf der anderen Seite mit Akzeptoren (p-Seite) ein Elektronenmangel beziehungsweise Löcherüberschuss erreicht. Dies hat Auswirkungen auf

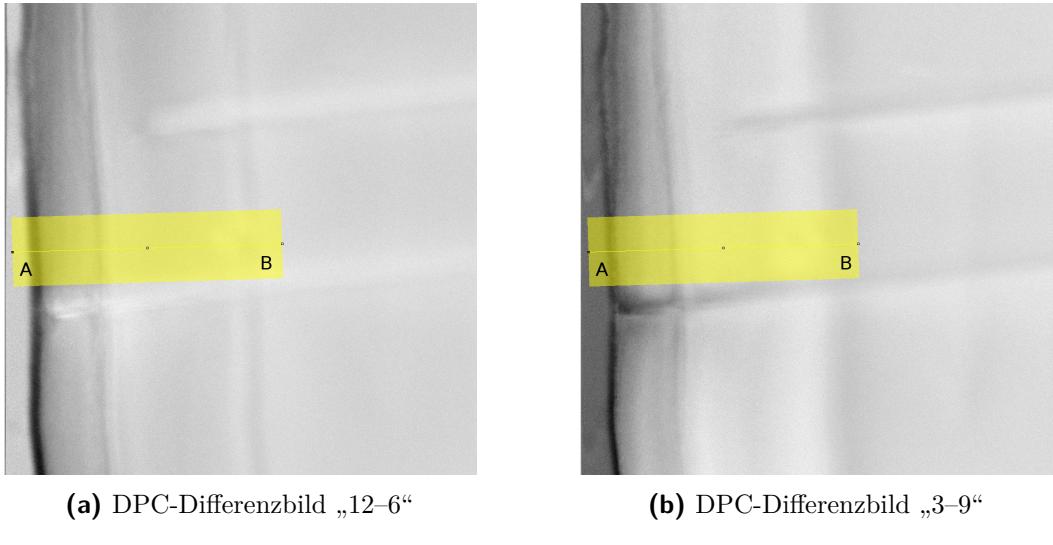


**Abbildung 4.11:** STEM-Hellfeldbild des pn-Überganges mit der Position, an der die Linienanalyse durchgeführt wurde (von „A“ nach „B“). Man kann von links den Probenrand, die Deckschicht, den pn-Übergang und das Volumenmaterial erkennen. Entgegen dem Wachstumsrezept ist die Deckschicht mit 100 nm etwa 50 nm dünner als der nominelle Sollwert von 150 nm.

die Bandstruktur. Im n-dotierten Material bewegt sich die Fermi-Energie energetisch in Richtung des Leitungsbands, im p-dotierten in Richtung des Valenzbands. Die Bandstruktur gleicht sich beim Zusammenbringen der beiden Materialien im Bereich der Kontaktstelle aus, um das Fermi-Niveau (bei  $T \neq 0$  K allgemeiner das chemische Potential  $\mu$ ) auf beiden Seiten konstant zu halten. Das führt zu einer Verschiebung von Ladungsträgern und somit – über die Poisson-Gleichung – zu einer Änderung des Potentials und folglich zu einem elektrischen Feld. Die Situation eines im thermodynamischen Gleichgewicht befindlichen pn-Überganges kann gut berechnet werden, da sie im Wesentlichen durch die Bandlücke und die Dotierung festgelegt wird (siehe zum Beispiel [91]):

$$e\Delta\Phi = E_g + k_B T \ln \left( \frac{n_d n_a}{n_n p_p} \right) \quad (4.11)$$

Es gehen die Elektronenladung  $e$ , die Potentialdifferenz  $\Delta\Phi$ , die Bandlückenenergie  $E_g$ , der Boltzmannfaktor  $k_B$ , die Temperatur  $T$ , die Konzentrationen der Donatoren



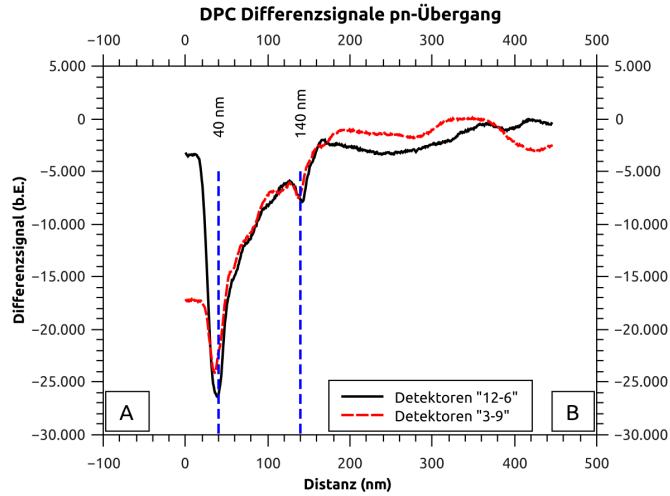
**Abbildung 4.12:** DPC-Messung des pn-Überganges. Die beiden Bilder stellen das Differenzsignal der jeweiligen Richtungen dar. Der pn-Übergang ist wie in Abbildung 4.11 deutlich zu erkennen. Die Auswertung erfolgt entlang der Linie „A“–„B“.

$n_d$  und Akzeptoren  $n_a$  sowie die Dichte der Majoritätsladungsträger von Elektronen  $n_n$  und Löchern  $p_p$  ein. Der pn-Übergang eignet sich somit sehr gut als Test für die Feldmessung. Die Bandlücke lässt sich über eine empirische Formel berechnen [118]:

$$E_{\text{Bandlücke}}(T) = E_{\text{Bandlücke}} \Big|_{T=0} - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} \quad (4.12)$$

$\alpha$  und  $\beta$  sind dabei materialspezifische Parameter. Sie ergeben sich im Fall von GaN zu  $\alpha = 7,7 \times 10^{-4} \text{ eV/K}$  und  $\beta = 600 \text{ K}$  [39]. Bei Raumtemperatur ( $T = 300 \text{ K}$ ) erhält man für die Bandlücke von reinem GaN ein Wert von  $3,4 \text{ eV}$  [36, 39].

Der schematische Aufbau der untersuchten Probe ist in Abbildung 4.10 dargestellt: Auf ein Saphir-Substrat wurde eine undotierte Schicht GaN mit  $1,5 \mu\text{m}$  Dicke aufgewachsen, gefolgt von einer n-dotierten GaN-Schicht (Si-Dotierung  $\sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) mit einer Dicke von  $3 \mu\text{m}$ . Darauf wird ein insgesamt  $30 \text{ nm}$  starker pn-Übergang gewachsen, bestehend aus Si- und Mg-dotierten GaN-Schichten (Si:  $\sim 1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ , Mg:  $\sim 3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ). Auf diesen folgt eine Lage aus  $10 \text{ nm}$  nominell undotiertem GaN (oft mit „not intentionally doped“ – *nid* bezeichnet) und einer p-dotierte GaN-Deckschicht mit  $150 \text{ nm}$  (Mg:  $\sim 1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ). Aus der abwechselnden Folge von n- und p-dotierten Schichten ergeben sich somit mehrere möglich pn-Übergänge.

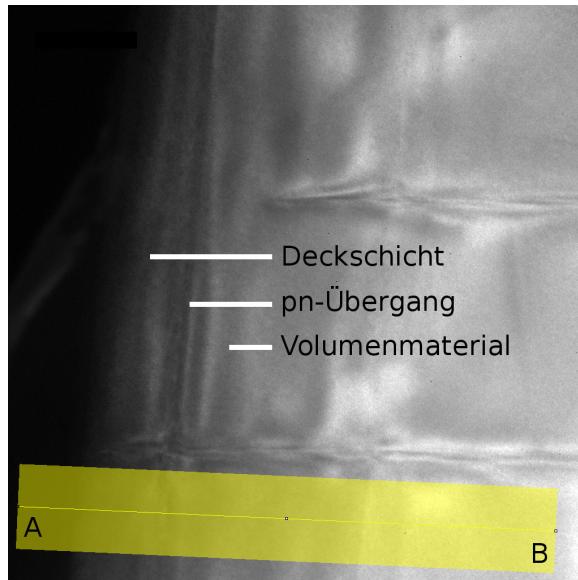


**Abbildung 4.13:** DPC-Linienanalysen des pn-Überganges. „A“ und „B“ beziehen sich auf Abbildung 4.11. Neben dem prägnanten, unvermeidbaren Kantensignal bei  $x \sim 40$  nm ist der pn-Übergang bei  $x = 140$  nm deutlich erkennbar.

An dieser Probe wird die Messdatenauswertung mit allen Schritten exemplarisch erläutert. Bei den weiteren gezeigten Proben werden die Zwischenschritte nicht mehr wiedergegeben. Sie können jedoch im Anhang ab Seite 109 nachgeschlagen werden.

Abbildung 4.11 zeigt das Hellfeldbild der Probe. Die Schichtabfolge ist gut erkennbar. Von links nach rechts ist die Deckschicht, der pn-Bereich und das darunter liegende Volumenmaterial sichtbar. Die Deckschicht ist etwa 50 nm dünner als im Wachstumsrezept nominell eingestellt. Dies ist für die Messung der inneren Felder zweitrangig und bleibt deshalb unbeachtet.

Abbildung 4.12 zeigt die beiden DPC-Komponentenbilder „12-6“ und „3-9“, Abbildung 4.13 den zugehörigen Graphen der Linienanalyse. Neben dem an der Probenkante auftretenden, unerwünschten Kantensignal (der sogenannten „Edge Wave“, siehe [12]) ist bei etwa 140 nm das Signal des pn-Überganges erkennbar. Abbildung 4.14 zeigt das EFTEM-Ergebnis der Probenstelle. Die Analyselinien beider Messungen werden im einen Fall oberhalb, im anderen unterhalb der deutlich sichtbaren Kristallstörung extrahiert. Die Positionen sind so gewählt, da aufgrund starker Intensitätsschwankungen, welche durch direkt angrenzende Kristallstörungen in Verbindung mit der bei der Dickenbestimmung verwendeten Objektivblende (siehe Abschnitt 4.2) verursacht werden, die jeweils andere Probenstelle nicht sinnvoll auswertbar ist. Da durch den Präparationsprozess der Dickengradient parallel zur Probenkante und somit der potentielle Fehler in der Dickenbestimmung gering

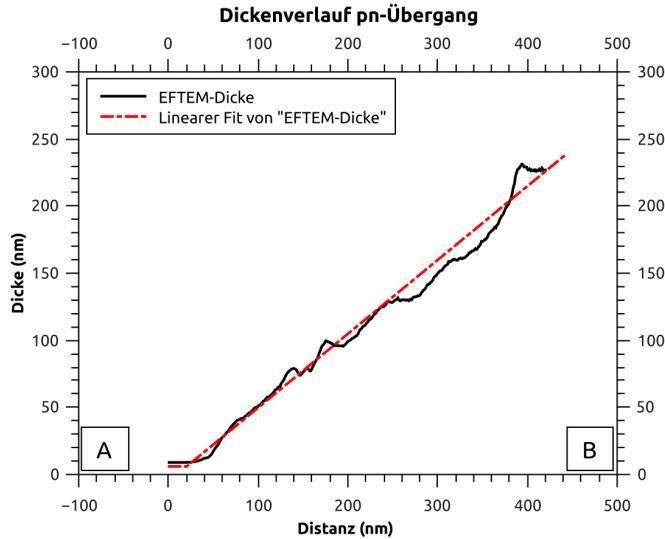


**Abbildung 4.14:** Dickenmessung des pn-Überganges. Aufgrund starker Intensitätschwankungen, welche durch direkt angrenzende Kristallstörungen in Verbindung mit der bei der Dickenbestimmung verwendeten Objektivblende (siehe Abschnitt 4.2) verursacht werden, wurde der Dickenverlauf direkt unterhalb der Störung ermittelt. Dies ist möglich, da aufgrund des Präparationsprozesses die Dickenänderung parallel zur Probenkante zu vernachlässigen ist.

ist, kann die Verschiebung der Analyselinie um ca. 150 nm vernachlässigt werden. Abbildung 4.15 zeigt den Dickenverlauf aus Abbildung 4.14 und den darauf basierenden linearen Fit, welcher für die Berechnung der elektrischen Feldstärke verwendet wurde.

Das ortsaufgelöste elektrische Feld, welches anhand von Gleichung (2.24) berechnet wird, ist in Abbildung 4.16 dargestellt. Das Signal ist im Bereich von 0 nm bis 60 nm durch eine Kombination aus großem DPC-Signal, verursacht durch die Probenkante, und geringer Probendicke verfälscht. Im Inneren der Probe geht die Feldänderung wie erwartet gegen null.

Um die großen Signaländerungen in den folgenden DPC-Messungen und den daraus berechneten elektrischen Feldern verstehen zu können, soll kurz der Einfluss der Probenkante auf den Elektronenstrahl erläutert werden. Trifft der Probenstrahl beim Abrastern der Probe auf die Kante, wird der Strahl stark abgelenkt. Die Auswirkungen auf die Hellfeldbilder und Dickenkarten sind vernachlässigbar, da diese beiden Methoden keine Richtungsempfindlichkeit des Elektronenstrahls aufweisen.

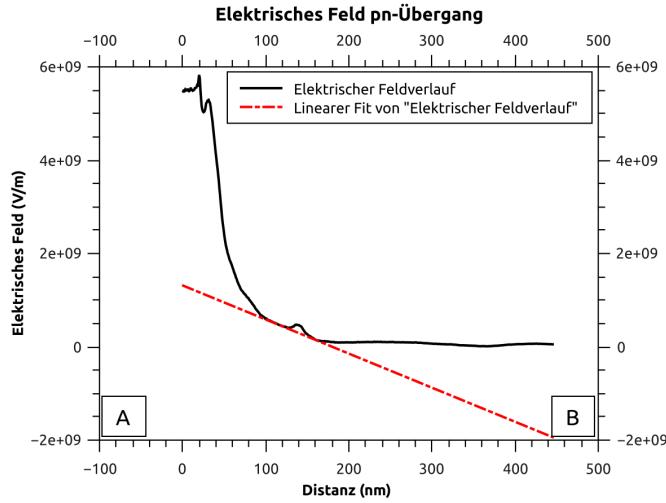


**Abbildung 4.15:** Dickenverlauf und linearer Fit des pn-Überganges. Letzterer wurde zur Berechnung des elektrischen Feldes herangezogen.

Genau diese Eigenschaft wird aber bei DPC-Messungen benötigt und ausgenutzt. Trifft der Strahl also die Kante, resultiert daraus ein scheinbares Signal, welches die Effekte innerhalb der Probe sehr deutlich übersteigen kann (siehe zum Beispiel Abbildung A.2). Aus diesem Grund wird auf die Interpretation der Ergebnisse nahe der Probenkante verzichtet. Dieser Effekt ist in [12] detailliert beschrieben.

Bei etwa 140 nm ist im abklingenden Signal in Abbildung 4.13 ein Peak erkennbar, welcher sich mit Hilfe von Abbildung 4.11 als pn-Übergang bestätigen lässt. Um das gewünschte Signal vom Kanteneffekt zu trennen, wird der Bereich des pn-Überganges als Näherung linear angefittet (siehe Abbildung 4.16). Es wird ein linearer Fit gewählt, da nur das Feld in der direkten Umgebung des Übergangs von Relevanz ist. Abbildung 4.17 zeigt die Differenz von berechnetem elektrischem Feld und Fit. Die Grenzen des pn-Überganges liegen bei ca. 117 nm und 160 nm. Seine Breite lässt sich so zu 43 nm abschätzen. Es liegt somit die Vermutung nahe, dass es sich um den pn-Übergang handelt, den das Volumenmaterial und die Deckschicht bilden, nicht jedoch um den inneren, „eigentlichen“ pn-Übergang. Die Annahme wird dadurch gestützt, dass der Übergang und die angrenzende *nid*-GaN-Schicht eine nominelle Dicke von 40 nm haben.

Abbildung 4.18 zeigt den relevanten Ausschnitt von Abbildung 4.17. Darin ist neben dem Maximalwert für das elektrische Feld von 170 MV/m eine leicht asymmetrische Feldverteilung sichtbar. Zwischen etwa 117 nm bis 127 nm steigt das Feld



**Abbildung 4.16:** Nach Gleichung (2.24) berechnetes elektrisches Feld des pn-Überganges entlang der Strecke „A“–„B“. Aufgrund des parasitären Signals der Probenkante in Kombination mit der geringen Dicke an dieser Stelle ergibt sich der Ausreißer im Bereich von 0 nm bis 60 nm. Der Effekt wird geringer, je weiter man sich ins Innere der Probe begibt. Um das Signal des pn-Überganges zwischen 117 nm und 160 nm aus dem abklingenden Signal zu extrahieren, wurde es linear angefittet. Abbildung 4.17 zeigt das Ergebnis der Differenzbildung.

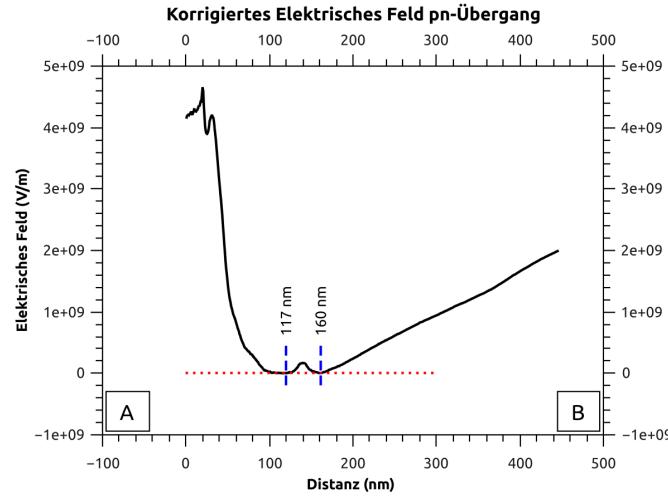
zunächst nur gering an, um dann in den verbleibenden gut 30 nm einen fast symmetrischen Verlauf zu zeigen. Dies deckt sich mit der 10 nm breiten *nid*-Zwischenschicht, welche auf den „inneren“ pn-Übergang gewachsen wurde.

Da das elektrische Feld ein konservatives Feld ist, ergibt es sich aus dem Gradienten des Potentials:

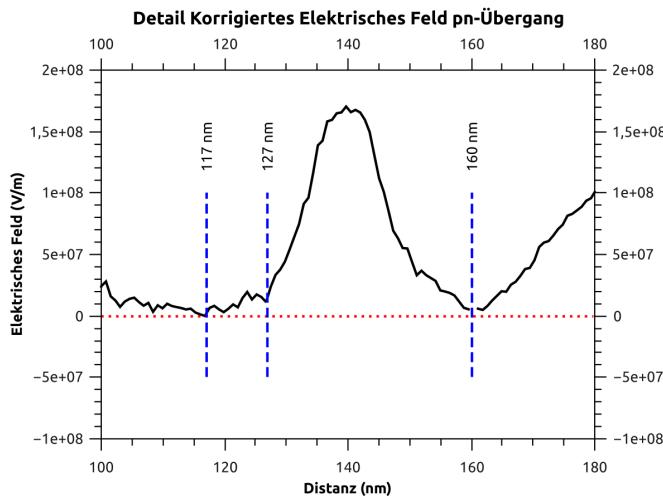
$$\vec{E} = -\nabla \vec{\Phi} \quad (4.13)$$

Integriert man über das Signal von Abbildung 4.18, resultiert daraus die Potentialänderung, über welche die Messung geprüft werden kann. Abbildung 4.19 zeigt das Ergebnis der Integration. Es ergibt sich ein Wert von etwa 2,8 V, was im Rahmen der Messgenauigkeit (siehe Kapitel 5) mit den erwarteten 3,4 V (siehe Gleichung (4.12)) übereinstimmt. Ein möglicher Grund, warum das gemessene Potential unterhalb des erwarteten Wertes liegt, ist die in Abschnitt 4.3.3 erwähnte Verunreinigung der Probenoberfläche durch Kohlenstoffverbindungen. Das elektrische Feld wird dabei unterschätzt, was auch zu einem scheinbar zu kleinen Potential führt<sup>1</sup>. Das

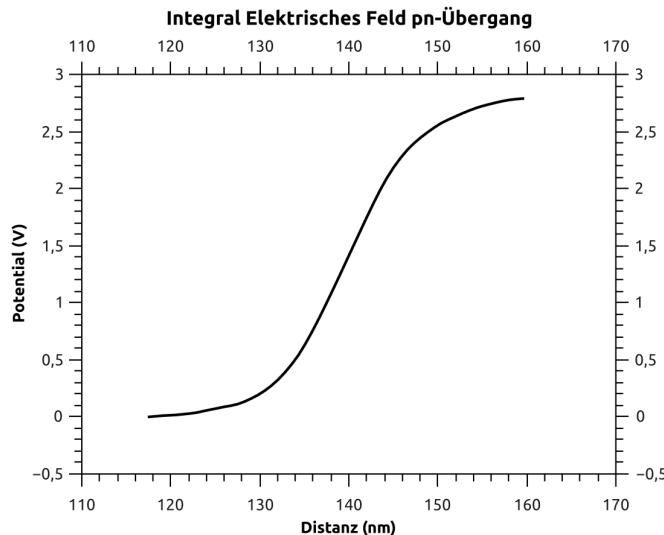
<sup>1</sup>Das Plasmareinigungsgerät stand zu diesem Zeitpunkt noch nicht zur Verfügung.



**Abbildung 4.17:** Resultierendes, korrigiertes elektrisches Feld aus Abbildung 4.16. Die Breite des pn-Signals lässt sich auf 43 nm abschätzen. Dies ist nur wenig mehr als die Breite von „innerem“ pn-Übergang und GaN-Zwischenschicht. Es ist daher sehr wahrscheinlich, dass das Signal von dem „äußeren“ pn-Übergang herrührt. Dies bestätigt auch eine Simulation (vergleiche Abschnitt 4.5.1).



**Abbildung 4.18:** Ausschnitt des elektrischen Feldes von Abbildung 4.17. Die Feldstärke erreicht einen Maximalwert von 170 MV/m. Der im Verlauf zur rechten Signallflanke verzögerte Anstieg zwischen 117 nm und 127 nm legt die Vermutung nahe, dass hier die 10 nm breite Zwischenschicht erkennbar ist.



**Abbildung 4.19:** Berechneter Potentialverlauf des pn-Überganges. Dazu wurde das Signal von Abbildung 4.18 zwischen 117 nm und 160 nm integriert.

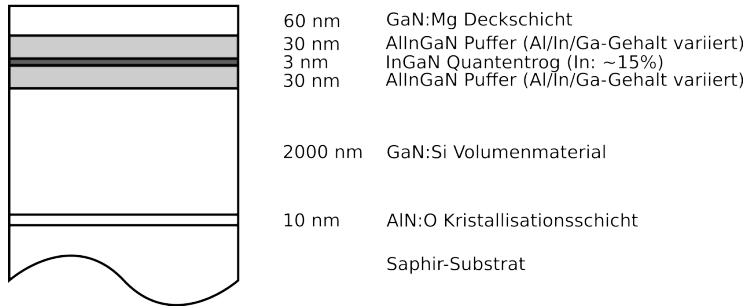
Vorzeichen aus Gleichung (4.13) ist in Abbildung 4.19 nicht berücksichtigt, da es von der relativen Lage der Probe zum Detektor beim Experiment und durch die Art der Differenzbildung bei der Auswertung abhängig ist. Dies stellt jedoch keine Einschränkung des Ergebnisses dar.

#### 4.4.2 Quaternär gepufferte Quantentröge

In diesem Abschnitt sollen drei Proben vorgestellt werden. Ihre grundsätzliche Schichtfolge ist identisch, sie unterscheiden sich nur in der genauen Zusammensetzung der beiden Pufferschichten. Der schematische Aufbau der Proben ist wie folgt: Nach der AlN-Nukleationsschicht wurde  $2 \mu\text{m}$  Silizium-dotiertes GaN-Volumenmaterial aufgewachsen (Dotierkonzentration unbekannt). Darauf folgt ein  $3 \text{ nm}$  dicker, verspannter InGaN-Quantentrog, welcher beiderseits von  $30 \text{ nm}$  breiten AlInGaN-Puffern eingefasst ist. Den Abschluss bildet eine Mg-dotierte GaN-Deckschicht (Dotierkonzentration unbekannt) von  $60 \text{ nm}$  Stärke (siehe Abbildung 4.20).

Der einzige variierte Parameter ist die Menge an Indium, welche in den Puffer eingebracht wurde. Daraus ergibt sich auch eine Änderung der Konzentrationen von Al und Ga, da alle drei Materialien (Kristallbaufehler nicht berücksichtigt) auf Gruppe-III-Gitterplätzen eingebaut werden. Es kann durch geeignete Mischung der drei Elemente die Polarisation und die Gitterkonstante des Kristalls an die

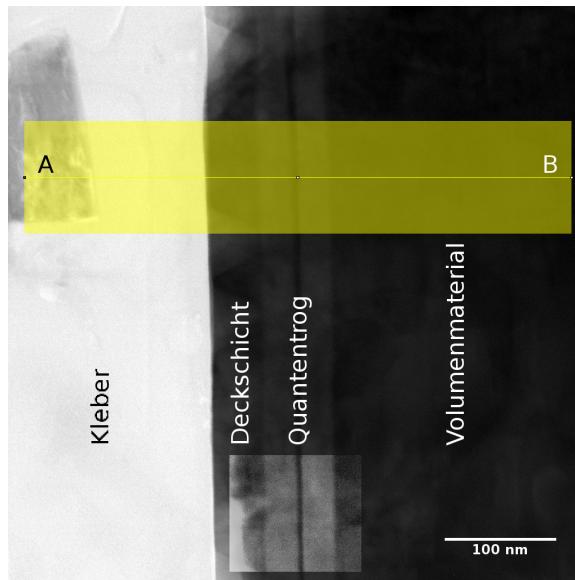
### Probenaufbau quaternär gepufferte Quantentröge



**Abbildung 4.20:** Schematischer Aufbau der quaternären Probenserie mit AlInGaN-Pufferschichten. Nach der Kristallisationsschicht folgt eine für alle drei Proben gleichbleibende siliziumdotierte Volumenlage aus GaN (Dotierkonzentration unbekannt). An sie schließt sich eine quaternäre Pufferschicht an, welche eine für die drei Proben variierte Zusammensetzung von Al, In und Ga hat (Details siehe Tabelle 4.7). Nach einem 3 nm dicken, verspannt aufgewachsenem Quantentrog folgt eine weitere, zur ersten identische Pufferschicht. Eine Mg-dotierte Deckschicht (Dotierkonzentration unbekannt) bildet die letzte Lage.

**Tabelle 4.7:** Wachstumsparameter für die Probenserie der quaternär gepufferten Quantentröge. Es ist der Fluss des Trägergases von In („Precursor-Fluss“) in Standardkubikzentimetern („Standard Cubic Centimeters per Minute“ – sccm) während des epitaktischen Wachstums angegeben. Leider ist die resultierende prozentuale Zusammensetzung des Puffers weder bekannt, noch konnte sie im Rahmen dieser Arbeit festgestellt werden. Der Verspannungszustand beschreibt die Verformung des Puffers gegenüber dem unverspannten Volumenmaterial.

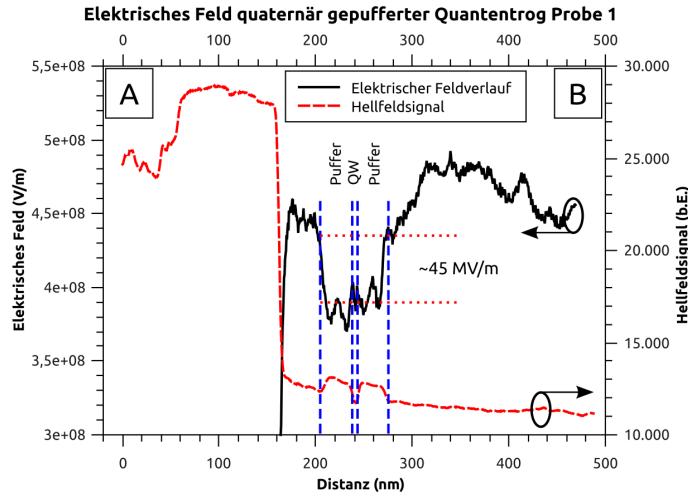
| Probe               | 1      | 2               | 3          |
|---------------------|--------|-----------------|------------|
| In-Fluss (Puffer)   | 3 sccm | 12,5 sccm       | 50 sccm    |
| Verspannungszustand | tensil | gitterangepasst | kompressiv |



**Abbildung 4.21:** Hellfeldbild von Probe 1 der Probenserie mit quaternären AlInGaN-Pufferschichten. Im kontrastverstärkten Bildausschnitt unten Mitte sind der Quantentrog und die angrenzenden Puffer gut erkennbar. Die Linienanalyse ist von „A“ nach „B“ durchgeführt.

InGaN-Quantentroge angepasst werden (siehe zum Beispiel [20, 43, 57, 112]). Die Flusswerte des In-Trägergases („Precursor-Fluss“) beim Pufferwachstum und der daraus resultierende Verspannungszustand relativ zum Volumenmaterial sind in Tabelle 4.7 angegeben. Dadurch wird bei den vorliegenden Proben erreicht, dass der Puffer gegenüber dem GaN-Volumenmaterial tensil, gitterangepasst bzw. kompressiv verspannt ist. Da die kritische Schichtdicke des Quantentrogs in allen drei Fällen ein pseudomorphes Wachstum erlaubt (vergleiche Abbildung 3.3), wird dem Quantentrog die Gitterkonstante des (verspannten) Puffers aufgezwungen und dieser folglich entsprechend verzerrt. Dadurch ändert sich die piezoelektrische Polarisation, welche zu einem messbaren elektrischen Feld führt. Im Folgenden sollen die Feldänderungen im Quantentrog aufgrund der unterschiedlichen Zusammensetzung untersucht werden.

Der In-Gehalt des Quantentrogs konnte in Kooperation mit der Arbeitsgruppe Rosenauer (Universität Bremen) zu  $(15 \pm 3)\%$  bestimmt werden [119]. Die genaue Zusammensetzung des Puffers ist hingegen weder bekannt, noch konnte sie im Rahmen dieser Arbeit ermittelt werden. Ursache hierfür ist das Al im Puffer. Bisher wurde in der Software zur Auswertung der HAADF-Bilder dieses Element nicht be-

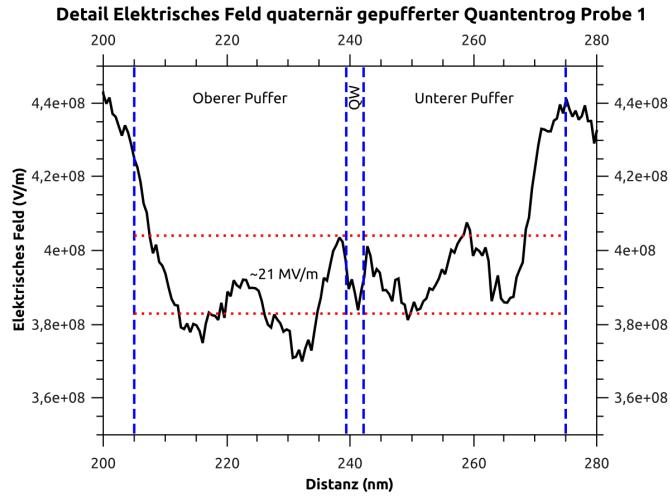


**Abbildung 4.22:** Elektrisches Feld von Probe 1 der quaternär gepufferten Quantentroge. Die genaue Position von Puffer und Quantentrog lässt sich anhand des Hellfeldsignals sehr gut zuordnen. Man kann am Übergang zwischen Volumenmaterial und unterem Puffer beziehungsweise oberem Puffer und Deckschicht eine Änderung des elektrischen Feldes im Bereich von etwa 45 MV/m (siehe gepunktete rote Linien) erkennen. Innerhalb der Puffer und am Quantentrog ergeben sich Variationen von bis zu etwa 20 MV/m.

rücksichtigt. Durch seine im Gegensatz zu Ga und In deutlich verschiedene Kernzahl verändert sich das gemessene (Z-abhängige) HAADF-Signal merklich und macht das Ergebnis unbrauchbar. Da die Simulation der für die Intensitätsbestimmung notwendigen Koeffizienten Zeit im Bereich von einigen Monaten in Anspruch nimmt und vor Ort nicht durchgeführt werden kann, ist es nicht möglich, die Auswertung dieser Bereich vorzunehmen.

An einer Probe dieser Serie (Probe 1) wurde neben der Feldmessung auch die Dickenkalibrierung vorgenommen (siehe Abschnitt 4.3.2). Abbildung 4.21 zeigt das Hellfeldbild von Probe 1. Darin sind die Schichten im kontrastverstärkten Bereich in der Mitte unten deutlich erkennbar. (Abbildung 4.4 aus Abschnitt 4.3.2 zeigt die Struktur im (HAADF-)Dunkelfeldbild noch besser.) In Ermangelung eines HAADF-Detektors konnten keine äquivalenten Aufnahmen für die restlichen untersuchten Proben gemacht werden. Die Ergebnisse der DPC- und Dickenmessungen befinden sich in Anhang A.1.

Die im Folgenden genannten Werte für die elektrischen Felder sind als relative Änderungen zu interpretieren. Die Absolutwerte werden aus diesem Grund nicht

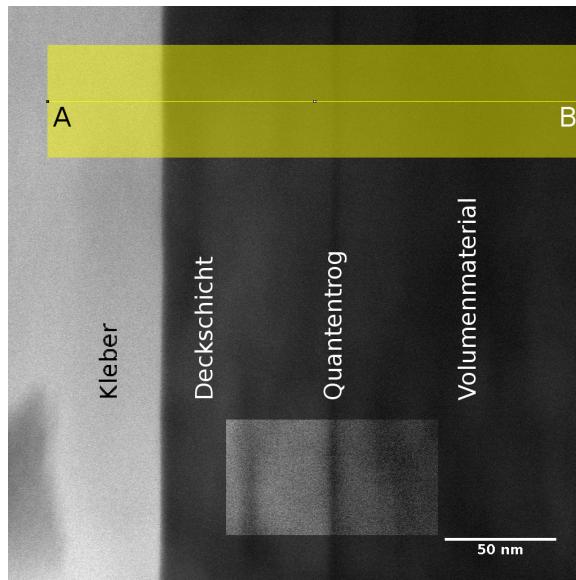


**Abbildung 4.23:** Detail des elektrischen Feldes von Probe 1 der quaternär gepufferten Quantentroge. Man kann im gesamten Bereich von Puffer und Quantentrog Feldänderungen im Bereich von etwa 21 MV/m erkennen. Entscheidend ist dabei das Signal direkt im Quantentrog selbst. Die Auswirkungen werden am Ende von Abschnitt 4.5.2 erläutert.

bewertet. Als Referenz wird das Feld innerhalb des GaN-Volumenmaterials benutzt, da angenommen wird, dass hier keine piezoelektrische Polarisation auftritt. Der Einfluss der spontanen Polarisation kann aufgrund der unbekannten Zusammensetzung des Puffers nicht abgeschätzt werden. Zwar kann ihr Unterschied zwischen GaN und InN vernachlässigt werden, der von AlN hingegen nicht [19, 47, 117]. Da der Al-Anteil im Puffer jedoch den von Ga und In nicht maßgeblich übersteigen und sich daher der Wert nur eingeschränkt ändern sollte, wird der Effekt der spontanen Polarisation vernachlässigt.

Abbildung 4.22 zeigt den Feldverlauf zusammen mit dem Hellfeldsignal, über welches sich zur besseren Orientierung die Position der Puffer und des Quantentrogs sehr gut korrelieren lässt. Man kann am Übergang zwischen Volumenmaterial und unterem Puffer beziehungsweise oberem Puffer und Deckschicht eine Änderung des elektrischen Feldes erkennen, welche etwa 45 MV/m beträgt (siehe gepunktete rote Linien).

Da der Puffer tensil verspannt auf das GaN-Substrat aufgewachsen wurde, vergrößert sich die Gitterkonstante senkrecht (biaxial oder auch „in-plane“ genannt) und verringert sich parallel zur Wachstumsrichtung. Durch das Austauschen von Ga durch In-Atome hat InGaN ebenso eine größere Gitterkonstante als GaN. Dies führt

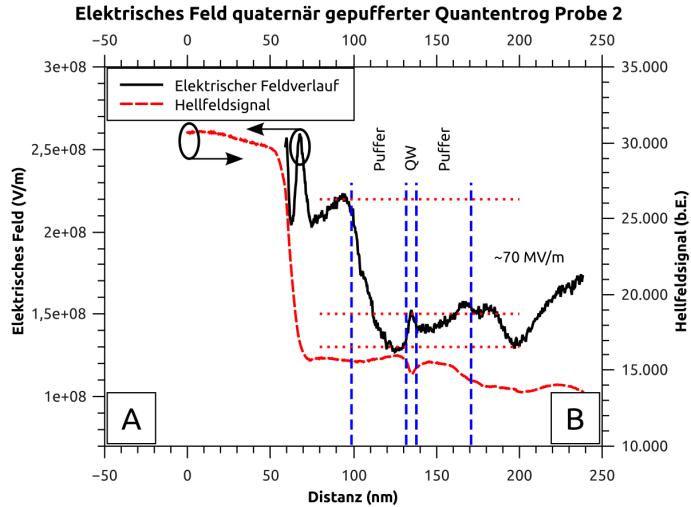


**Abbildung 4.24:** Hellfeldbild von Probe 2 der Probenserie mit quaternären AlInGaN-Pufferschichten. Im kontrastverstärkten Bildausschnitt in der Mitte unten ist der Quantentrog gut erkennbar. Die Grenzen der Puffer sind am unteren Bildrand schwach zu erahnen. Die Linienanalyse ist von „A“ nach „B“ durchgeführt.

dazu, dass der Quantentrog mit wenig Verspannung oder sogar gitterangepasst auf den Puffer aufwächst. Es sollten daher keine, beziehungsweise kaum Polarisationsladungen an der Grenzfläche auftreten. Eine mögliche Quelle für trotzdem auftretende Ladungen könnte der quaternäre Puffer aufgrund seiner Zusammensetzung selbst sein. Die moderaten Änderungen im Signal deuten auf mäßige Änderungen der Polarisierung hin. Ob der Grund in einem nur geringen Unterschied der Gitterkonstanten oder einer polarisationsangepassten Materialzusammensetzung liegt, kann mangels Kenntnis der genauen Zusammensetzung nicht entschieden werden.

In dem von Volumenmaterial und Deckschicht eingeschlossenen Bereich ergeben sich Variationen bis zu 20 MV/m. Entscheidend scheint jedoch der Feldverlauf zu sein, welcher sich im Quantentrog selbst ergibt. Abbildung 4.23 zeigt daher den Ausschnitt um den Quantentrog vergrößert. Man kann eine sehr deutliche Signaländerung im Trog selbst erkennen, welche innerhalb von 3 nm bis 4 nm ein Ansteigen und Abfallen des Feldes um etwa 21 MV/m aufweist. Diese Änderung, welche sich vollständig im Quantentrog abspielt, beeinflusst die lokale Bandstruktur darin. Die Auswirkungen werden in Abschnitt 4.5.2 behandelt.

Als nächstes wird Probe 2 betrachtet. Abbildung 4.24 zeigt ihr Hellfeldbild,

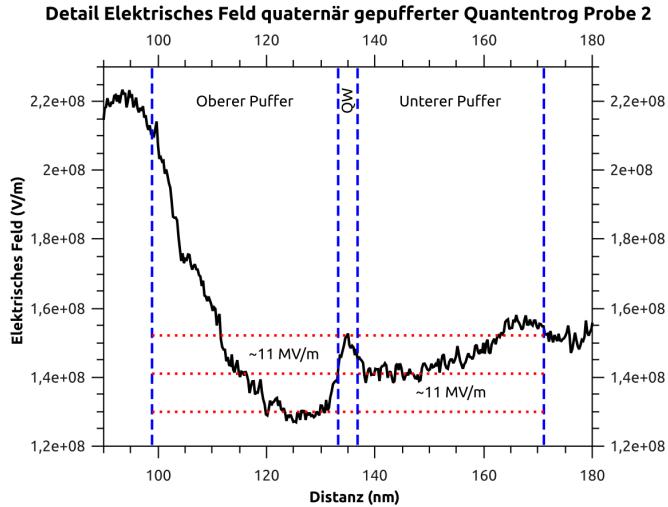


**Abbildung 4.25:** Elektrisches Feld von Probe 2 der quaternär gepufferten Quantentroge. Neben einem durch das gitterangepasste Wachstum fast konstanten Übergang der Gitterkonstanten vom Volumenmaterial zum unteren Puffer ist wie bei Probe 1 ein Peak im Feldverlauf am Ort des Quantentrogs erkennbar. Im Verlauf des oberen Puffers steigt das Signal um ca. 90 MV/m zur Deckschicht hin an. Die unteren beiden gestrichelten (roten) Linien geben einen Feldbereich von 20 MV/m an, innerhalb dessen sich das Signal des Quantentrogs bewegt.

Abbildung 4.25 den zugehörigen Feldverlauf zusammen mit dem Hellfeldsignal als Linienanalysen. Die Situation unterscheidet sich auf den ersten Blick deutlich von der von Probe 1. Am Übergang von Volumenmaterial zu unterem Puffer ändert sich das Feld nur gering (etwa 11 MV/m). Im Bereich des Quantentrogs ist im Signal ein Peak erkennbar, gefolgt von einem Anstieg innerhalb des oberen Puffers bis zur Deckschicht von etwa 90 MV/m.

Da der Puffer von Probe 2 gitterangepasst auf das Volumenmaterial aufgewachsen wurde, ergeben sich im Übergangsbereich beider Schichten keine Verspannungen. Die Ursache der Variationen im Signal kann durch die unterschiedliche Polarisation des AlInGaN-Puffers im Vergleich zu GaN erklärt werden. Der Quantentrog von Probe 2 wächst somit auf einer Gitterkonstante auf, welche der von GaN entspricht. Dies führt zu einer Verspannung, als wenn der Puffer nicht vorhanden wäre.

Abbildung 4.26 stellt die Feldänderungen vergrößert dar. Man kann darin ein Abfallen des Feldsignals im Bereich des unteren Puffers bis zum Quantentrog erkennen, welches danach noch etwa bis zur Hälfte innerhalb des oberen Puffers fortgesetzt ist. Diesen Abfall unterbricht der Quantentrog. Wie bei Probe 1 ergibt

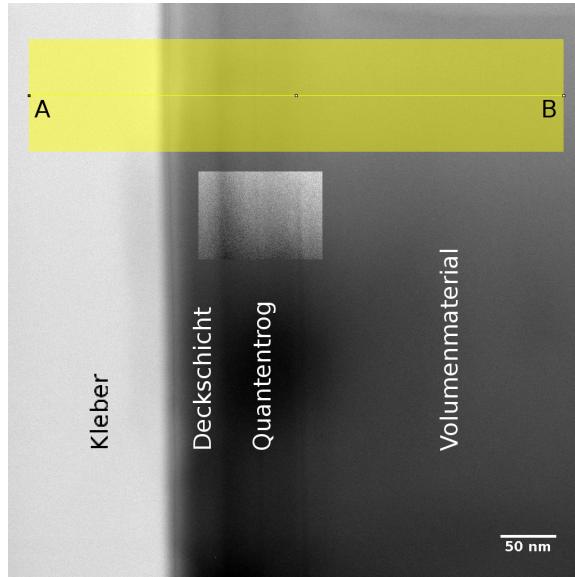


**Abbildung 4.26:** Detail des elektrischen Feldes von Probe 2 der quaternär gepufferten Quantentroge. Im Bereich des unteren Puffers ist eine Änderung von 11 MV/m zu erkennen. Das gilt ebenso für den Quantentrog, in dem das Feld – wie bei Probe 1 – innerhalb von etwa 3 nm bis 4 nm einen Anstieg und Abfall von 11 MV/m beziehungsweise 22 MV/m zeigt. Im nachfolgenden oberen Puffer steigt das Feld mit ca. 90 MV/m dann deutlich an.

sich innerhalb der Quantentrogbreite ein Ansteigen und Abfallen des Feldes von 11 MV/m beziehungsweise 22 MV/m im Bereich von ca. 4 nm. Dadurch wird auch bei dieser Probe eine Beeinflussung der lokalen Bandstruktur im Quantentrog erwartet.

Als Letztes werden die Ergebnisse von Probe 3 dieser Serie vorgestellt. Abbildung 4.27 zeigt die Hellfeldaufnahme mit dem kontrastverstärkten Rechteck in der Mitte. Die Begrenzungen des Puffers und des Quantentrogs sind durch dunkle Linien deutlich erkennbar. In Abbildung 4.28 ist der Feldverlauf entlang der Linie „A“–„B“ zusammen mit dem Hellfeldsignal dargestellt. Die Feldänderung weicht maßgeblich von dem in Probe 1 und 2 gemessenen Verlauf ab. Das Signal steigt noch vor dem Übergang von Volumenmaterial zu unterem Puffer um etwa 60 MV/m an, um dann innerhalb der Pufferschicht bis zum Quantentrog um fast 180 MV/m abzufallen. Im Bereich des oberen Puffers steigt das Feld um etwa 46 MV/m, in der Deckschicht um weitere 130 MV/m, um auf das Niveau vom Beginn des unteren Puffers zurückzukehren.

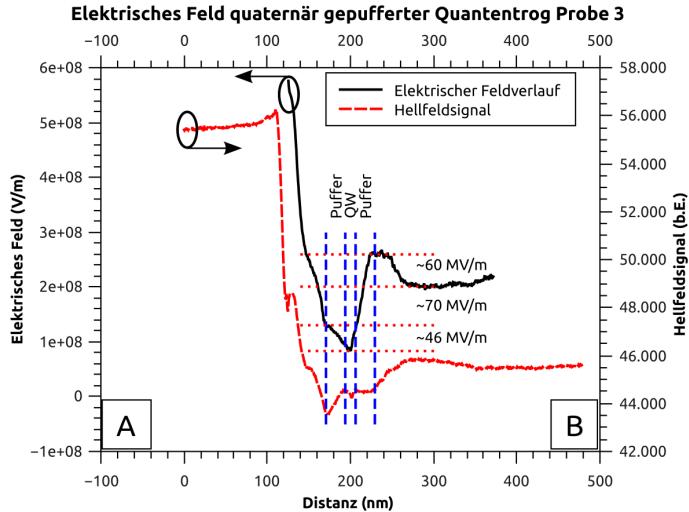
Dieser Verlauf kann wiederum durch die Betrachtung der Gitterkonstanten verstanden werden. Bei der dritten Probe wird die Pufferschicht kompressiv verspannt auf das GaN-Material aufgewachsen. Dadurch verringert sich die Gitterkonstante



**Abbildung 4.27:** Hellfeldbild von Probe 3 der Probenserie mit quaternären AlInGaN-Pufferschichten. Im kontrastverstärkten Bildausschnitt sind die Begrenzungen der Pufferschichten links und rechts, sowie der Quantentrog in der Mitte als dunkle Linien erkennbar. Die Linienanalyse ist von „A“ nach „B“ durchgeführt.

senkrecht zur Wachstumsrichtung. Da der nachfolgende InGaN-Quantentrog jedoch eine größere Konstante als GaN hat (welche der Puffer durch das pseudomorphe Wachstum annimmt), ist der Unterschied zwischen kompressiv verspanntem Puffer und Quantentrog noch größer. Die Verspannung des Quantentrogs ist bei dieser Probe somit am größten, was zu den höchsten Flächenladungsdichten an den Grenzen führen sollte.

Abbildung 4.29 zeigt den Ausschnitt des elektrischen Feldes im Bereich des Quantentrogs von Abbildung 4.28. Betrachtet man das Signal im Detail, so ist das Fehlen einer Feldänderung innerhalb des Quantentrogs auffällig. Im Gegensatz zu den ersten beiden Proben ist das Feld dort – trotz sehr großer Änderungen in den umgebenden Bereichen – nahezu konstant. Mit diesem Schichtaufbau scheint ein Verschwinden oder zumindest eine sehr deutliche Reduktion des Feldes im Quantentrog erreicht worden zu sein, obwohl aufgrund der großen Verspannung zwischen Puffer und Quantentrog große Polarisationsladungen zu erwarten wären. Eine mögliche Erklärung ist das Erreichen eines polarisationsangepassten Übergangs zwischen den beiden Schichten aufgrund der Zusammensetzung des quaternären Puffers.

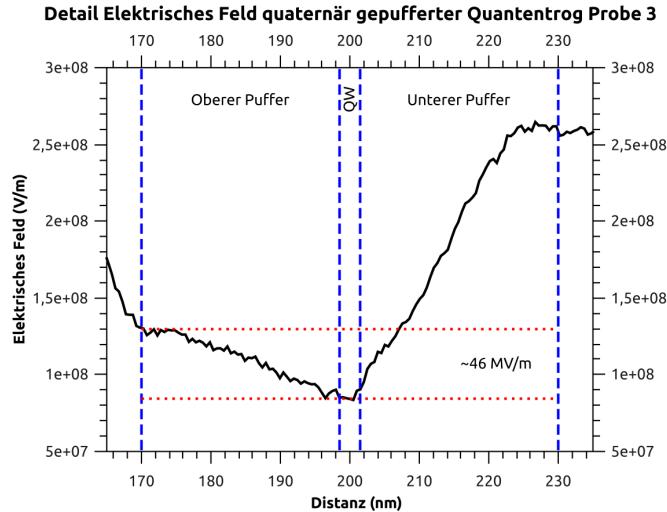


**Abbildung 4.28:** Elektrisches Feld von Probe 3 der quaternär gepufferten Quantentroge. Der Verlauf des elektrischen Feldes zeigt maßgebliche Unterschiede im Vergleich zu den beiden vorherigen Proben. Es ergeben sich Feldänderungen bis zu knapp 180 MV/m innerhalb des Bereichs von Puffer und Quantentrog. Dies lässt sich durch die großen Unterschiede in den Gitterkonstanten der beteiligten Schichten erklären. Im Bereich des Quantentrogs selbst ist – im Gegensatz zu den beiden anderen Proben – kein Peak erkennbar.

#### 4.4.3 Doppelquantentrog

Die in diesem Abschnitt vorgestellte Probe enthält zwei Quantentroge, welche sich primär in ihrer Schichtdicke unterscheiden. Diese Probe wurde speziell zur Untersuchung des Einflusses der Quantentrogbreite auf den Feldverlauf gewachsen. Abbildung 4.30 zeigt den schematischen Aufbau der Probe, Abbildung 4.31 das zugehörige Hellfeldbild. Auf GaN-Volumenmaterial werden nacheinander ein nominell 10 nm breiter Quantentrog, eine etwa 25 nm dicke Pufferschicht gefolgt von einem weiteren Quantentrog mit 20 nm Breite aufgewachsen. Den Abschluss bildet eine 60 nm breite GaN-Deckschicht. Der nominelle In-Gehalt der beiden Tröge beträgt 12 % und 14 %.

Die Probe wurde an der Universität Bremen hinsichtlich der resultierenden Dicken und In-Gehalt untersucht [119, 120]. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.8 zusammengefasst. Die Messungen ergeben einen In-Gehalt von  $(4 \pm 1) \%$  und  $(4,5 \pm 1,5) \%$ . Aus den atomar aufgelösten Bildern resultiert die Dicke für die Tröge 1 und 2 jeweils zu  $(9,5 \pm 0,5) \text{ nm}$  und  $(18,0 \pm 0,5) \text{ nm}$ .



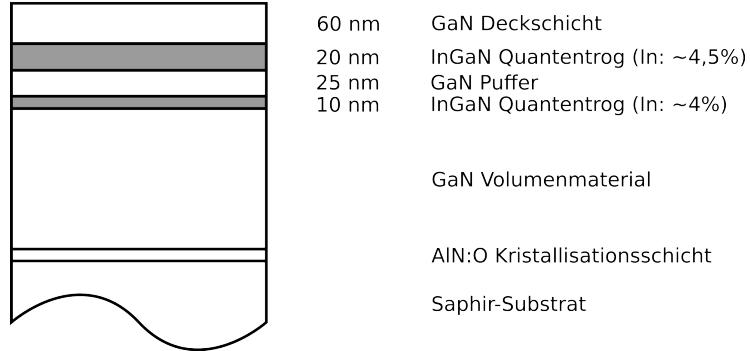
**Abbildung 4.29:** Detail des elektrischen Feldes von Probe 3 der quaternär gepufferten Quantentroge. Innerhalb des unteren Puffers ändert sich das Signal bis zum Rand des Quantentrogs sehr deutlich. Innerhalb des Quantentrogs ist es jedoch praktisch konstant, gefolgt von einem Anstieg bis zur Deckschicht um ca. 46 MV/m. Scheinbar konnten durch die vorliegende Zusammensetzung des Puffers Feldänderungen innerhalb des Quantentrogs vermieden worden zu sein.

**Tabelle 4.8:** Nominelle und experimentell bestimmte Quantentrogbreite und In-Gehalt der Doppelquantentrogprobe. Die Breite und der Indiumgehalt wurden mit Hilfe von atomar aufgelösten HAADF-STEM-Messungen ermittelt und ausgewertet [119, 120]. Die große Abweichung des In-Gehalts von den nominellen Werten wurde zusätzlich durch Photolumineszenz-Messungen bestätigt [121].

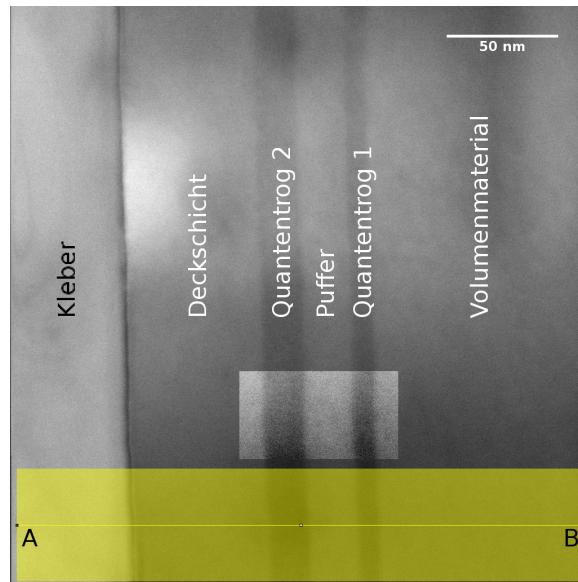
|  | Quantentrog | Dicke (nm) |   | Indium (%) |               |
|--|-------------|------------|---|------------|---------------|
|  |             |            |   | nominell   | gemessen      |
|  |             | 1          | 2 | 10         | $9,5 \pm 0,5$ |
|  |             |            |   | 12         | $4,0 \pm 1,0$ |
|  |             |            |   | 14         | $4,5 \pm 1,5$ |

Abbildung 4.32 zeigt den Feldverlauf und das zugehörige Hellfeldsignal. Vom Volumenmaterial kommend fällt das Signal an der Grenzfläche des ersten Quantentrogs um etwa 20 MV/m ab, um am folgenden Übergang zum Zwischenpuffer um den selben Betrag wieder anzusteigen. Dazwischen ist eine Änderung um ca. 13 MV/m erkennbar. Die Situation des zweiten ähnelt dem des ersten Quantentrogs. Auch hier ist eine Signaländerung von 20 MV/m an den Übergängen zum Puffer

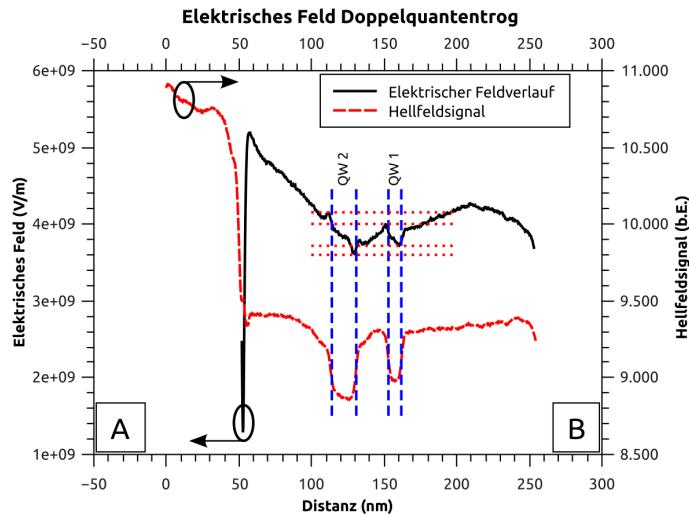
### Probenaufbau Doppelquantentrog



**Abbildung 4.30:** Schematischer Aufbau der Doppelquantentrogprobe. Auf die GaN-Volumenschicht wird zuerst ein nominell 10 nm dicker Quantentrog aufgewachsen, dann eine 25 nm Pufferschicht, gefolgt von einem zweiten Quantentrog mit 20 nm Breite. Den Abschluss bildet eine 60 nm breite Deckschicht. Der (gemessene) In-Gehalt der Quantentroge beträgt 4 % und 4,5 %.



**Abbildung 4.31:** Hellfeldbild der Doppelquantentrogprobe. Die beiden 10 nm und 20 nm breiten Quantentroge sind im kontrastverstärkten Bildausschnitt sehr deutlich als dunkle Streifen erkennbar. Die Linienanalyse ist von „A“ nach „B“ durchgeführt.



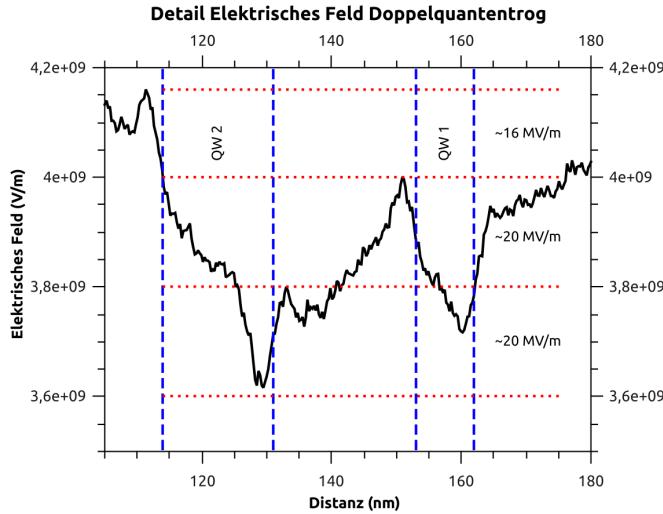
**Abbildung 4.32:** Elektrisches Feld des Doppelquantentrogs. Im Bereich der beiden Tröge ist eine deutliche Änderung des Signals erkennbar (durch die vier waagrechten, gepunkteten (roten) Linien angedeutet). Der Detailausschnitt in Abbildung 4.33 zeigt die Situation vergrößert.

und der Deckschicht zu erkennen. Das Signal innerhalb des zweiten Quantentrogs ist scheinbar zweigeteilt. Der Gesamtanstieg von  $40 \text{ MV/m}$  ist auf zweimal ca.  $20 \text{ MV/m}$  (von  $132 \text{ nm}$  bis  $125 \text{ nm}$  und von  $125 \text{ nm}$  bis  $114 \text{ nm}$ ) aufgeteilt. Die Steigung in der linken Hälfte im Bereich von Trog 2 ähnelt dabei derjenigen von Quantentrog 1.

Wie erwartet, ist die Steigung des Feldsignals innerhalb der Quantentröge im Gegensatz zu den Pufferbereichen verschieden. Dies lässt sich durch die unterschiedlichen Vorzeichen von spontaner und piezoelektrischer Polarisation erklären [16, 51, 87]. Die Deckschicht weicht von diesem Verhalten ab, was durch einen möglichen Einfluss von Oberflächeneffekten erklärt werden kann. Die Stärke der Polarisation an den vier Grenzflächen ist im Rahmen der Messgenauigkeit gleich groß, was durch den ähnlichen In-Gehalt zu erwarten ist. Der mögliche Einfluss der Trogbreite wird in Abschnitt 4.5.3 diskutiert.

#### 4.4.4 Achtfach-Quantentrog

Bei der letzten untersuchten Probe handelt es sich um eine Struktur mit acht Quantentrögen. Aufgrund ihrer regelmäßigen, (nominell) identischen Struktur bietet sie die Möglichkeit annähernd perfekter Vergleichbarkeit der Tröge untereinander. Der schematische Aufbau der Probe ist in Abbildung 4.34 dargestellt.



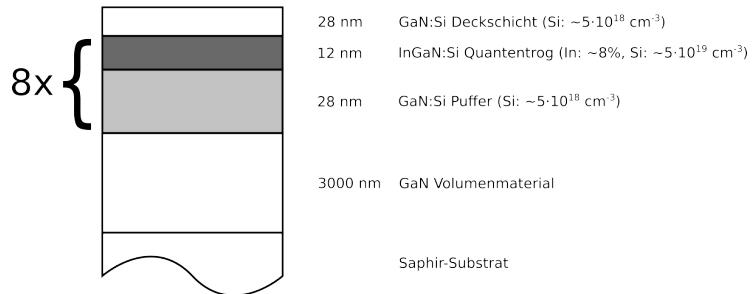
**Abbildung 4.33:** Detail des elektrischen Feldes des Doppelquantentrogs. Von rechts kommend ändert sich die Feldstärke am Übergang vom Volumenmaterial zum ersten Quantentrog um etwa 20 MV/m, innerhalb des Trogs um ca. 9 MV/m, um dann beim Übergang in den Puffer zwischen den beiden Trögen wieder um 20 MV/m anzusteigen. Nach einem Abfall des Signals innerhalb des Puffers ändert sich das Feld wiederum um 20 MV/m, steigt innerhalb von Trog 2 um etwa 40 MV/m an und endet mit einem erneuten Anstieg am Übergang zur Deckschicht von 20 MV/m.

Die Probe besteht aus acht InGaN-Quantentrögen von 12 nm Breite (In-Gehalt nominell und gemessen etwa 8 %, Si-Dotierung:  $\sim 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ), welche durch Si-dotierte Puffer (Si:  $\sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) von 28 nm Breite voneinander getrennt sind. Den Abschluss bildet eine Si-dotierte Deckschicht (Si:  $\sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) von 28 nm. Im Gegensatz zu den anderen Proben ist sie ausschließlich n-dotiert.

Abbildung 4.35 zeigt die Hellfeldaufnahme der untersuchten Probenstelle. Die Probenoberfläche befindet sich auf der rechten Seite, die Wachstums- oder c-Richtung ist markiert. Die Quantentröge sind im aufgehellten Bereich in der Mitte deutlich als dunkle Linien erkennbar und mit „1“ bis „8“ gekennzeichnet. Auf die explizite Markierung der dazwischenliegenden Puffer wurde der Übersichtlichkeit halber verzichtet. Die Aufhellung im unteren rechten Bildbereich ist ein Teil eines sogenannten „V“-förmigen Kristallbaufehlers („V-Pit“). Dieser wurde durch die Probenpräparation angeschliffen und erscheint deshalb heller als die Umgebung. Er eignet sich sehr gut zur örtlichen Korrelation der verschiedenen Messungen.

Abbildung 4.36 zeigt das elektrische Feldsignal. Die Quantentröge sind wieder

Probenaufbau Achtfach-Quantentrog



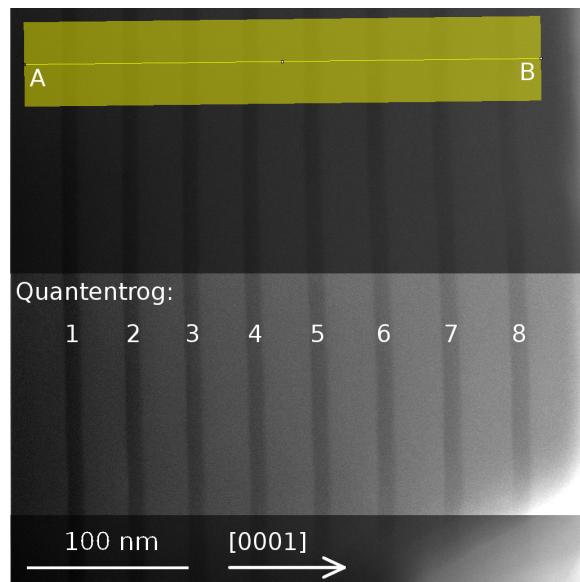
**Abbildung 4.34:** Schematischer Aufbau der Achtfach-Quantentrogprobe. Auf die GaN-Volumenschicht wird ein 28 nm dicker, mit Silizium dotierter Puffer ( $\sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ), gefolgt von einem 12 nm dicken, ebenfalls mit Silizium dotierten Quantentrog ( $\sim 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) aufgewachsen. Diese zwei Schichten werden insgesamt achtmal aufgebracht. Den Abschluss bildet eine 28 nm dicke, wiederum mit Silizium dotierte ( $\sim 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) Deckschicht. Der In-Gehalt der Quantentroge beträgt etwa 8 %.

**Tabelle 4.9:** Änderungen des elektrischen Feldes an den Grenzflächen der Quantentroge der Achtfach-Quantentrogprobe.  $\downarrow$  und  $\uparrow$  beziehen sich auf die fallende beziehungsweise steigende Flanke der Signaländerung  $\Delta E$  des jeweiligen Quantentrogs. Die Änderungen sind in MV/m angegeben. Es ist eine schwache, wenn auch merkliche Asymmetrie der beiden Flanken festzustellen.

| Trog       | 1                  | 2                | 3                  | 4                | 5                  | 6                | 7                  | 8                |
|------------|--------------------|------------------|--------------------|------------------|--------------------|------------------|--------------------|------------------|
| $\Delta E$ | $\downarrow$<br>53 | $\uparrow$<br>55 | $\downarrow$<br>60 | $\uparrow$<br>58 | $\downarrow$<br>71 | $\uparrow$<br>66 | $\downarrow$<br>76 | $\uparrow$<br>68 |
|            |                    |                  |                    |                  |                    |                  |                    |                  |
|            | 92                 | 75               | 86                 | 80               | 76                 | 62               | 68                 | 72               |

durchnummiert. Der Mittelwert der Tröge 3 bis 8 ergibt sich zu 74 MV/m. Die Tröge 1 und 2 weichen davon um 20 MV/m beziehungsweise 15 MV/m ab. Die Felddifferenz wird dabei an den Übergängen der senkrechten Flanken ermittelt. Das Signal innerhalb der Puffer wird nicht berücksichtigt.

Für eine genaue Analyse wurde ein Quantentrog (Nummer 5) einzeln vermessen. Abbildung 4.37 zeigt das Hellfeldbild der Detailaufnahme von Trog 5. Bei der Messung trat aufgrund der hohen Vergrößerung deutliche Probendrift auf. Dies ist in der Krümmung der eigentlich atomar glatten Grenzfläche erkennbar. Aus diesem Grund wurde bei der Auswertung der Linienanalyse nur über eine Breite von 50



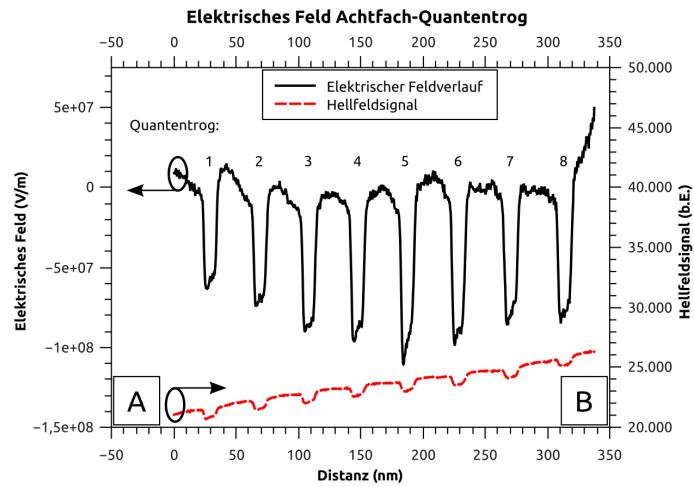
**Abbildung 4.35:** Hellfeldbild des Achtfach-Quantentrogs. Im kontrastverstärkten Bildausschnitt in der Mitte sind die mit 1 bis 8 nummerierten Quantentroge sehr gut erkennbar. Unten rechts kann man den Ausschnitt eines „V“-förmigen Kristallbaufehlers („V-Pit“) erkennen. Die Linienanalyse ist von „A“ nach „B“ durchgeführt.

Pixeln integriert.

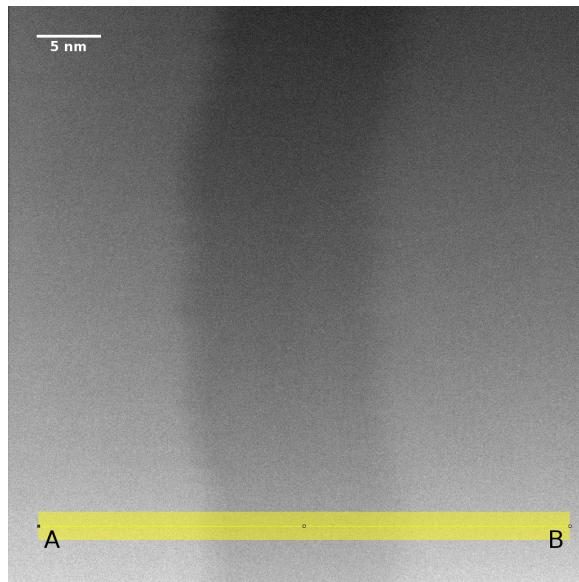
In Abbildung 4.38 ist der Feldverlauf dargestellt. Von links nach rechts ist der Übergang vom Puffer zum Quantentrog und weiter zum nächsten Puffer erkennbar. Das Signal des elektrischen Feldes ändert sich an der Grenzfläche 1 um etwa 65 MV/m, an Grenzfläche 2 um etwa 40 MV/m. Dies geschieht an beiden Grenzflächen innerhalb einer Breite von  $(2,5 \pm 0,3)$  nm. Der Bereich zwischen den Grenzflächen ergibt eine Breite von ca.  $(12,2 \pm 0,3)$  nm, was sehr gut zu der nominellen Breite von 12 nm passt.

## 4.5 Interpretation der DPC-Messungen

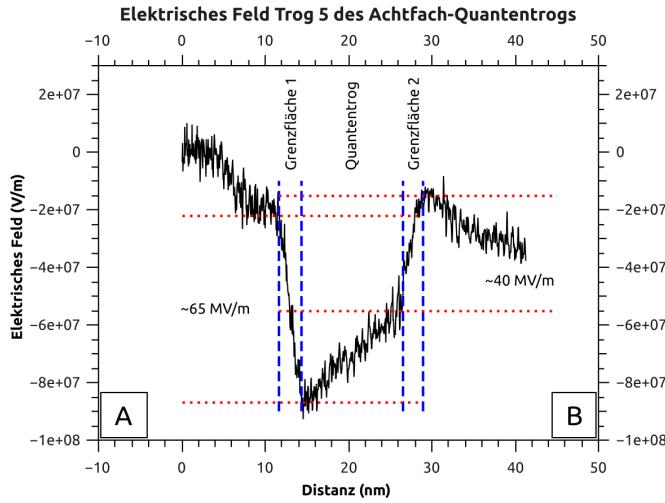
Um die DPC-Ergebnisse einordnen und ihre Aussagekraft abschätzen zu können, wurden weitere Daten zum Vergleich herangezogen. Diese stammen von den verschiedenen Kooperationspartnern und wurden mit deren (Standard-)Charakterisierungsverfahren untersucht. Sie umfassen unter anderem Simulationen, Photolumineszenzmessungen und Bestimmung des In-Gehalts.



**Abbildung 4.36:** Elektrisches Feld des Achtfach-Quantentrogs. Die ersten beiden Quantentroge (Trog 1 und 2) zeigen einen Anstieg der Signaldifferenz, während sich die restlichen sechs im Rahmen der Messgenauigkeit ein konstantes Signal ergibt. Die Feldänderungen sind in Tabelle 4.9 aufgelistet.



**Abbildung 4.37:** Hellfeldbild von Trog 5 des Achtfach-Quantentrogs. Im Unterschied zu Abbildung 4.35 scheint der Quantentrog „verbogen“. Dies ist ein Messartefakt, welches durch die sich stärker auswirkende Probendrift bei hohen Vergrößerungen auftreten kann. Die Linienanalyse ist von „A“ nach „B“ mit einer aufgrund der Drift reduzierten Breite von 50 Pixeln durchgeführt.

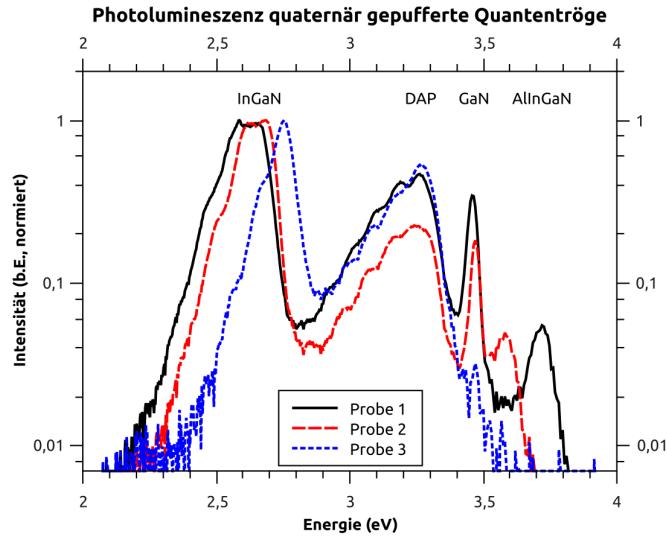


**Abbildung 4.38:** Elektrisches Feld von Trog 5 des Achtfach-Quantentrogs. Man kann eine Änderung des Feldsignals an den Grenzflächen von jeweils etwa 65 MV/m und 40 MV/m erkennen. Beide Grenzflächen haben eine Breite von ca.  $(2,5 \pm 0,3)$  nm, der Trog von ca.  $(12,2 \pm 0,3)$  nm.

#### 4.5.1 pn-Übergang

Der pn-Übergang wurde mit Hilfe der Software *nextnano* [122–124] simuliert [125]. Es wurde dabei die idealisierte Struktur laut Wachstumsrezept herangezogen. Für die Peak-Amplitude des elektrischen Feldes ergibt sich ein Wert von ca. 600 MV/m bei einer Breite von etwa 9 nm [125]. Mit diesen Annahmen ist die Übergangszone zu schmal und die Peak-Amplitude verglichen mit den Messungen deutlich zu groß. Nimmt man an, dass die Mg-Akzeptoren teilweise passiviert sind [126], sodass die effektive Donatorkonzentration gegenüber der nominellen um eine Größenordnung verringert ist, folgt daraus eine bessere Übereinstimmung. Mit dieser Annahme resultiert daraus ein Feld von etwa 400 MV/m bei einer Breite von rund 15 nm.

Im Gegensatz dazu liegt der Peak des gemessenen Feldes bei etwa 170 MV/m. Die Breite, über welche integriert wird, beträgt 40 nm, wobei der Hauptteil des Signals im Bereich von 25 nm bis 30 nm liegt. Die Abweichung, welche sich sowohl in Breite als auch Feldstärke zu einem Faktor von etwa 2,5 ergibt, kann durch die in der Simulation nicht berücksichtigte Verbreiterung der Raumladungszone durch Abschirmladungen und die endliche Breite des Elektronenstrahls erklärt werden (siehe Abschnitt 4.1.2). Weiter ist ein Unterschätzen des Feldes aufgrund von Kontamination wahrscheinlich (siehe Abschnitt 4.3.3).

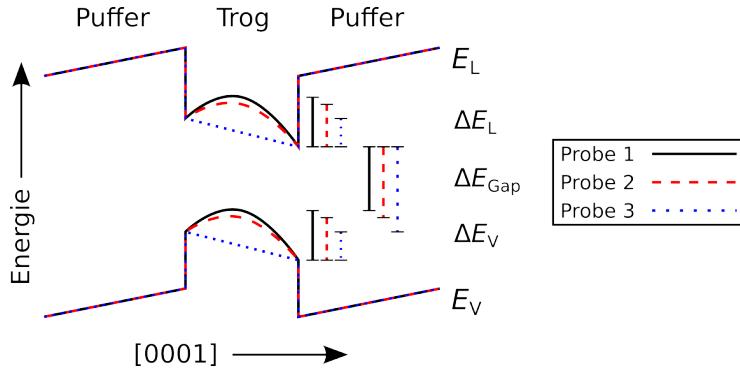


**Abbildung 4.39:** Logarithmisch aufgetragene Ergebnisse der Photolumineszenz-Messungen der quaternär gepufferten Quantentröge [127]. Die deutlich unterscheidbaren Peaks sind mit „InGaN“ für den Quantentrog, „GaN“ für das Substrat und „AlInGaN“ für den quaternären Puffer gekennzeichnet. „DAP“ steht für „Donor-Acceptor-Pair“ und resultiert aus (unerwünschter) Lumineszenz von (lokalsierten) Defekten im GaN-Volumenmaterial [128].

Zusammengefasst kann das Potential und der genaue Verlauf eines ca. 40 nm pn-Überganges im Rahmen der Messgenauigkeit erfolgreich bestimmt werden. Zusätzlich ist es möglich, die durch die Schichtfolge bedingte innere Struktur im Ansatz aufzulösen. Der durch Kanteneffekte beeinflusste Signalverlauf kann im vorliegenden Fall gut linear approximiert werden. Das quantitative Ergebnis wird dadurch nicht beeinträchtigt, da nur die Signaldifferenz zur Feldbestimmung herangezogen wird. Der Vergleich des experimentellen Ergebnisses mit Simulationen stimmt sehr gut überein, wenn man einen auch durch die Strahlbreite bedingten endlichen Übergangsbereich annimmt. Im Vergleich zur Simulation ergibt sich ein Faktor von 2,5, um den das maximale Feld reduziert und die Breite vergrößert ist.

#### 4.5.2 Quaternär gepufferte Quantentröge

An der vorliegenden Probenserie wurden zur Charakterisierung der optischen Eigenschaften Photo- (PL) und Kathodolumineszenz-Untersuchungen (CL) durchgeführt [127, 129]. Das Elektronensystem der Probe wird dabei optisch (PL) oder durch Elektronenbeschuss (CL) angeregt und das durch spontane Emission erzeugte Spektrum



**Abbildung 4.40:** Mögliche Erklärung für die Ergebnisse der Photolumineszenz-Messungen der quaternär gepufferten Quantentröge über Veränderungen der Bandstruktur innerhalb des Quantentrogs. Die qualitative, ohne Rechnung entstandene Grafik könnte sowohl die Verschiebung als auch die variierende Halbwertsbreite des InGaN-Peaks in den PL-Daten in Verbindung mit den DPC-Messungen erklären.

gemessen. Abbildung 4.39 zeigt (normierte) PL-Spektren der drei beschriebenen Proben. Die deutlich erkennbaren Peaks im PL-Signal sind mit „InGaN“ für die Quantentröge, „GaN“ für das Volumenmaterial und „AlInGaN“ für den Puffer bezeichnet. Die unerwünschte Lumineszenz aus (lokalisierten) Defekten ist mit „DAP“ („Donor-Acceptor-Pair“) gekennzeichnet [128].

Die Ergebnisse der PL- und CL-Messungen stimmen qualitativ überein, weshalb nur die PL-Daten diskutiert werden. Von Probe 1 bis 3 ergibt sich mit steigendem In-Fluss beim Wachstum im Puffer eine Blauverschiebung der Wellenlänge des Quantentrogs. Diese ist bei Probe 1 und 2 im Gegensatz zu Probe 3 weniger stark ausgeprägt. Bei den ersten beiden Proben kann man im Bereich des Quantentrogs auch eine Art „Plateaubildung“ erkennen, welche die Halbwertsbreite im Gegensatz zu Probe 3 deutlich vergrößert. Es scheint eine Art „Kontinuum“ von Übergängen vorhanden zu sein (für eine detaillierte Beschreibung siehe unten).

Ganz rechts kann den mit „AlInGaN“ bezeichneten Peak des Puffers erkennen, der mit steigendem In- und somit sinkendem Al-Gehalt zu kleineren Energien verschoben wird. Dies kann direkt durch die deutlich größere Bandlücke von AlN verstanden werden. Da AlN eine Bandlücke von etwa 6,2 eV hat, verschiebt sich das Spektrum bei sinkendem Al-Gehalt zu kleineren Wellenlängen. Für Probe 3 ist das Signal schließlich in den Bereich des „DAP“-Peaks gewandert und kann nicht mehr aufgelöst werden. Der mit „GaN“ gekennzeichnete Substrat-Peak ist energetisch

stabil, ändert jedoch vor allem bei Probe 3 sehr deutlich die Intensität. Der Grund dafür konnte nicht ermittelt werden. Der DAP-Peak zeigt auf seiner niederenergetischen Seite zusätzliche periodische Strukturen, welche von Phononen stammen und als „Phononenreplika“ bezeichnet werden. Damit bezeichnet man Rekombinationen an Störstellen, bei denen Phononen beteiligt sind (siehe beispielsweise [130, 131]).

Betrachtet man die Messungen der elektrischen Felder in den Trögen (siehe Abbildungen 4.23, 4.26 und 4.29), so scheinen die PL-Ergebnisse bei Probe 1 und 2 durch die starken Feldänderungen innerhalb des jeweiligen Quantentrogs beeinflusst zu sein, was eine im Quantentrog verbogene Bandstruktur zur Folge haben sollte. Weiter ist wahrscheinlich, dass Polarisationsladungen an den Grenzflächen der Proben 1 und 2 Einfluss auf die lokalen Felder haben, wohingegen diese bei Probe 3 reduziert sind.

Abbildung 4.40 zeigt einen Vorschlag für die qualitative Beschreibung der PL- und DPC-Ergebnisse. Für eine detaillierte Simulation der Bandstruktur sind die Daten, unter anderem wegen fehlender Kenntnis der genauen Zusammensetzung des Puffers, zu lückenhaft. Grundsätzlich lassen sich zwei Effekte aus den PL-Daten ablesen. Einerseits erfolgt von Probe 1 bis 3 eine Blauverschiebung des Quantentrogsignals und andererseits wird die Halbwertsbreite geringer. Beide Tendenzen lassen sich durch den in Abbildung 4.40 skizzierten Bandverlauf erklären. Durch das starke elektrische Feld im Quantentrog wird die Bandstruktur lokal verändert. Aus einer Verbiegung von Valenz- und Leitungsband resultiert eine Verbreiterung der Übergangsenergie, welche mit  $\Delta E_V$  und  $\Delta E_L$  bezeichnet ist. Dies würde die von Probe 1 nach 3 geringer werdende Halbwertsbreite erklären. Gleichzeitig würde damit auch die Bandlückenenergie  $\Delta E_{\text{Gap}}$  größer, was die Blauverschiebung erklären könnte. Sie ändert sich von etwa 2,6 eV bei Probe 1 zu ca. 2,75 eV bei Probe 3.

Die ohne Einflüsse berechnete Bandlücke von InGaN, welche sich aus der Interpolation der beiden zugrunde liegenden, binären Verbindungen InN und GaN ergibt, lässt sich über

$$E_{\text{Gap}}(\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}) = x \cdot E_{\text{Gap}}(\text{InN}) + (1 - x) \cdot E_{\text{Gap}}(\text{GaN}) - x \cdot (1 - x) \cdot C \quad (4.14)$$

bestimmen [37].  $C$  ist dabei der sogenannte „Bowing“-Parameter, welcher die Abweichung vom linearen Zusammenhang berücksichtigt und mit 1,4 eV angegeben wird [37].

Setzt man für die Bandlücken Werte von 3,4 eV (GaN) und 0,7 eV (InN) ein, so erhält man für einen Quantentrog mit 15 % Indium einen Wert von 2,82 eV. Berechnet man für die theoretisch erwartete und experimentell mit PL gemessene

Energie die Emissionswellenlänge, so ergeben sich 451 nm (bei 2,75 eV) und 440 nm (bei 2,82 eV) (vergleiche auch [24]). Es resultiert eine Rotverschiebung von 11 nm beziehungsweise 70 meV gegenüber dem erwarteten Wert, dessen Effekt gut durch den QCSE erklärt werden kann. Es finden sich dafür Werte von 35 meV [25] bis etwa 200 meV [18]. Dieses Ergebnis ist plausibel, da bei einem sehr ähnlichen Quantentrog (4 nm Breite, 10 % Indium) eine Verschiebung um 150 meV zu erwarten ist [40] und sich der QCSE allgemein durch das Produkt aus Quantentrogbreite und In-Gehalt charakterisieren lässt [24] und somit ein leicht erhöhter Wert wahrscheinlich ist.

Zusammenfassend wurde eine Serie von Proben untersucht, bei denen ein InGaN-Quantentrog in eine AlInGaN-Pufferschicht eingebettet ist. Die Serie eignet sich sehr gut, um den (kombinierten) Effekt von Polarisation und Verspannung auf die elektrischen Felder im Quantentrog zu untersuchen, da sie sich nur in einem Parameter unterscheiden. So können durch einen Vergleich der DPC-Ergebnisse zwischen den einzelnen Proben und mit den entsprechenden PL-Daten die Feldänderungen und deren Auswirkungen beschrieben, ein Vorschlag für die Erklärung der Effekte gemacht und die Stärke des QCSE abgeschätzt werden.

### 4.5.3 Doppelquantentrog

Der Verlauf des elektrischen Feldes an den Grenzflächen zwischen Puffer und Quantentrog lässt sich über Polarisationsladungen verstehen, welche dort durch Änderung der Gitterkonstanten erzeugt werden. Der für alle vier Grenzflächen gleiche Wert der Feldänderung von etwa 20 MV/m kann durch die Flächenladungsdichten aufgrund der Verzerrung des Kristallgitters im Quantentrog erklärt werden. Bei einem In-Gehalt von 4 % erwartet man laut Theorie eine Ladungsträgerdichte durch spontane Polarisation von  $P_{sp} = -3,29 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  und durch piezoelektrische Polarisation von  $P_{pz} = 3,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  [43, 47, 48, 132]. Die Vorzeichen der beiden Polarisationsarten sind für GaN unterschiedlich, was sich in den Werten für die Polarisation äußert [48]. Zusammengenommen ergibt sich eine Polarisation in Ladungen von:

$$P = P_{sp} + P_{pz} = -2,9 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \quad (4.15)$$

Umgerechnet in Coulomb pro Quadratmeter ergibt sich ein Wert von:

$$P = -0,0046 \text{ C m}^{-2} \quad (4.16)$$

Das elektrische Feld lässt sich über

$$E = \frac{P}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \quad (4.17)$$

berechnen. Da sich für  $\varepsilon_r$  in der Literatur Werte im Bereich von 8,9 [39] bis 9,7 [133] finden, ergibt sich ein erwartetes Feld im Bereich von:

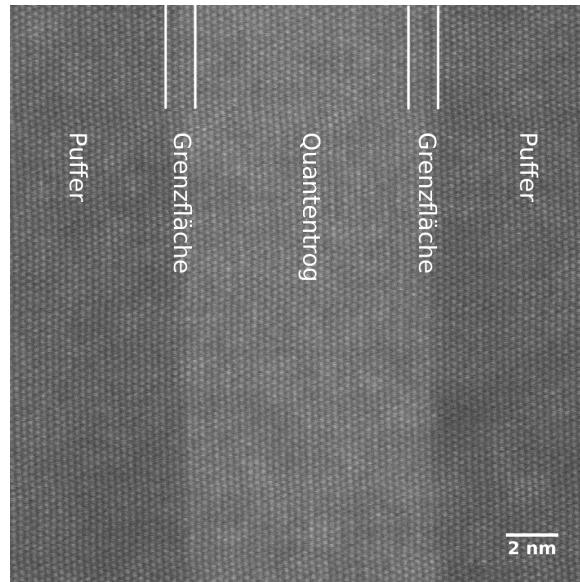
$$E = -54 \text{ MV/m} \text{ bis } -59 \text{ MV/m} \quad (4.18)$$

Dieser theoretische Wert berücksichtigt keine weiteren Reduktionsmechanismen wie Abschirmladungen oder Kristalldefekte, die das Feld um bis zu 80 % reduzieren können [43]. Das gemessene Feld von ca. 20 MV/m ist somit etwa 63 bis 66 % geringer als der maximal zu erwartende Wert. Das Ergebnis ist daher im Einklang mit den bisherigen experimentellen und theoretischen Ergebnissen.

Das Resultat von Gleichung (4.16) stellt die Flächenladung am Übergang von InGaN/GaN Schichten dar. Für GaN wurde 2012 der Unterschied der spontanen Polarisation von kubischer Zinkblende- und hexagonaler Wurtzit-Struktur experimentell bestimmt [22]. Dazu wurden beim Wachstum die Bedingungen so variiert, dass abwechselnd beide Phasen aufgetreten sind. Dabei ergab sich eine Flächenladung von  $(-0,022 \pm 0,007) \text{ C m}^{-2}$ . Dieser Wert ist etwa um einen Faktor 5 geringer, was hinsichtlich des vorliegenden Heteroüberganges mit geringem In-Gehalt plausibel ist.

Die Breite, innerhalb derer der Anstieg von 20 MV/m geschieht, liegt konstant im Bereich von etwa 3 nm. Bei einer Bewertung dieses Ergebnisses muss die in Abschnitt 4.5.1 bestimmte effektive Strahlbreite berücksichtigt werden. Da Änderungen von Materialeigenschaften an Grenzflächen erfahrungsgemäß eine endliche (Übergangs-)Breite haben, ist ein in erster Näherung linearer Anstieg der Verspannung, damit der Polarisation und folglich des Feldes zu erwarten. Abbildung 4.41 zeigt eine atomar aufgelöste HAADF-Aufnahme von Quantentrog 1 (vergleiche Abbildung 4.31). Der Trog ist aufgrund der größeren Streuung als heller Streifen erkennbar. Die beiden Grenzflächen sind durch weiße Striche markiert. Eine angenommene Breite der Übergangsschicht von etwa 1 nm bis 1,5 nm oder ca. 4 bis 6 Gallium-Atomlagen (2 bis 3 Einheitszellen) ist daher plausibel.

Die verkippten Signale innerhalb der Quantentröge und des Puffers können durch Felder erklärt werden, welche sich aufgrund der oben genannten Flächenladungen innerhalb der Schichten ausbilden. Da die Flächenladungen aufgrund der sich ändernden Verspannungszustände das Vorzeichen wechseln, hat das Feld innerhalb der



**Abbildung 4.41:** Atomar aufgelöste HAADF-Aufnahme der Doppelquantentrog-probe. Es zeigt den 10 nm breiten Quantentrog 1 (siehe Abbildung 4.31). Der Bereich der Grenzflächen ist angedeutet.

Quantentröge entgegengesetztes Vorzeichen verglichen mit dem Pufferbereich. Dies lässt sich an der unterschiedlichen Steigung des Signals innerhalb und außerhalb der Quantentröge erkennen [16, 51].

In diesem einfachen Bild würde man eine konstante Stärke des Feldes innerhalb der Quantentröge und des Puffers annehmen. Dieses Verhalten wird durch den Vergleich mit dem elektrischen Feld einer unendlich ausgedehnten Flächenladungsdichte, welche sich an den Übergängen der Heterostruktur ergibt, vorhergesagt. Allerdings ist bei einer realen Probengeometrie mit einer Probendicke von etwa 100 nm und einer Quantentrogbreite von 10 nm und 20 nm die Annahme einer unendlich ausgedehnten Ladungsdichte nur noch eingeschränkt gegeben. Weiter kann durch dreidimensionale Relaxation der verspannten Probenbereiche (siehe [119]) und Oberflächenadsorbate ein Teil der Verspannung und somit der Ladungen kompensiert werden. Dies führt zu einer Situation, welche sich zwischen der einer Flächenladung mit konstantem und einer Linienladung mit  $\frac{1}{r}$ -Potential ansiedeln lässt. Ein nichtkonstanter Potentialverlauf senkrecht zu den Grenzflächen ist daher wahrscheinlich. Ein im vorliegenden Fall gemessener Unterschied der Felder zwischen den beiden Trögen von mehr als einem Faktor 2 ist jedoch unerwartet.

Innerhalb der Forschergruppe „PolarCoN“ werden die gewachsenen Strukturen

auch simuliert [95]. Zur Abschätzung der erwarteten Feldstärken wurde die Bandstruktur des Doppelquantentrogs modelliert und die Felder daraus abgeleitet [134]. Es ergeben sich Werte von 45,5 MV/m für Trog 1 und 53,5 MV/m für Trog 2. Vergleicht man dies mit den DPC-Messungen der Feldänderung innerhalb der Quantentröge ohne die Grenzflächen, so ergeben sich Werte von ca. 15 MV/m und 35 MV/m für Trog 1 und 2.

Die Abweichung zwischen Simulation und Experiment von 35 % für Trog 2 kann durch Abschirmladungen plausibel erklärt werden. Die Abweichung von 67 % für Trog 1 ist im Vergleich dazu unerwartet hoch, was auf einen zusätzlichen Einfluss hindeutet. Eine mögliche Erklärung der deutlichen Unterschiede in den Feldwerten bietet der in Abschnitt 3.3 erläuterte Effekt, wonach sich Abschirmladungen inhomogen über die Quantentröge verteilen können und sich somit eine ungleichmäßige Abschirmung der Felder ergeben kann. Ladungen aus dem Volumenmaterial wandern zu den Trögen und werden überwiegend im ersten Trog gebunden. In Verbindung mit Unterschieden aufgrund eines abweichenden Potentialverlaufs könnte dies auch die deutliche Abweichung der theoretischen von den experimentellen Resultaten von Trog 1 erklären.

Zusammenfassend konnte für eine Doppelquantentrogprobe das elektrische Feld innerhalb der Tröge sowie die aufgrund der Verspannung erwarteten Flächenladungen erfolgreich vermessen werden. Dabei stimmen die experimentellen Ergebnisse im Rahmen der Messgenauigkeit mit den Simulationen überein. Der Einfluss der Quantentrogbreite konnte jedoch nicht geklärt werden.

### 4.5.4 Achtfach-Quantentrog

Wie grundsätzlich für die regelmäßige Struktur der Probe erwartet, ist das elektrische Feld der Quantentröge überwiegend homogen. Für die Tröge 3 bis 8 zeigt sich im Rahmen der Messgenauigkeit eine sehr gute Übereinstimmung der Ergebnisse. Es existiert jedoch eine Abweichung im Signal von Trog 1 und 2 relativ zu den restlichen Trögen. Eine mögliche Erklärung für diesen Effekt könnten Ladungen sein, die sich – wie schon im vorangegangenen Abschnitt erläutert – inhomogen über die Quantentröge verteilen [16]. Es lässt sich daraus folgern, dass Ladungsträger aus dem Volumenmaterial und dem (in Wachstumsrichtung betrachteten) unteren, dotierten Puffer überwiegend in die beiden ersten Tröge wandern und dort vorhandene Polarisationsladungen an den Grenzflächen im Gegensatz zu den folgenden Trögen (stärker) abschirmen (vergleiche Abschnitt 3.3). Die Stärke der Abschirmung liegt mit etwa 20 MV/m und 15 MV/m relativ zum Durchschnitt von Trog 3 bis 8

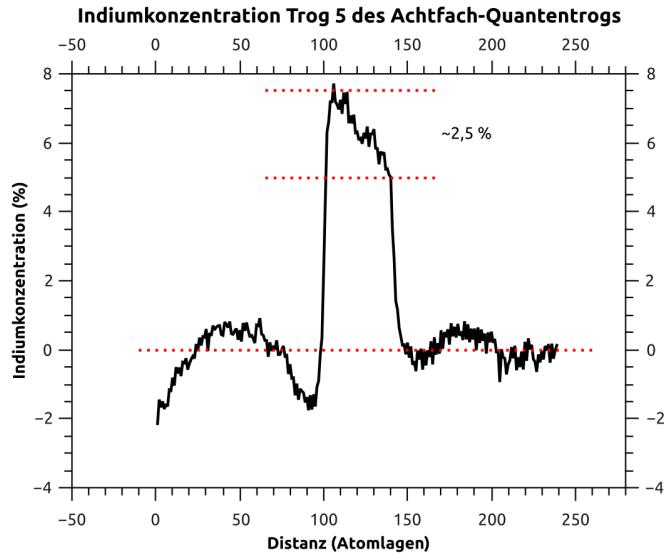
von 74 MV/m (entspricht 27 % und 20 %) in einem Bereich, der auch schon für die Doppelquantentrogprobe (vergleiche Abschnitt 4.5.3) ermittelt wurde.

Für die Achtfach-Quantentrogstruktur wurde, wie beim pn-Übergang, eine Simulation mit *nextnano* durchgeführt [125]. Es wurden ebenfalls – ausgehend vom Wachstumsrezept –  $\delta$ -förmige Schicht- und Dotiergrenzen angenommen und keine Abschirmeffekte berücksichtigt. Der Indiumgehalt der Tröge wurde als konstant angenommen.

Aus der Simulation ergibt sich im Rahmen der Vereinfachungen ein identischer Ladungs- und Feldverlauf für alle acht Quantentröge. Die Änderungen des elektrischen Feldes an den Grenzflächen resultieren in etwa 100 MV/m. Es tritt wie im Experiment ein asymmetrisches Signal innerhalb der Tröge auf. Ionisierte Donatoren im Pufferbereich führen zu Überschwingen an den Heterogrenzflächen. Eine auf die Simulationsergebnisse angewandte Faltung mit einer Gauß-Funktion soll den Einfluss der endlichen Strahlbreite auf das Resultat berücksichtigen. Von den 2 nm und 5 nm, welche als Halbwertsbreite angenommen wurden, ergibt sich für den kleineren der beiden Durchmesser die oben beschriebenen Werte und somit die beste Übereinstimmung. Sie passen auf den experimentell bestimmten Wert von knapp 3 nm (siehe Gleichung (4.4) in Abschnitt 4.5.1) und reproduzieren auch die gemessenen Felder besser.

Die erwartete Feldstärke liegt für diese Quantentrogstruktur in einem Bereich von 150 MV/m bis mehr als 300 MV/m, wenn man Abschirmeffekte vernachlässigt [19, 21, 33, 49, 50, 110]. Werden sie berücksichtigt, sind auch Werte unterhalb von 150 MV/m vorhergesagt [135]. In Quantentrögen mit einem In-Gehalt von 23 % wurde ein elektrisches Feld von 170 MV/m und 190 MV/m ermittelt [26]. Im Vergleich zu den vorliegenden Messungen unterscheiden sich die In-Konzentration und die gemessenen Felder um einen Faktor von knapp 3 (8 % In gegenüber 23 % In ergibt einen Faktor von 2,9, 74 MV/m gegenüber ca. 180 MV/m von etwa 2,5). Die Annahme eines Zusammenhangs nach Vegard [136] scheint somit als erste Näherung möglich, auch wenn das elektrische Feld – wahrscheinlich durch verstärkte Abschirmung bei steigenden Feldern – etwas ist als erwartet.

Eine genauere Auswertung der Daten kann an einer Detailaufnahme von Quantentrog 5 durchgeführt werden. Die Ergebnisse ähneln denen der Doppelquantentrogprobe (man beachte die unterschiedliche Steigung des Feldverlaufs, welcher sich aufgrund der unterschiedlichen Messrichtungen ergibt). Die Verkippung innerhalb der beiden Puffer und des Quantentrogs kann wieder durch die Felder erklärt werden, welche sich durch Polarisationsladungen an den Grenzflächen ergeben und unterschiedliche Vorzeichen haben. Die Signale an den beiden Übergängen unter-



**Abbildung 4.42:** Mit HAADF-STEM gemessene Indiumkonzentration von Trog 5 des Achtfach-Quantentrogs [137]. Es ist ein Gradient mit einer Änderung von 2,5 Prozentpunkten durch den Trog erkennbar, welcher die Ursache für die unterschiedliche Polarisation an den beiden Grenzflächen der Quantentröge ist. Die Position der Linienanalyse ist örtlich nicht identisch mit Abbildung 4.37, was aufgrund der Homogenität der gesamten Probe keine Einschränkung darstellt.

scheiden sich hingegen im Vergleich zum Doppelquantentrog. Sie sind nicht mehr symmetrisch, sondern ergeben ein Verhältnis von  $\frac{65 \text{ MV/m}}{40 \text{ MV/m}} \approx 1,6$ . Ausgehend von den oben getroffenen Annahmen müsste ein Unterschied im Grenzflächensignal auch eine unterschiedliche Verspannung beziehungsweise daraus folgend eine unterschiedliche Polarisation bedeuten.

In der Tat kann dies durch Messungen des In-Gehalts bestätigt werden [119, 137]. In Wachstumsrichtung zeigen die Quantentröge 1 bis 6 jeweils eine Veränderung über die Trogbreite von  $(7,4 \pm 0,5) \%$  auf  $(5,1 \pm 0,5) \%$  In. Abbildung 4.42 zeigt beispielhaft die In-Konzentration von Trog 5. Die Position der Linienanalyse ist örtlich nicht identisch mit Abbildung 4.37, was aufgrund der Homogenität der Probe keine Einschränkung darstellt. Es ist ein Gradient mit einer Änderung von etwa 2,5 Prozentpunkten deutlich erkennbar. Die Tröge 7 und 8 weichen von diesem Verhalten ab. Die Variation des In-Gehalts ist bei ihnen nicht mehr monoton; sie besitzen ein mehr oder weniger stark ausgeprägtes, jedoch nicht symmetrisches Maximum nahe der Mitte des Quantentrogs. Nimmt man ihre (Maximal-)Werte in die Berechnung auf, ergeben sich  $(8,7 \pm 0,5) \%$  und  $(5,7 \pm 0,5) \%$  In am Beginn

und Ende des Quantentrogs. Setzt man die Konzentrationen ins Verhältnis, ergibt sich etwa ein Wert von 1,5. Die Steigerung des In-Gehalts könnte möglicherweise auf eine Anreicherung von In in der Wachstumskammer während der Epitaxie zurückzuführen sein. Dies müsste auch einen geringen Anteil von In im Puffer zur Folge haben, was aber aufgrund des zu erwartenden und mit etwa 0,5 % so gut wie nicht auflösbaren Gehalts nicht vermessen wurde. Tabelle A.1 zeigt die In-Gehalte der einzelnen Tröge. Eine naheliegende Erklärung für die Abweichung der Verhältnisse von In-Gehalt (1,5) und elektrischem Feld (1,6) ist eine ungleichmäßige Verteilung der Abschirmladungen beziehungsweise eine Überlagerung mit dem Signal der asymmetrischen Verteilung der Donator-Ladungsträger.

Beim Vergleich der Übersichtsmessung und der Detailaufnahme von Trog 5 fällt eine Abweichung auf. Die Ergebnisse für die Polarisationsladungen an den Grenzflächen scheinen sich für die Übersichts- und Detailmessung zu unterscheiden. Eine mögliche Erklärung stellt der Elektronenstrahl selbst dar. Wie am Ende von Abschnitt 2.2 beschrieben, kann der Elektronenstrahl die Probe zum Teil deutlich beeinflussen, indem er darin Elektron-Loch-Paare erzeugt. Ohne innere elektrische Felder würde die erzeugte Ladungswolke quasistationär den Strahl am jeweiligen Messort lokal abschirmen und ihm folgen. Dabei sollte aber keine Abhängigkeit von der Rastergeschwindigkeit existieren und beide Messungen gleiche Ergebnisse liefern. Da in den Trögen jedoch Felder vorhanden sind, spüren die Elektronen und Löcher das Feld und werden örtlich separiert. Die Geschwindigkeit, mit der dies geschieht, kann über die Beweglichkeit von Exzitonen abgeschätzt werden, welche für GaN einen Wert von  $10 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  ergibt [138]. Bei einer angenommenen Feldstärke von  $100 \text{ MV/m}$  erhält man daraus eine Driftgeschwindigkeit von etwa  $1 \times 10^5 \text{ m/s}$ . Ein Vergleich mit der Literatur ergibt ähnliche, tendenziell noch etwas größere Werte [139–143]. Eine Sättigung der Driftgeschwindigkeit ergibt sich oberhalb einer Feldstärke von  $10 \text{ MV/m}$  bis  $20 \text{ MV/m}$ , was in diesem Fall gegeben ist. Die Rastergeschwindigkeit des Strahls während der Messung liegt im Bereich von  $1 \times 10^{-5} \text{ m/s}$  bis  $1 \times 10^{-6} \text{ m/s}$  und somit deutlich unterhalb der Driftgeschwindigkeit. Da sich der Strahl während der Messung eines Pixels nicht bewegt und zusätzlich üblicherweise fünffach gemittelt wird, scheidet ein Einfluss der Strahlgeschwindigkeit auf die gemessenen Unterschiede im Feldsignal aus.

Eine mögliche Erklärung ergibt sich jedoch beim Betrachten des Messfensters. Die Übersichtsaufnahme wurde bei einer Vergrößerung von 270 000-fach, die Detailaufnahme bei 2 200 000-fach aufgenommen. Beim Rastern über alle acht Quantentröge (siehe Abbildung 4.35) befindet sich der Strahl nur eine relativ kurze Zeit im Vergleich zur gesamten Rasterzeile innerhalb eines Quantentrogs (12 nm Quantentrog

bei einem Messfenster von etwa 340 nm ergibt etwa 3,5 % einer Zeile). Die Ladungsträger, welche in dieser Zeit erzeugt werden, bewegen sich durch die große Driftgeschwindigkeit so gut wie instantan an die Grenzflächen zwischen Trog und Puffer und können dort das Feld abschirmen. Sobald der Strahl den Quantentrog verlässt, endet die Generierung und die Rekombination von Elektronen und Löcher überwiegt. Die Abschirmung nimmt wieder ab.

Bei der Messung eines einzelnen Trogs ist der Strahl relativ lange im Bereich des Quantentrogs (12 nm von etwa 40 nm ergibt ca. 30 %). Da die Rastergeschwindigkeit konstant ist, ergibt sich eine knapp zehnfach höhere Verweildauer des Strahls beim Rastern eines einzelnen Trogs. Die als konstant angenommene Erzeugungsrate führt so aufgrund der größeren Zeit zu einer höheren Anzahl von Ladungsträgern.

Zwischen dem Wert von etwa 65 MV/m beim Betrachten der größeren der beiden Flanken des einzelnen Trogs und den durchschnittlich 74 MV/m bei Messung aller acht Quantentroge resultiert ein Unterschied von knapp 10 MV/m. Nimmt man eine Polarisation von 110 MV/m bis 120 MV/m an, welche auf einer Abschätzung mit 8 % Indium basiert, so ergibt sich eine Abschirmung von 8 % bis 9 % des theoretisch maximalen Wertes (vergleiche Abschnitt 4.5.3). Betrachtet man die Änderung zwischen den beiden experimentellen Werten von 65 MV/m und 74 MV/m, so resultiert daraus eine Abschirmung von etwa 12 %.

Dies bedeutet, dass die Rastergeschwindigkeit während der Messung Einfluss auf das resultierende Feld hat. Sie muss also bei Experimenten mit Vergrößerungen jenseits von etwa 500 000-fach einbezogen und je nach Anforderung der Messung ein Kompromiss zwischen Auflösung und Beeinflussung gefunden werden. Eine weitreichende Konsequenz dieser Ergebnisse für TEM-Untersuchungen von GaN und ähnlichen Materialien wäre die Notwendigkeit, Strahleffekte (besser) zu berücksichtigen.

Zusammenfassend war es möglich, den Feldverlauf einer Achtfach-Quantentrog-probe zu vermessen und dabei Abschirmungseffekte bei den vom Substrat aus gesehen ersten beiden Trögen nachzuweisen. Durch HAADF-Messungen konnte der In-Gehalt der Tröge bestimmt werden [137], welcher sich als nicht konstant über die Breite herausstellte. Schlussendlich gelang es, den möglichen Einfluss des Elektronenstrahls auf die DPC-Messungen selbst zu ermitteln.

# 5 Fehlerbetrachtung

In diesem Abschnitt soll eine genaue Darstellung der Fehler durchgeführt werden, welche bei der Berechnung des elektrischen Feldes auftreten. Dazu werden die vier Größen, welche in Gleichung (2.24) eingehen, separat betrachtet und ihre Unsicherheit abgeschätzt.

## 5.1 Fehler der DPC-Kalibrierung

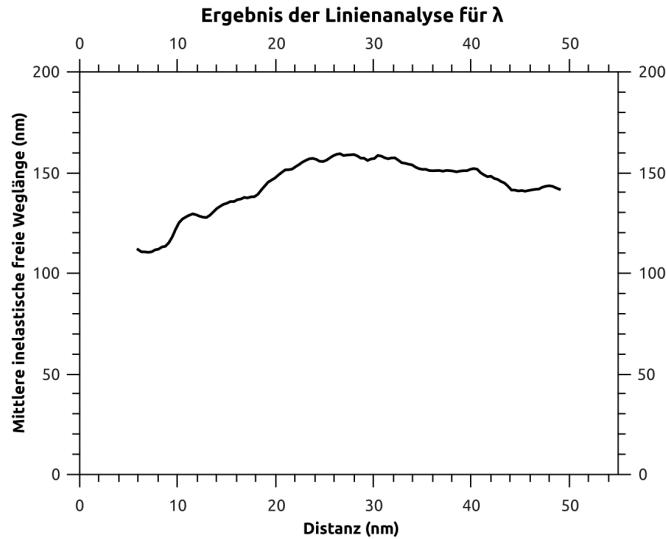
Die im Rahmen der Kalibrierung des DPC-Aufbaus bestimmte Genauigkeit ergibt sich zu [85]:

$$\frac{\Delta I_{\text{DPC-Signal}}}{42 \pm 3} \quad (5.1)$$

Der Fehler der DPC-Kalibrierung resultiert damit in  $\frac{3}{42} = 7\%$ .

## 5.2 Fehler der Dickenbestimmung

Der Fehler der Dickenbestimmung umfasst zwei Komponenten. Er setzt sich aus dem Fehler der Messungen mit HAADF-STEM und EFTEM zusammen. Der Fehler für die HAADF-Messung wird laut Abschätzung der Arbeitsgruppe, welche die Methode entwickelt hat, mit etwa 5 nm angenommen (Stand 2013, [144]). Bei einer mittleren Probendicke von üblicherweise mehr als 100 nm resultiert eine Obergrenze von 5 %. Dieser Fehler wird zu dem Wert addiert, der sich aus den Ergebnissen der Dickenbestimmung mit EFTEM ableitet. Die mittlere inelastische freie Weglänge  $\lambda$  ergibt sich nach Gleichung (4.9) aus der Divison der HAADF- durch die EFTEM-Daten. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.1 dargestellt. Es werden nur die Bereiche mit reinem GaN berücksichtigt, der Puffer beziehungsweise Quantentrog ist aus der Auswertung ausgeschlossen. Mit dem Ergebnis für  $\lambda$  von  $(144 \pm 13)$  nm (entspricht 9 %), das sich aus dem Mittelwert und der Standardabweichung aus den Daten von Abbildung 5.1 ergibt, resultiert ein Gesamtfehler der Dickenbestimmung von  $5\% + 9\% = 14\%$ .



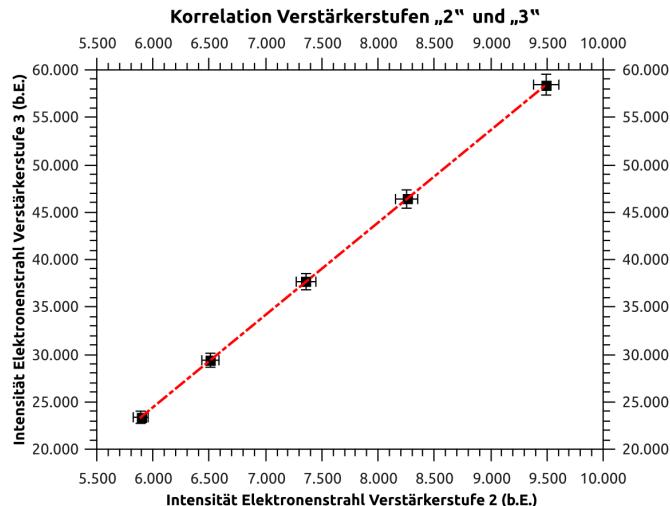
**Abbildung 5.1:** Ergebnis der Linienanalyse der mittleren inelastischen freien Weglänge. Sie ergibt sich durch Gleichung (4.9) aus den Daten von „HAADF-STEM“ und „EFTEM nach Plasmareinigung“ und berücksichtigt ausschließlich GaN-Bereiche (siehe Abbildung 4.8).

### 5.3 Fehler des DPC-Verstärkers

Die Bestimmung des Umrechnungsfaktors zwischen den Verstärkerstufen erfolgt ohne Probe. Dazu wird der Elektronenstrahl im TEM-Modus auf den DPC-Detektor gelenkt und homogen beleuchtet. Für beide Verstärkerstufen werden jeweils mehrere 10 000 Messwerte aufgenommen und gemittelt. Dies wird im vorliegenden Fall für insgesamt fünf verschiedene Beleuchtungsintensitäten wiederholt. Abbildung 5.2 zeigt die Verhältnisse der Stufen „3“ und „2“. Die Abszisse zeigt die Intensität von Stufe „2“, die Ordinate von Stufe „3“ in beliebigen Einheiten. Die Fehlerbalken geben jeweils die Standardabweichung an. Die Fitgerade hat die Form:

$$f_{\text{Fit}}(x) = (9,7 \pm 0,3) \cdot x - (3,4 \pm 0,2) \times 10^4 \quad (5.2)$$

Die Steigung der linearen Fitkurve ergibt den Umrechnungsfaktor, welcher somit in 9,7 resultiert. Der Fehler ergibt sich damit zu 3 %. Der endliche Y-Achsenabschnitt resultiert aus der Konfiguration des letzten Verstärkers. Ohne Beleuchtung ergibt sich ein „Nullsignal“ von etwa 4000 Einheiten bei  $y = 0$ . Dies ist für beide Verstärkerstufen konstant. Dieser Punkt kann als „effektiver Nullpunkt“ betrachtet werden.



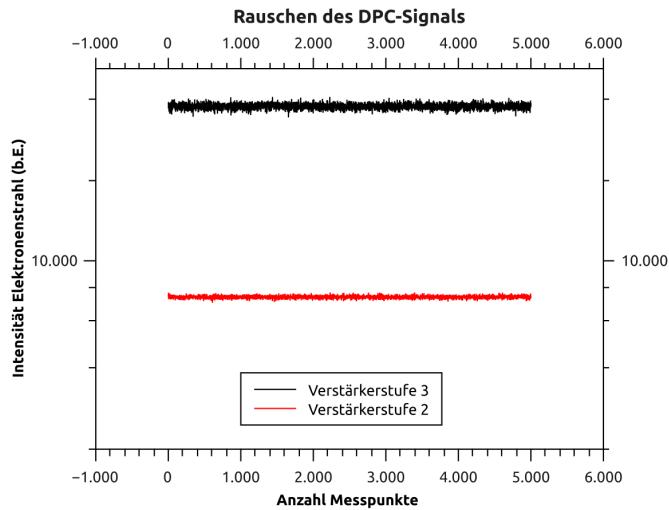
**Abbildung 5.2:** Ergebnis der Korrelation der DPC-Verstärkerstufen. Es ist für jeden Messpunkt jeweils das Ergebnis der Stufen „3“ und „2“ inklusive Fehlern gegeneinander aufgetragen. Beide Achsen zeigen die jeweiligen Werte für jede der 5 Messintensitäten in beliebigen Einheiten. Die Steigung des linearen Fits ergibt den Umrechnungsfaktor zwischen beiden Stufen.

Da bei den Messungen sichergestellt wird, dass weder die obere noch die untere Messbereichsgrenze erreicht wird, resultiert daraus keine Einschränkung.

## 5.4 Fehler der Intensitätsnormierung

Im Rahmen des im vorigen Abschnitt bestimmten Verstärkungsfaktors werden bei stationärem Strahl und ohne Probe eine Reihe von Messwerten aufgenommen. Diese Daten erlauben auch eine Abschätzung des Rauschens des gesamten Messaufbaus. Abbildung 5.3 zeigt einen Ausschnitt von 5000 der knapp 40 000 Messpunkte. Über alle 40 000 Punkte gemittelt ergibt sich der Mittelwert und die zugehörige Standardabweichung für Stufe „2“ zu  $(7360 \pm 87)$  und für Stufe „3“ zu  $(37663 \pm 855)$ , welches 1 % beziehungsweise 2 % relativen Fehler bedeutet.

Da die Kalibrierung des DPC-Signals unter gleichen Bedingungen (stationärer Strahl, keine Probe) durchgeführt wurde, wird derselbe Fehler auch für die Intensität bei der Kalibrierung ( $I_{\text{Kalibrierung}}$ ) angenommen. Es resultiert daher für die Intensitätsnormierung ein Fehler von 3 %.



**Abbildung 5.3:** Ergebnis der Rauschanalyse des DPC-Signals. Die untere Kurve zeigt die Messung mit Verstärkerstufe „2“, die obere mit Stufe „3“. Beide Reihen wurden bei konstanter Beleuchtung und stationärem Strahl aufgenommen. Als Rauschen wird jeweils die Standardabweichung der beiden Datenreihen herangezogen.

## 5.5 Gesamtfehler und Vergleich mit anderen Methoden

Der Gesamtfehler  $\delta E$  für die Bestimmung des elektrischen Feldes mit DPC errechnet sich aus der Summe der relativen Fehler. Es ergibt sich somit eine Genauigkeit für die Bestimmung des elektrischen Feldes von:

$$\delta E = 7\% + 14\% + 3\% + 3\% = 27\% \quad (5.3)$$

Im Vergleich auch mit anderen Methoden scheint der Fehler von 27% bei DPC vergleichsweise groß zu sein. Da der Fehler der Dickenbestimmung jedoch nur bei der Festlegung der mittleren inelastischen freien Weglänge auftritt, beeinflusst er die Genauigkeit des DPC-Signals selbst nicht. Er macht sich somit nur in der Genauigkeit der absoluten Angabe des elektrischen Feldes bemerkbar. Die relativen Änderungen haben eine größere Genauigkeit, wie auch die Abschätzung der Auflösungsgrenze aufgrund der minimalen Strahlablenkung zeigen (vergleiche Abschnitt 2.4.5). Die darin ermittelte Grenze von etwa 9 MV/m für eine angenommene Probendicke von 100 nm stimmt sehr gut mit dem Rauschen des Feldsignals in den Pufferbereichen des Achtfach-Quantentrogs von etwa 10 MV/m überein und ergibt im Vergleich mit

dem durchschnittlichen Ergebnis für das Feld von 74 MV/m einen Fehler von 12 %. Lässt man den Anteil des Fehlers der Dickenbestimmung von 14 % am Gesamtfehler unberücksichtigt, so erhält man für die Bestimmung von relativen Änderungen des elektrischen Feldes einen Fehler von 13 %. Der Fehler soll im Folgenden mit Literaturergebnissen verglichen werden.

Die zur Bestimmung der Probendicke benutzte Methode der mittleren inelastischen freien Weglänge ist seit etwa 20 Jahren anerkannt. Da unerwünschte Kontamination die Messungen zum Teil deutlich beeinflusst, variieren die angegebenen Ergebnisse zum Teil sehr stark. So finden sich Werte von 149 nm [33] bis hinab zu 61 nm (verwendete Beschleunigungsspannung 200 keV, vergleiche Gleichung (2.6)) [30]. In beiden Veröffentlichungen ist kein Fehler angegeben. Ein Vergleich dieser Ergebnisse mit dem vorliegenden Wert für  $\lambda$  ist darüber hinaus nicht möglich, da in der ersten Veröffentlichung keine Berechnungsmethode oder Referenz genannt wird und in der zweiten Veröffentlichung der experimentelle Akzeptanzwinkel des EELS nicht angegeben ist.

Alternativ kann die Dicke mit Hilfe der Konvergenzstrahlelektronenmikroskopie („Convergent Beam Electron Microscopy“ – CBED) bestimmt werden. Dabei werden experimentelle Beugungsbilder, welche sich abhängig von der durchstrahlten Probendicke ändern, mit simulierten Daten verglichen. In der Literatur finden sich für diese Methode Fehler von beispielsweise  $55 \pm 3$  und  $(67 \pm 5)$  nm [29]. Dies entspricht relativen Fehlern von 5,5 und 7,5 %. Wie jedoch in [28] berichtet wird, können Materialveränderungen auf den Probenoberflächen auftreten, welche eine Dicke von bis zu 25 nm auf jeder Seite haben können. Für eine Probe mit 150 nm würde das einen möglichen Fehler von 33 % bedeuten.

Auch für die Feldbestimmung ergibt sich eine große Bandbreite an veröffentlichten Genauigkeiten. Bei der oft verwendeten Elektronen holografie ist das Messsignal – die Phasenverschiebung – proportional zum Produkt aus Dicke und Potential. Oft wird beides ohne separate Messung der Dicke aus einer Aufnahme extrahiert. Im Potential ist neben dem gewünschten Messsignal zusätzlich auch das (von der genauen Zusammensetzung abhängige) innere Potential des Materials enthalten. Es müssen somit mehrere Informationen voneinander getrennt werden. Darüber hinaus ist auch der Wert für das innere Potential, welches über Simulationen bestimmt wird, noch nicht abschließend bestimmt und somit mit einer gewissen Unsicherheit behaftet. Für GaN ergeben sich Abweichung des inneren Potentials im Bereich von 15 % [145]. Je nach Veröffentlichung ergeben sich somit Fehler der elektrischen Felder mit Holografie bis zu 30 % [27, 34] oder werden nicht erwähnt [32].

Mit Mikrophotolumineszenz und Kathodolumineszenz hingegen sind örtliche

Auflösungen im Bereich von mehreren zehn Nanometern und Auflösungen der Polarisation (welche über Gleichung (4.17) proportional zum Feld ist) von gut 30 % möglich [22]. Andere Lumineszenzmethoden integrieren jedoch über Flächen bis hinein in den Bereich von Quadratmillimetern und erreichen damit die hohe Ortsauflösung nicht.

Zusammengefasst ist die Genauigkeit der DPC-Messungen im Vergleich mit anderen Methoden mindestens gleichwertig. Durch eine genauere Bestimmung der Probendicke kann der Gesamtfehler noch weiter verbessert werden. Darüber hinaus hat DPC weitere Vorteile. Im Gegensatz zur Holografie kann gleichzeitig sowohl ein großes Gesichtsfeld als auch hohe Auflösung erreicht werden. Zusätzlich schränkt mögliches Aliasing zwischen dem Phasenbild und der CCD-Kamera die Holograiemessung ein (Stichwort „Nyquist-Theorem“, siehe auch [146]). DPC im TEM ist somit als weitere, sehr leistungsfähige Messmethode für Feldmessungen etabliert.

## 6 Zusammenfassung

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, elektrische Felder in (Al,In,Ga)N-Heterostrukturen zu quantifizieren. Die Felder ergeben sich aus der Wurtzit-Struktur, in welcher die Gruppe-III-Nitride unter Normalbedingungen kristallisieren. Zwei Arten von Feldern treten hierbei auf: spontane und piezoelektrische Polarisation.

Erstere ergibt sich aus der Asymmetrie der polaren Bindungen zwischen Aluminium, Indium beziehungsweise Gallium und Stickstoff, was zu einer Trennung der Ladungsschwerpunkte von Atomen und Elektronen führt. Dadurch bildet sich eine Vorzugsrichtung des hexagonalen Kristalls aus – die [0001]- oder c-Richtung. Senkrecht zu dieser Richtung entstehen Partialladungsebenen. Innerhalb des Kristalls kompensieren sich die Ladungen, an den Oberflächen treten sie jedoch zu Tage. Normalerweise neutralisieren Adsorbate die Oberflächenladungen und reduzieren so die Felder, welche dadurch sonst im Kristall entstehen.

Die piezoelektrischen Felder können sich an Übergängen der verschiedenen Schichten von Heterostrukturen ausbilden. Beispielsweise wird durch das Einbringen von Indium in Galliumnitrid zur Erzeugung von Quantentrögen der Trog durch die verglichen mit Gallium abweichende Größe der Indiumatome gegenüber dem umgebenden Material verspannt. An den Übergängen entstehen dadurch Flächenladungen, welche zu Feldern zwischen den Grenzflächen führen. Diese beeinflussen gewisse Materialeigenschaften, darunter die Emissionswellenlänge von Laser- und Leuchtdioden. Dieser Effekt ist unter dem Namen „Quantum Confined Stark Effect“ (QCSE) bekannt und führt zu einem starken, unerwünschten Rückgang der Emissionseffizienz bei steigendem Indiumgehalt der Quantentröge durch die örtliche Trennung von Elektronen und Löchern.

Die vorliegenden Proben werden mit Hilfe Differentieller Phasenkontrastmikroskopie (DPC) im Rastertransmissionselektronenmikroskop (STEM) untersucht. DPC ist eine seit mehreren Jahrzehnten etablierte Messmethode, welche in der Vergangenheit jedoch nur für Untersuchungen magnetischer Felder eingesetzt wurde. Im Rahmen dieser Arbeit wird DPC erstmals benutzt, elektrische Felder in Galliumnitrid-Heterostrukturen zu quantifizieren [12]. Im Gegensatz zu alternativen Methoden wie zum Beispiel Photo-, Elektro- oder Kathodolumineszenz oder Elektronenholo-

## 6 Zusammenfassung

---

grafie ist sowohl die Orts- als auch die Feldauflösung bei gleichzeitig großem Gesichtsfeld sehr hoch. Die Methode ermöglicht eine Bestimmung der Felder mit einer Genauigkeit von etwa 10 MV/m hinsichtlich der Feldstärke, die Ortsauflösung wird durch das Mikroskop begrenzt und liegt deutlich unter 1 nm. Sie ermöglicht so die grundlegende Erforschung innerer Felder und erlaubt Verbesserungen in den auf Galliumnitrid basierenden Anwendungen beispielsweise hinsichtlich der Ladungsträgerinjektion oder der Rekombinationswahrscheinlichkeiten.

Um die Ergebnisse quantifizieren zu können, ist die Kenntnis der lokalen Probedicke unabdingbare Voraussetzung. Über den Vergleich zweier Methoden, basierend auf Messungen mit HAADF-STEM („High Angle Annular Dark Field“) und Elektronenenergieverlustspektroskopie (EELS) kann die sogenannte mittlere inelastische freie Weglänge („Inelastic Mean Free Path“ – IMFP) von Plasmonen in Galliumnitrid ermittelt werden, welche für die *in-situ*-Messung der Dicke notwendig ist. Darüber kann eine Kalibrierung der Dickenmessung vorgenommen werden. Dieses Ergebnis wurde zur Veröffentlichung eingereicht [60].

Im Rahmen dieser Arbeit werden verschiedene Strukturen untersucht. Neben einem pn-Übergang, der als Referenz bezüglich der Aussagekraft der Feldbestimmung dient, sind mehrere Heterostrukturen Gegenstand der Messungen. Für eine Probenserie, bei der ein 3 nm breiter Indiumgalliumnitrid-Quantentrog in eine quaternäre, in ihrer Zusammensetzung variierte Aluminiumindiumgalliumnitrid-Pufferschicht eingebettet ist, kann ein Effekt auf die elekt

rischen Felder innerhalb des Trogs nachgewiesen werden, welcher sich durch den jeweils eingestellten Verspannungszustand (tensil, angepasst und kompressiv verspannt) zwischen Substrat und angrenzendem Puffer ergibt. Die ermittelten Felder bewegen sich dabei im Bereich von 10 MV/m bis 180 MV/m. Durch den Vergleich mit Photolumineszenzmessungen ist es möglich, ein Modell der im Trog auftretenden Effekte abzuleiten.

Weiterhin wird eine Doppelquantentrogstruktur mit in Galliumnitrid-Substratmaterial eingebetteten Indiumgalliumnitrid-Trögen untersucht. Die Tröge unterscheiden sich in der Breite (10 nm und 20 nm) und weisen eine leichte Abweichung im Indiumgehalt auf (4 % und 4,5 %). Es kann dabei ein Unterschied der vorhandenen elektrischen Feldstärke gemessen werden, welcher mit simulierten Ergebnissen gut übereinstimmt. Die ermittelten Werte liegen zwischen 20 MV/m und 40 MV/m. Daraus kann die Stärke der Polarisationsladungen zu  $-0,0046 \text{ C m}^{-2}$  abgeschätzt werden, welche sich an den Grenzflächen in einer etwa 3 nm dicken Schicht ausbilden.

Als Letztes werden die Ergebnisse einer Achtfach-Quantentrogprobe vorgestellt. Durch ihre Regelmäßigkeit erlaubt die Probe einen direkten Vergleich der Tröge

---

untereinander. Es kann so ein Unterschied der Polarisationsfelder der dem Volumenmaterial nahen Tröge nachgewiesen werden. Weiter kann eine unterschiedliche Grenzflächenladung festgestellt werden, welche sich auf einen Gradienten des Indiumgehalts innerhalb der Tröge zurückführen lässt. Die mittlere Feldstärke der nicht abgeschirmten Tröge ergibt sich zu etwa 74 MV/m, was auch aus Simulationen dieser Struktur hervorgeht. Die Reduktion der Feldstärke der verbleibenden beiden Tröge relativ zum Durchschnitt der diesbezüglich unbeeinflussten Tröge beträgt 20 MV/m und 15 MV/m. Dieses Ergebnis wurde ebenso zur Veröffentlichung eingereicht [59]. Zusätzlich gibt es Hinweise auf einen Einfluss des Elektronenstrahls auf die elektrischen Felder durch die Erzeugung von Exzitonen. Diese können durch die Wechselwirkung des Strahls mit der Probe entstehen. Aufgrund des Vergleichs zweier Messungen mit unterschiedlicher Rastergeschwindigkeit kann auf einen möglichen Einfluss geschlossen werden.

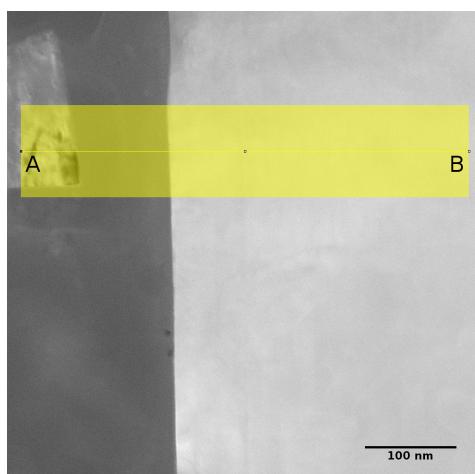
Im Rahmen dieser Arbeit konnte die Differentielle Phasenkontrastmikroskopie erfolgreich auf die Messung elektrischer Felder in Galliumnitrid-(Hetero-)Strukturen angewandt werden. Durch die Kombination von *in-situ*-Bestimmung der Probendicke mit Hilfe von Elektronenenergieverlustspektroskopie und HAADF-STEM-Messungen war es darüber hinaus möglich, quantitative Ergebnisse zu erzielen. Im Rahmen der Dickenbestimmung wurde die mittlere inelastische freie Weglänge von Plasmonen in Galliumnitrid bestimmt und zur Veröffentlichung eingereicht, da für sie in der Literatur nur wenige, stark variierende Werte zu finden sind. Es gelang weiterhin, die Leistungsfähigkeit von DPC zu zeigen, indem der Feldverlauf mit hoher Auflösung innerhalb weniger Nanometer breiter Quantentröge erfolgreich vermessen werden und so die Leistungsfähigkeit im Vergleich mit alternativen Methoden gezeigt werden konnte. Es konnten Felder in einem Bereich zwischen 20 MV/m und 180 MV/m gemessen werden, welche durch Simulationen und optische Messungen bestätigt werden konnten.



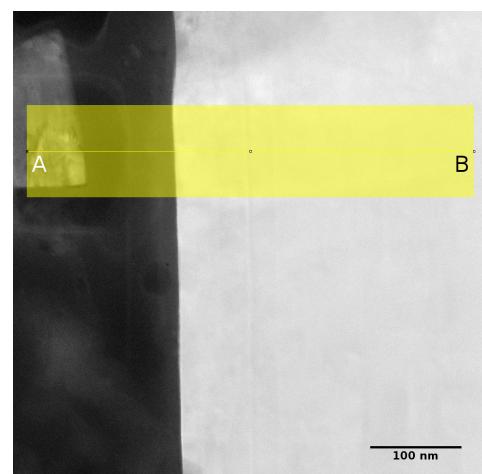
# Anhang: Ausführliche Auswertungen

## A.1 Quaternär gepufferte Quantentröge

### A.1.1 Probe 1



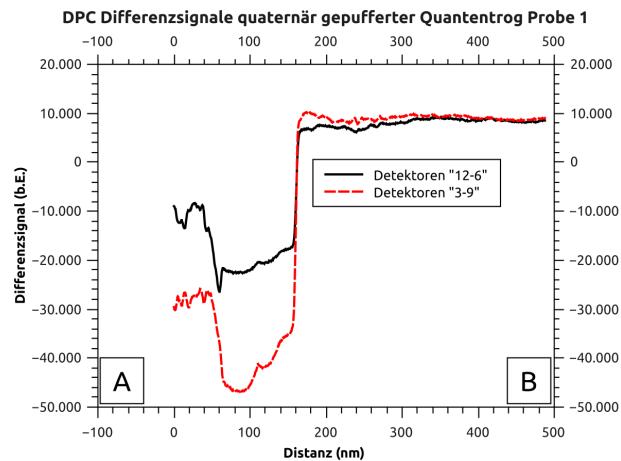
(a): DPC-Differenzbild „12–6“



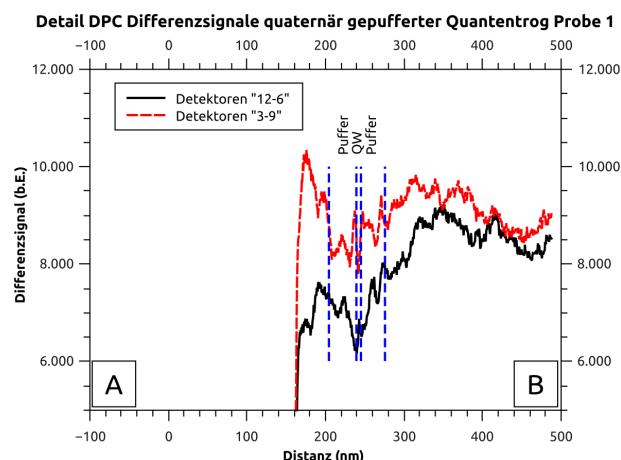
(b): DPC-Differenzbild „3–9“

**Abbildung A.1:** DPC-Messungen von Probe 1 der quaternär gepufferten Probenserie.

Die Analysestelle ist durch die gelbe Fläche gekennzeichnet. Der Puffer und der Quantentrog sind aufgrund der großen Kontrastunterschiede zwischen Kleber und Kristall nicht erkennbar. Das bei „A“ im Kleber eingeschlossene Kristallbruchstück ermöglicht ein Wiederauffinden der Messstelle für die Dickenbestimmung.

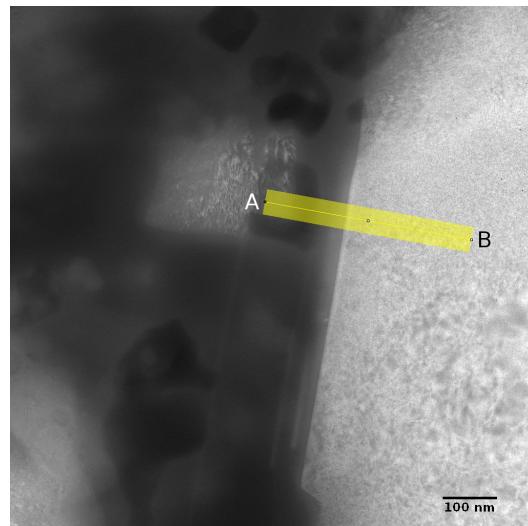


**Abbildung A.2:** DPC-Linienanalysen von Probe 1 der quaternär gepufferten Probenserie. Neben dem deutlich erkennbaren Messartefakt der Probenkante ist ein von der Puffer-Quantentrog-Struktur ausgehendes Signal nicht erkennbar. Abbildung A.3 zeigt aus diesem Grund das relevante Detail im Bereich von 200 nm bis 300 nm mit vergrößerter Amplitude.

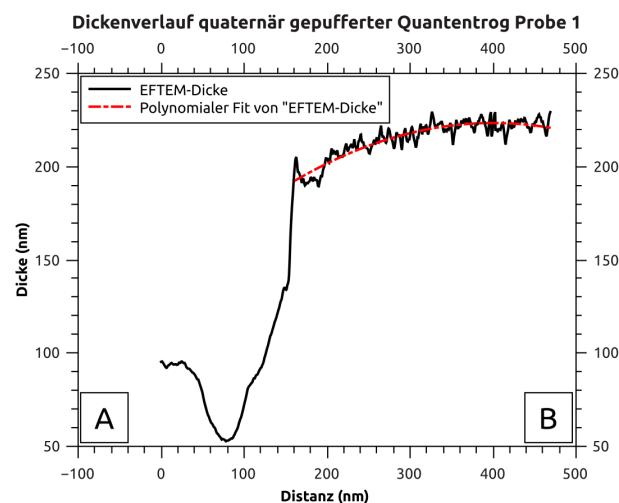


**Abbildung A.3:** Detail der DPC-Linienanalysen von Probe 1 der quaternär gepufferten Serie. Die gestrichelten Linien markieren die Übergänge zwischen Volumenmaterial und unterem Puffer beziehungsweise zwischen oberem Puffer und Deckschicht. Der 3 nm breite Quantentrog ist mit „QW“ gekennzeichnet.

## A.1 Quaternär gepufferte Quantentröge

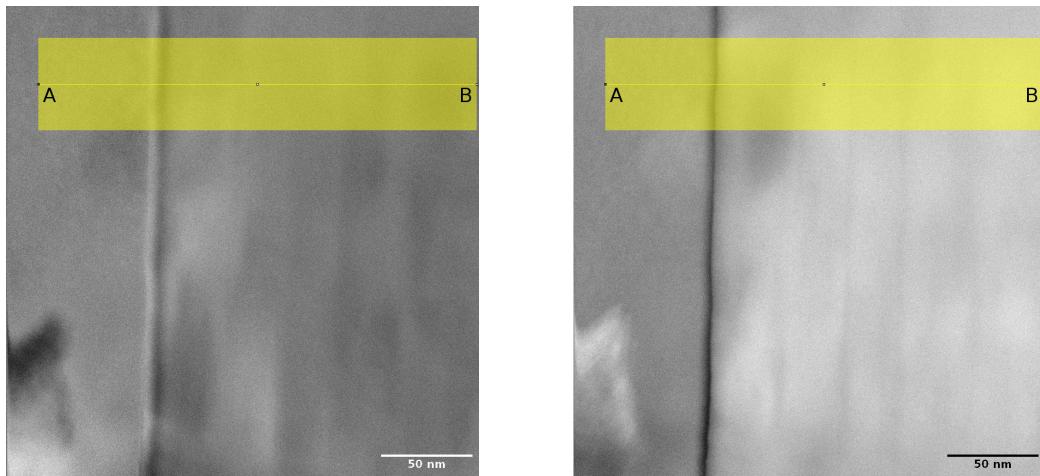


**Abbildung A.4:** Dickenmessung von Probe 1 der quaternär gepufferten Serie. Die Position der Analyselinie wurde mit Hilfe des charakteristischen Kristallstücks beim Anfangspunkt „A“ der Linie, der Maßstab durch seinen Abstand bestimmt.



**Abbildung A.5:** Linienanalyse der Dickenmessung von Probe 1 der quaternär gepufferten Serie. Die Dicke im relevanten Bereich innerhalb der Probe wurde parabolisch angefittet.

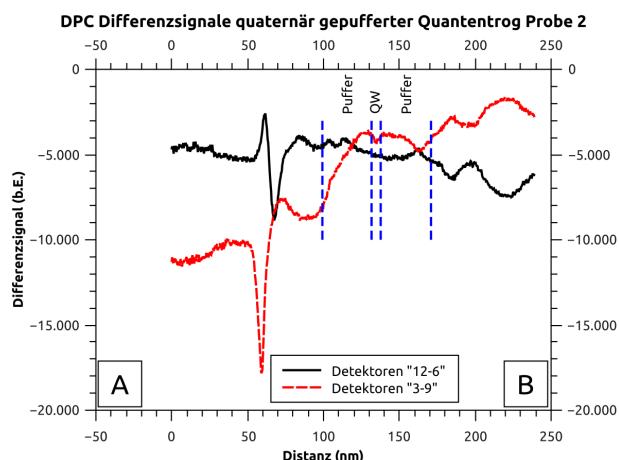
### A.1.2 Probe 2



(a): DPC-Differenzbild „12–6“

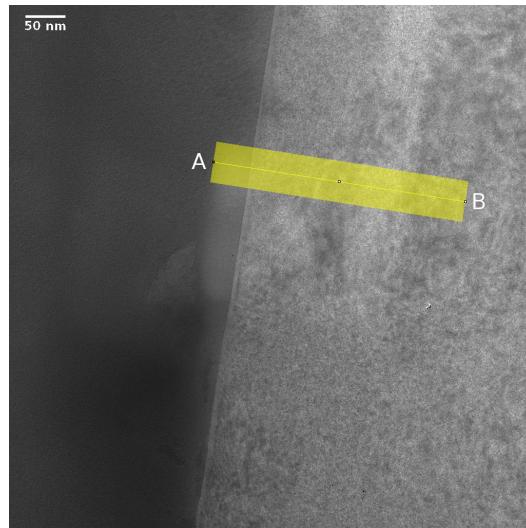
(b): DPC-Differenzbild „3–9“

**Abbildung A.6:** DPC-Messungen von Probe 2 der quaternär gepufferten Probenserie. Das Signal von Puffer und Quantentrog ist gegenüber den Schwankungen der Gesamtintensität zu klein und deshalb nicht zu erkennen. Das Auffinden der Lage der Analyselinie wird wiederum durch ein Bruchstück im Kleber ermöglicht.

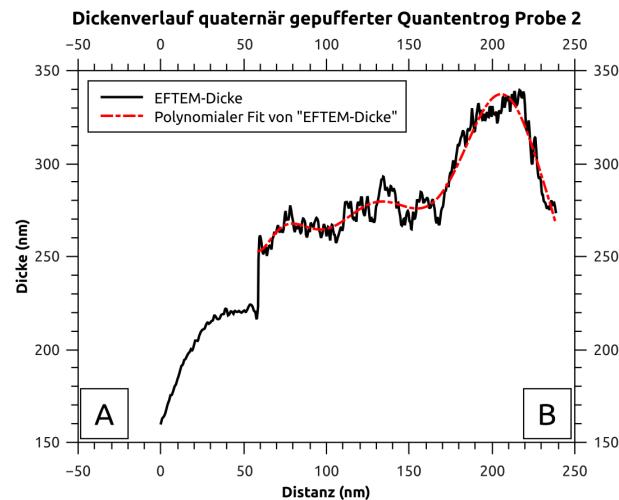


**Abbildung A.7:** DPC-Linienanalysen von Probe 2 der quaternär gepufferten Serie. Die Probenkante ist durch die abrupten Signaländerungen sehr gut erkennbar. Darauf basierend sind die Positionen von Puffer und Quantentrog eingezeichnet.

## A.1 Quaternionär gepufferte Quantentröge

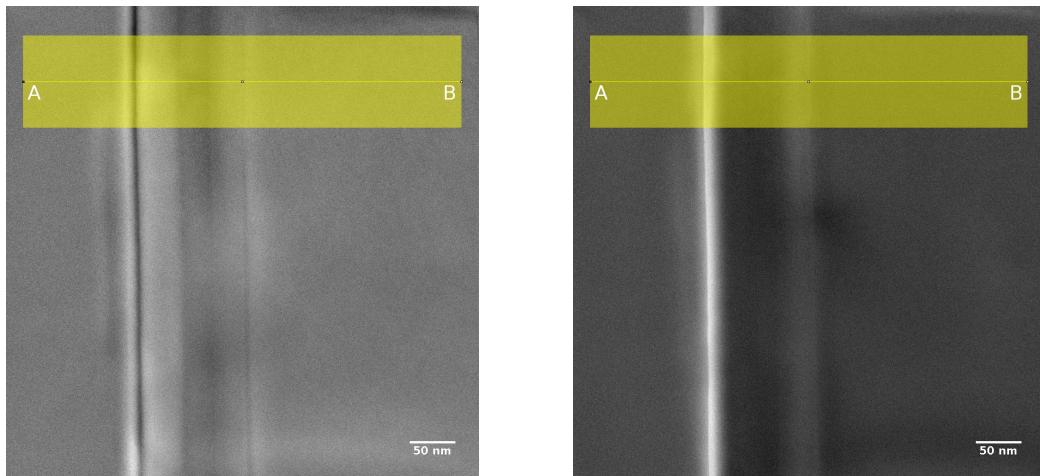


**Abbildung A.8:** Dickenmessung von Probe 2 der quaternär gepufferten Serie. Position und der Maßstab der Analyselinie wurden mit Hilfe eines kleinen Kristallbruchstücks unterhalb des Anfangspunkts „A“ der Linie bestimmt.



**Abbildung A.9:** Linienanalyse der Dickenmessung von Probe 2 der quaternär gepufferten Serie. Die Dicke im relevanten Bereich innerhalb der Probe wurde durch ein Polynom angefittet.

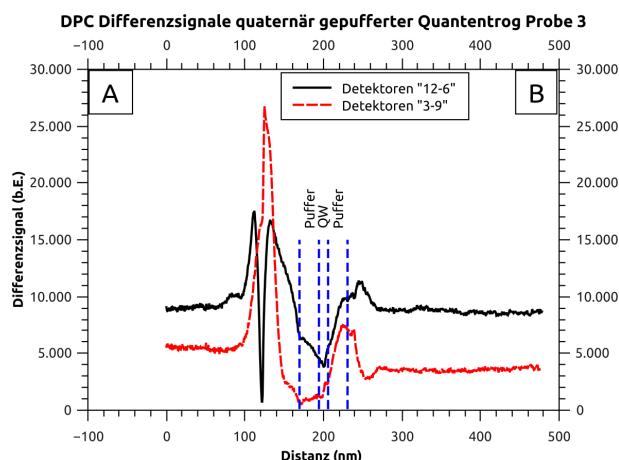
### A.1.3 Probe 3



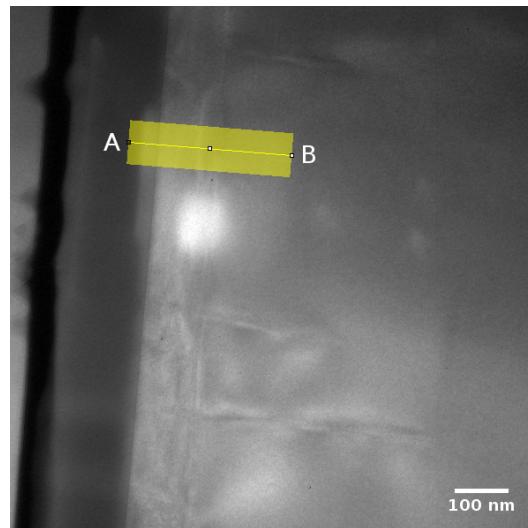
(a): DPC-Differenzbild „12–6“

(b): DPC-Differenzbild „3–9“

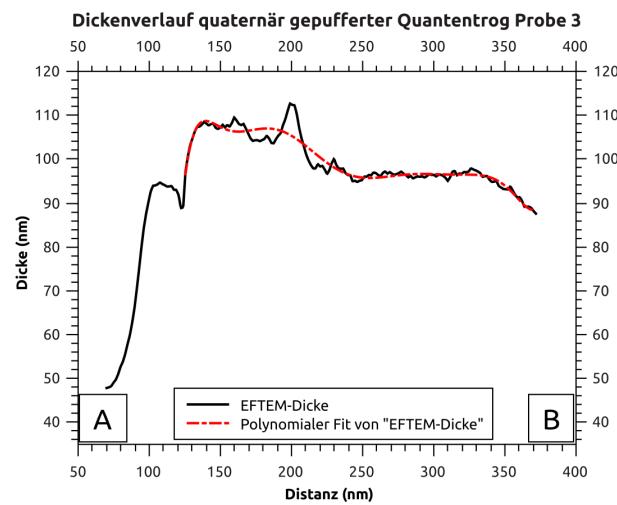
**Abbildung A.10:** DPC-Messungen von Probe 3 der quaternär gepufferten Probenserie. Die Übergänge zwischen den verschiedenen Materialschichten lassen sich sehr gut erkennen. Auch der Quantentrog selbst erscheint sehr deutlich als dunkle Linie im Differenzbild „12–6“.



**Abbildung A.11:** DPC-Linienanalysen von Probe 3 der quaternär gepufferten Serie. Sie zeigen ein ausgeprägtes Signal der Probenkante sowie deutliche Änderungen am Übergang der Schichten. Im Inneren der Probe zeigen die Kurven den erwarteten konstanten Verlauf.

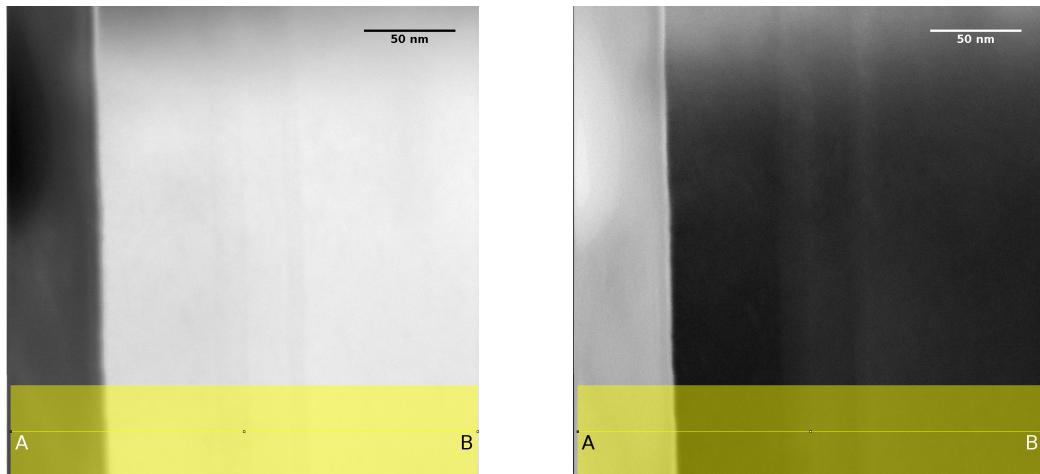


**Abbildung A.12:** Dickenmessung von Probe 3 der quaternionär gepufferten Serie. Die Position und der Maßstab der Analyselinie wurde mit Hilfe der Probenkante, dem leicht helleren Bereich, welcher das DPC-Messfenster darstellt, und dem (bei entsprechender Kontrastverstärkung) sichtbaren Quantentrog und Puffer-Volumenmaterial-Übergang bestimmt.



**Abbildung A.13:** Linienanalyse der Dickenmessung von Probe 3 der quaternionär gepufferten Serie. Die Dicke im relevanten Bereich innerhalb der Probe wurde durch ein Polynom angefittet. Das Signal im Bereich von etwa 100 bis 130 nm stammt Kontamination, welche durch das Abrastern der Probe bei der Messung entstanden ist (vergleiche Abbildung A.12 und Abschnitt 2.4.4).

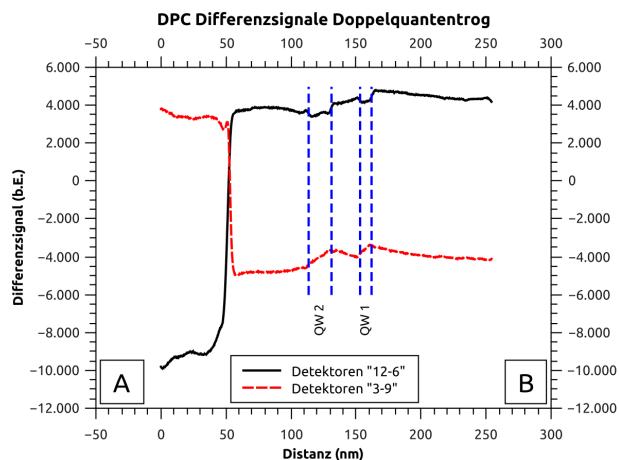
## A.2 Doppelquantentrog



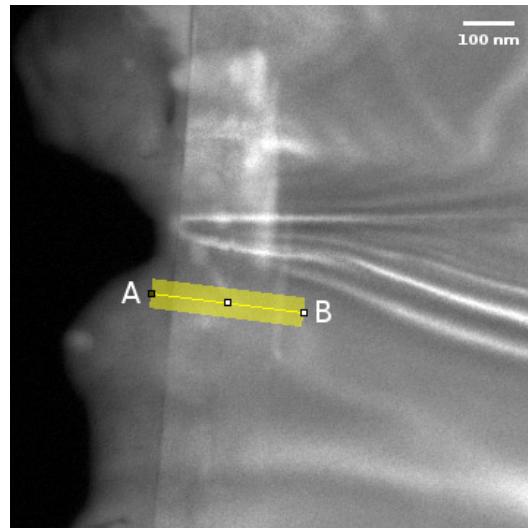
(a): DPC-Differenzbild „12-6“

(b): DPC-Differenzbild „3-9“

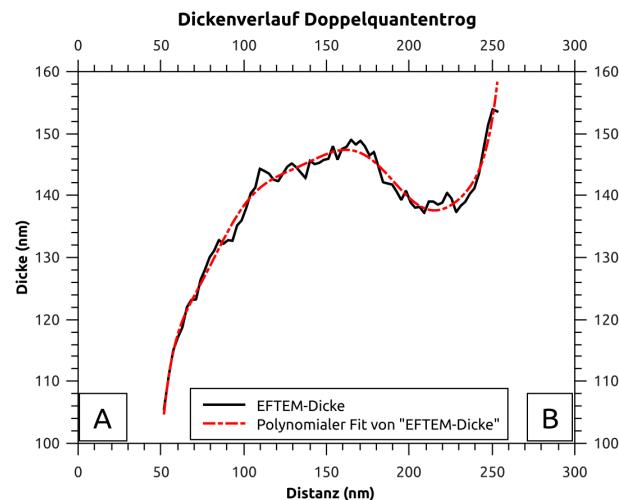
**Abbildung A.14:** DPC-Messungen des Doppelquantentrogs. Durch die starken Intensitätsunterschiede zwischen Probe und Vakuum sind die Tröge nur sehr schwach erkennbar.



**Abbildung A.15:** DPC-Linienanalysen des Doppelquantentrogs. Die Tröge sind hier deutlich erkennbar, wobei das Kantensignal hinsichtlich des Gesamtkontrasts dominiert.

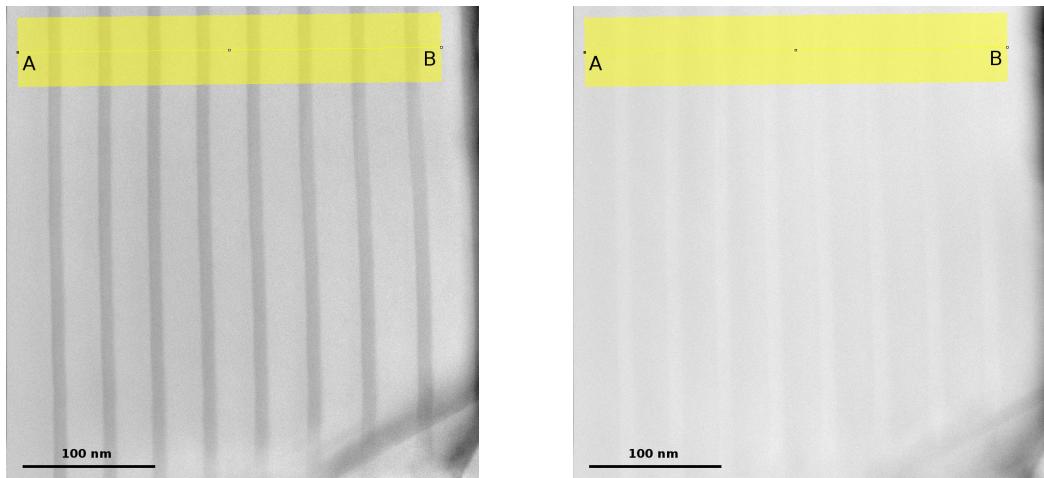


**Abbildung A.16:** Dickenmessung des Doppelquantentrogs. Die Position und der Maßstab der Analyselinie wurde mit Hilfe der Probenkante und der hellen Linie nahe bei „B“ bestimmt, welche den rechten Rand des Messfensters markiert.



**Abbildung A.17:** Linienanalyse der Dickenmessung des Doppelquantentrogs. Die Dicke im Bereich innerhalb der Probe wurde polynomial angefittet. Die endliche Dicke an der Probenkante resultiert aus dem an der Oberfläche vorhandenen Kleber, welcher in Abbildung A.16 sehr gut erkennbar ist.

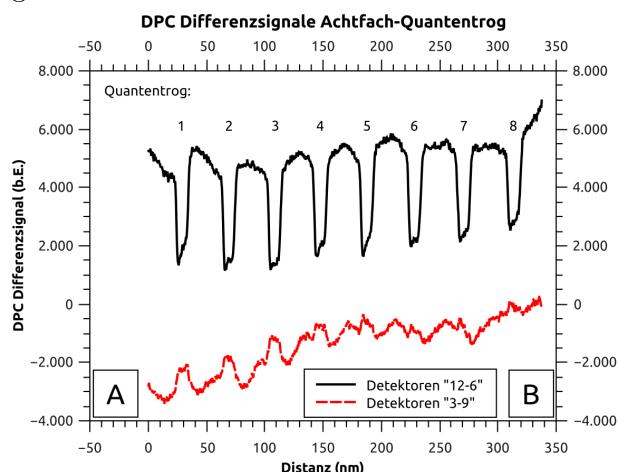
### A.3 Achtfach-Quantentrog



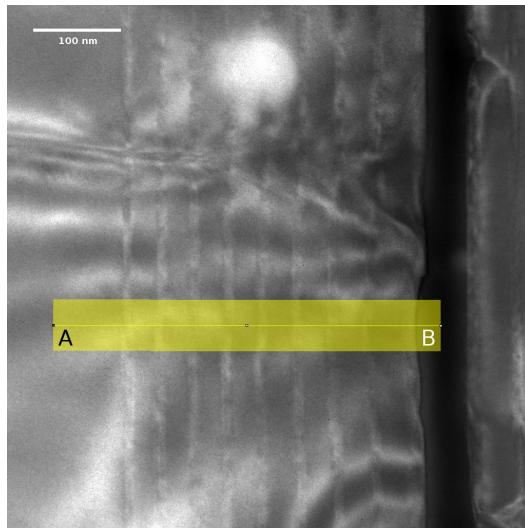
(a): DPC-Differenzbild „12–6“

(b): DPC-Differenzbild „3–9“

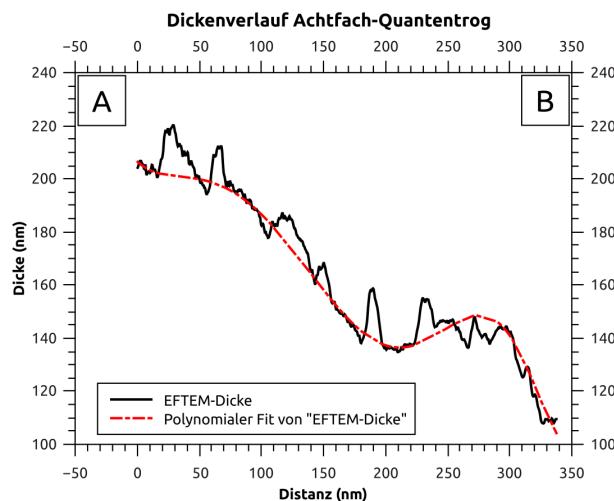
**Abbildung A.18:** DPC-Messungen des Achtfach-Quantentrogs. Die Streifen zeigen die Achtfach-Struktur sehr klar. Der dunkle Kontrast unten rechts ergibt sich durch eine sogenannte „V-Versetzung“ (oder „V-Pit“), ein trichterförmiger Kristallbaufehler. Er eignet sich sehr gut zur örtlichen Korrelation mit der Dickenmessung.



**Abbildung A.19:** DPC-Linienanalysen des Achtfach-Quantentrogs. Die Tröge sind eindeutig im Differenzsignal „12–6“ erkennbar. Durch die relative Orientierung der Probe relativ zum DPC-Detektor resultiert ein überwiegend in dieser Messrichtung auftretendes Signal.



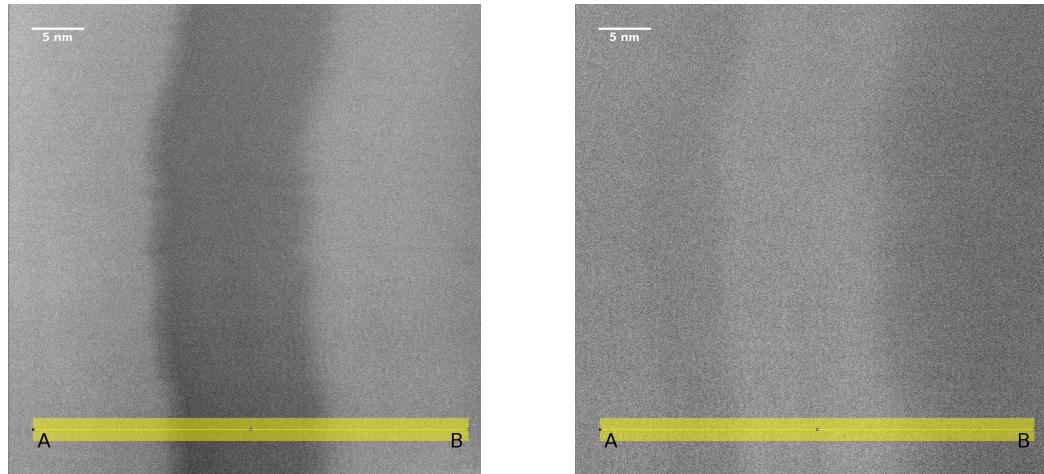
**Abbildung A.20:** Dickenmessung des Achtfach-Quantentrogs. Die Quantentröge sind deutlich durch ihren abweichenden Kontrast erkennbar, welcher sich nicht aufgrund sich sprunghaft ändernder Dicke, sondern durch die unterschiedliche Materialzusammensetzung ergibt. Im hellen Bereich oben Mitte (verursacht durch Kontamination) wurde ein Trog im Detail vermessen.



**Abbildung A.21:** Linienanalyse der Dickenmessung des Achtfach-Quantentrogs. Die Dicke wurde polynomial angefittet. Dabei wurden die Bereiche der Quantentröge ausgespart, um die Dickenbestimmung durch die abweichende Intensität der Tröge selbst nicht zu verfälschen (vergleiche Abbildung A.20).

**Tabelle A.1:** Gemessener In-Gehalt der Achtfach-Quantentrogprobe.  $\uparrow$  und  $\downarrow$  bezeichnen jeweils den Indiumgehalt an den Grenzflächen am Anfang und Ende eines Quantentrogs. #1 und #2 bezeichnen die beiden durchgeführten Messungen. Der Ablesefehler beträgt etwa 0,5 Prozentpunkte.

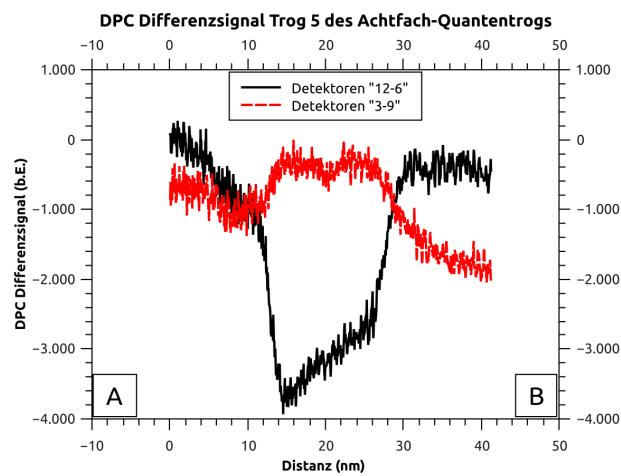
| Trog | 1                 | 2                   | 3                 | 4                   | 5                 | 6                   | 7                 | 8                   |
|------|-------------------|---------------------|-------------------|---------------------|-------------------|---------------------|-------------------|---------------------|
|      | $\uparrow$<br>5,5 | $\downarrow$<br>7,5 | $\uparrow$<br>4,0 | $\downarrow$<br>6,5 | $\uparrow$<br>4,5 | $\downarrow$<br>6,5 | $\uparrow$<br>4,5 | $\downarrow$<br>7,0 |
| #1   | 5,5               | 7,5                 | 4,0               | 6,5                 | 4,5               | 6,5                 | 4,5               | 7,0                 |
| #2   | 5,5               | 7,5                 | 5,0               | 7,0                 | 4,5               | 7,5                 | 5,5               | 7,5                 |



**(a):** DPC-Differenzbild „12–6“

**(b):** DPC-Differenzbild „3–9“

**Abbildung A.22:** DPC-Messungen von Trog 5 des Achtfach-Quantentrogs (siehe Abbildung A.20). Die Breite der Analyselinie ist im Vergleich zu den vorangegangenen Messungen verringert. Dies ist nötig, da durch die hohe Vergrößerung vermehrt Probendrift auftritt.



**Abbildung A.23:** DPC-Linienanalysen von Trog 5 des Achtfach-Quantentrogs. Durch die Orientierung zum Detektor tritt der Hauptteil des Signals wieder entlang der Richtung „12–6“ auf.



# Abbildungsverzeichnis

|      |                                                                       |    |
|------|-----------------------------------------------------------------------|----|
| 2.1  | Innerer Aufbau eines TEMs. . . . .                                    | 8  |
| 2.2  | Hell- und Dunkelfeld-Detektoren beim STEM. . . . .                    | 10 |
| 2.3  | Schematische Funktionsweise eines EELS. . . . .                       | 13 |
| 2.4  | Typische EELS-Spektren mit Plasmonenanregungen. . . . .               | 14 |
| 2.5  | Unterschied von Standard-Dunkelfeld- und DPC-Detektor. . . . .        | 19 |
| 2.6  | Anpassung des STEM-Strahls für DPC. . . . .                           | 20 |
| 2.7  | Schema Ablenkung von Elektronen im elektrischen Feld. . . . .         | 25 |
| 2.8  | Zeichnung der Spitze des selbstentwickelten DPC-Kalibrierhalters. .   | 27 |
| 2.9  | Darstellung des Kriteriums für Kalibrierung des DPC-Systems. . . .    | 28 |
| 2.10 | Schematischer Ablauf der konventionellen Probenpräparation. . . . .   | 31 |
| 3.1  | Eigenschaften ausgewählter III-V-Halbleiter. . . . .                  | 34 |
| 3.2  | Kristallstruktur von GaN. . . . .                                     | 38 |
| 3.3  | Kritische Schichtdicke bei pseudomorphem Wachstum. . . . .            | 39 |
| 3.4  | Quantum Confined Stark Effect in InGaN/GaN-Heterostrukturen. .        | 41 |
| 4.1  | Bestimmung des STEM-Strahldurchmessers an einer Spaltkante. . .       | 47 |
| 4.2  | Ableitung des Intensitätsverlaufs von Abbildung 4.1. . . . .          | 48 |
| 4.3  | Messung des Akzeptanzwinkels des EELS-Systems. . . . .                | 51 |
| 4.4  | HAADF-Messung zur Bestimmung der Probendicke. . . . .                 | 55 |
| 4.5  | Aus Abbildung 4.4 bestimmte Dickenkarte. . . . .                      | 56 |
| 4.6  | Energiefiltertes und ungefiltertes TEM-Bild. . . . .                  | 57 |
| 4.7  | Dickenkarte basierend auf Abbildung 4.6. . . . .                      | 58 |
| 4.8  | Linienanalysen zur Bestimmung von $\lambda$ . . . . .                 | 59 |
| 4.9  | Zusammenfassung der Ergebnisse zur Bestimmung von $\lambda$ . . . . . | 60 |
| 4.10 | Schematischer Probenaufbau pn-Übergang. . . . .                       | 62 |
| 4.11 | STEM-Hellfeldbild des pn-Überganges. . . . .                          | 63 |
| 4.12 | DPC-Messungen des pn-Überganges. . . . .                              | 64 |
| 4.13 | DPC-Linienanalysen des pn-Überganges. . . . .                         | 65 |
| 4.14 | Dickenmessung des pn-Überganges. . . . .                              | 66 |
| 4.15 | Dickenverlauf und Fit des pn-Überganges. . . . .                      | 67 |
| 4.16 | Elektrisches Feld des pn-Überganges. . . . .                          | 68 |
| 4.17 | Korrigiertes elektrisches Feld des pn-Überganges. . . . .             | 69 |
| 4.18 | Ausschnitt des Feldes von Abbildung 4.17 des pn-Überganges. . . .     | 69 |

|      |                                                                                  |     |
|------|----------------------------------------------------------------------------------|-----|
| 4.19 | Berechneter Potentialverlauf des pn-Überganges. . . . .                          | 70  |
| 4.20 | Schematischer Probenaufbau quaternär gepufferte Quantentröge. . . . .            | 71  |
| 4.21 | Hellfeldbild von Probe 1 der quaternär gepufferten Quantentröge. . . . .         | 72  |
| 4.22 | Elektrisches Feld von Probe 1 der quaternär gepufferten Quantentröge. . . . .    | 73  |
| 4.23 | Detail des elektrischen Feldes von Probe 1. . . . .                              | 74  |
| 4.24 | Hellfeldbild von Probe 2 der quaternär gepufferten Quantentröge. . . . .         | 75  |
| 4.25 | Elektrisches Feld von Probe 2 der quaternär gepufferten Quantentröge. . . . .    | 76  |
| 4.26 | Detail des elektrischen Feldes von Probe 2. . . . .                              | 77  |
| 4.27 | Hellfeldbild von Probe 3 der quaternär gepufferten Quantentröge. . . . .         | 78  |
| 4.28 | Elektrisches Feld von Probe 3 der quaternär gepufferten Quantentröge. . . . .    | 79  |
| 4.29 | Detail des elektrischen Feldes von Probe 3. . . . .                              | 80  |
| 4.30 | Schematischer Probenaufbau Doppelquantentrog. . . . .                            | 81  |
| 4.31 | Hellfeldbild Doppelquantentrog. . . . .                                          | 81  |
| 4.32 | Elektrisches Feld Doppelquantentrog. . . . .                                     | 82  |
| 4.33 | Detail des elektrischen Feldes des Doppelquantentrogs. . . . .                   | 83  |
| 4.34 | Schematischer Probenaufbau Achtfach-Quantentrog. . . . .                         | 84  |
| 4.35 | Hellfeldbild Achtfach-Quantentrog. . . . .                                       | 85  |
| 4.36 | Elektrisches Feld Achtfach-Quantentrog. . . . .                                  | 86  |
| 4.37 | Hellfeldbild Trog 5 des Achtfach-Quantentrogs. . . . .                           | 86  |
| 4.38 | Elektrisches Feld Trog 5 des Achtfach-Quantentrogs. . . . .                      | 87  |
| 4.39 | Photolumineszenz-Messungen der quaternär gepufferten Quantentröge. . . . .       | 88  |
| 4.40 | Mögliche Bandstruktur der quaternär gepufferten Quantentröge. . . . .            | 89  |
| 4.41 | Grenzflächen der Doppelquantentrogprobe. . . . .                                 | 93  |
| 4.42 | Indiumkonzentration Trog 5 des Achtfach-Quantentrogs. . . . .                    | 96  |
| 5.1  | Ergebnis Linienanalyse der mittleren inelastischen freien Weglänge. . . . .      | 100 |
| 5.2  | Korrelation der DPC-Verstärkerstufen. . . . .                                    | 101 |
| 5.3  | Rauschanalyse des DPC-Signals. . . . .                                           | 102 |
| A.1  | DPC-Messungen Probe 1 der quaternär gepufferten Serie. . . . .                   | 109 |
| A.2  | DPC-Linienanalysen Probe 1 der quaternär gepufferten Serie. . . . .              | 110 |
| A.3  | Detail der DPC-Linienanalysen der quaternär gepufferten Serie. . . . .           | 110 |
| A.4  | Dickenmessung Probe 1 der quaternär gepufferten Serie. . . . .                   | 111 |
| A.5  | Linienanalyse der Dickenmessung Probe 1 der quaternär gepufferten Serie. . . . . | 111 |
| A.6  | DPC-Messungen Probe 2 der quaternär gepufferten Serie. . . . .                   | 112 |
| A.7  | DPC-Linienanalysen Probe 2 der quaternär gepufferten Serie. . . . .              | 112 |
| A.8  | Dickenmessung Probe 2 der quaternär gepufferten Serie. . . . .                   | 113 |
| A.9  | Linienanalyse der Dickenmessung Probe 2 der quaternär gepufferten Serie. . . . . | 113 |
| A.10 | DPC-Messungen Probe 3 der quaternär gepufferten Serie. . . . .                   | 114 |

|                                                                                       |     |
|---------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| A.11 DPC-Linienanalysen Probe 3 der quaternär gepufferten Serie. . . . .              | 114 |
| A.12 Dickenmessung Probe 3 der quaternär gepufferten Serie. . . . .                   | 115 |
| A.13 Linienanalyse der Dickenmessung Probe 3 der quaternär gepufferten Serie. . . . . | 115 |
| A.14 DPC-Messungen Doppelquantentrog. . . . .                                         | 116 |
| A.15 DPC-Linienanalysen Doppelquantentrog. . . . .                                    | 116 |
| A.16 Dickenmessung Doppelquantentrog. . . . .                                         | 117 |
| A.17 Linienanalyse der Dickenmessung Doppelquantentrog. . . . .                       | 117 |
| A.18 DPC-Messungen Achtfach-Quantentrog. . . . .                                      | 118 |
| A.19 DPC-Linienanalysen Achtfach-Quantentrog. . . . .                                 | 118 |
| A.20 Dickenmessung Achtfach-Quantentrog. . . . .                                      | 119 |
| A.21 Linienanalyse der Dickenmessung Achtfach-Quantentrog. . . . .                    | 119 |
| A.22 DPC-Messungen Trog 5 des Achtfach-Quantentrogs. . . . .                          | 120 |
| A.23 DPC-Linienanalysen Trog 5 des Achtfach-Quantentrogs. . . . .                     | 121 |



# Tabellenverzeichnis

|     |                                                                       |     |
|-----|-----------------------------------------------------------------------|-----|
| 3.1 | Wichtige Eigenschaften gängiger Gruppe-III-Nitride. . . . .           | 36  |
| 4.1 | Experimentell verwendete Mikroskopparameter. . . . .                  | 46  |
| 4.2 | Parameter für Strahlbreitenbestimmung über CCD. . . . .               | 48  |
| 4.3 | Experimentelle Daten zur Bestimmung des Akzeptanzwinkels. . . . .     | 52  |
| 4.4 | Ergebnisse der Bestimmung des Akzeptanzwinkels. . . . .               | 53  |
| 4.5 | Parameter der EELS-Dickenmessungen. . . . .                           | 56  |
| 4.6 | Ergebnisse der EFTEM-Dickenmessungen. . . . .                         | 61  |
| 4.7 | Wachstumsparameter der Proben mit quaternärem Puffer. . . . .         | 71  |
| 4.8 | Quantentrogbreite und In-Gehalt des Doppelquantentrogs. . . . .       | 80  |
| 4.9 | Änderungen des elektrischen Feldes des Achtfach-Quantentrogs. . . . . | 84  |
| A.1 | Änderungen des In-Gehalts beim Achtfach-Quantentrog. . . . .          | 120 |



# Literaturverzeichnis

- [1] J. E. Lilienfeld. *Electric Current Control Mechanism*. 1927. URL: <http://brevets-patents.ic.gc.ca/opic-cipo/cpd/eng/patent/272437/summary.html>.
- [2] O. Heil. *Improvements in or relating to electrical amplifiers and other control arrangements and devices*. 1935.
- [3] J. Bardeen und W. H. Brattain. „The Transistor, A Semi-Conductor Triode“. In: *Phys. Rev.* 74 (Juli 1948), S. 230–231. DOI: [10.1103/PhysRev.74.230](https://doi.org/10.1103/PhysRev.74.230).
- [4] N. H. Dekkers und H. de Lang. „Differential phase contrast in a STEM“. In: *Optik* 41 (1974), S. 452–456.
- [5] H. Rose. „Phase Contrast in Scanning Transmission Electron Microscopy“. In: *Optik* 39.4 (1974), S. 416–436.
- [6] H. Rose. „Nonstandard imaging methods in electron microscopy“. In: *Ultramicroscopy* 2 (1977), S. 251–267. ISSN: 0304-3991. DOI: [10.1016/S0304-3991\(76\)91538-2](https://doi.org/10.1016/S0304-3991(76)91538-2).
- [7] J. Chapman, P. Batson, E. Waddell und R. Ferrier. „The direct determination of magnetic domain wall profiles by differential phase contrast electron microscopy“. In: *Ultramicroscopy* 3 (1978), S. 203–214. ISSN: 0304-3991. DOI: [10.1016/S0304-3991\(78\)80027-8](https://doi.org/10.1016/S0304-3991(78)80027-8).
- [8] T. Sannomiya, Y. Haga, Y. Nakamura, O. Nittono und Y. Takahashi. „Observation of magnetic structures in Fe granular films by differential phase contrast scanning transmission electron microscopy“. In: *Journal of Applied Physics* 95.1 (2004), S. 214–218. DOI: [10.1063/1.1630356](https://doi.org/10.1063/1.1630356).
- [9] T. Uhlig. „Differentielle Phasenkontrastmikroskopie an magnetischen Ringstrukturen“. Dissertation. Berlin: Fakultät für Physik, Universität Regensburg, 2004. ISBN: 978-3-8325-0752-7.
- [10] C. Brownlie, S. McVitie, J. N. Chapman und C. D. W. Wilkinson. „Lorentz microscopy studies of domain wall trap structures“. In: *Journal of Applied Physics* 100.3 (2006), S. 033902. DOI: [10.1063/1.2227263](https://doi.org/10.1063/1.2227263).

- [11] C. W. Sandweg, N. Wiese, D. McGrouther, S. J. Hermsdoerfer, H. Schultheiss, B. Leven u. a. „Direct observation of domain wall structures in curved permalloy wires containing an antinotch“. In: *Journal of Applied Physics* 103.9, 093906 (2008), S. 093906. DOI: 10.1063/1.2913318.
- [12] M. Lohr, R. Schregle, M. Jetter, C. Wächter, T. Wunderer, F. Scholz und J. Zweck. „Differential phase contrast 2.0 — Opening new “fields” for an established technique“. In: *Ultramicroscopy* 117 (2012), S. 7–14. DOI: 10.1016/j.ultramic.2012.03.020.
- [13] Shibata Naoya, Findlay Scott D., Kohno Yuji, Sawada Hidetaka, Kondo Yukihito und Ikuhara Yuichi. „Differential phase-contrast microscopy at atomic resolution“. In: *Nature Physics* 8.8 (Aug. 2012), S. 611–615. ISSN: 1745-2473. DOI: 10.1038/nphys2337.
- [14] S. Yoshida, S. Misawa und S. Gonda. „Improvements on the electrical and luminescent properties of reactive molecular beam epitaxially grown GaN films by using AlN-coated sapphire substrates“. In: *Applied Physics Letters* 42.5 (1983), S. 427–429. DOI: 10.1063/1.93952.
- [15] J. S. Im, H. Kollmer, J. Off, A. Sohmer, F. Scholz und A. Hangleiter. „Effects of piezoelectric fields in GaInN/GaN and GaN/AlGaN heterostructures and quantum wells“. In: *Materials Research Society Symposium Procedures* 482.4S1 (1998), S. 513–518.
- [16] J. S. Im, H. Kollmer, J. Off, O. Gfrörer, F. Scholz und A. Hangleiter. „Piezoelectric field effect on optical properties of GaN/GaInN/AlGaN quantum wells“. In: *Materials Research Society Symposium Procedures* 537.4S1 (1999).
- [17] R. Cingolani, A. Botchkarev, H. Tang, H. Morkoç, G. Traetta, G. Coli u. a. „Spontaneous polarization and piezoelectric field in GaN/AlGaN quantum wells: Impact on the optical spectra“. In: *Physical Review B* 61 (4 Jan. 2000), S. 2711–2715. DOI: 10.1103/PhysRevB.61.2711.
- [18] U. Jahn, S. Dhar, M. Ramsteiner und K. Fujiwara. „Field-dependent nonlinear luminescence response of (In,Ga)N/GaN quantum wells“. In: *Physical Review B* 69 (März 2004), S. 115323. DOI: 10.1103/PhysRevB.69.115323.
- [19] M. Feneberg, F. Lipski, R. Sauer, K. Thonke, T. Wunderer, B. Neubert, P. Bruckner und F. Scholz. „Piezoelectric fields in GaInN/GaN quantum wells on different crystal facets“. In: *Applied Physics Letters* 89.24, 242112 (2006), S. 242112. DOI: 10.1063/1.2405866.
- [20] M.-H. Kim, M. F. Schubert, Q. Dai, J. K. Kim, E. F. Schubert, J. Piprek und Y. Park. „Origin of efficiency droop in GaN-based light-emitting diodes“. In: *Applied Physics Letters* 91.18, 183507 (2007), S. 183507. DOI: 10.1063/1.2800290.

- [21] Y.-K. Noh, M.-D. Kim und J.-E. Oh. „Reduction of internal polarization fields in InGaN quantum wells by InGaN/AlGaN ultra-thin superlattice barriers with different indium composition“. In: *Journal of Applied Physics* 110.12, 123108 (2011), S. 123108. DOI: 10.1063/1.3666060.
- [22] J. Lähnemann, O. Brandt, U. Jahn, C. Pfüller, C. Roder, P. Dogan u. a. „Direct experimental determination of the spontaneous polarization of GaN“. In: *Physical Review B* 86 (Aug. 2012), S. 081302. DOI: 10.1103/PhysRevB.86.081302.
- [23] U. Jahn, J. Lähnemann, C. Pfüller, O. Brandt, S. Breuer, B. Jenichen u. a. „Luminescence of GaAs nanowires consisting of wurtzite and zinc-blende segments“. In: *Physical Review B* 85 (4 Jan. 2012), S. 045323. DOI: 10.1103/PhysRevB.85.045323.
- [24] T. Langer, A. Kruse, F. A. Ketzer, A. Schwiegel, L. Hoffmann, H. Jönen u. a. „Origin of the “green gap”: Increasing nonradiative recombination in indium-rich GaInN/GaN quantum well structures“. In: *physica status solidi (c)* 8.7-8 (2011), S. 2170–2172. ISSN: 1610-1642. DOI: 10.1002/pssc.201001051.
- [25] A. Drabinska, K. Pakula, J. M. Baranowski und A. Wysmolek. „Electroreflectance investigations of quantum confined Stark effect in GaN quantum wells“. In: *Journal of Physics: Conference Series* 253.1 (2010), S. 012009.
- [26] C. Y. Lai, T. M. Hsu, W.-H. Chang, K.-U. Tseng, C.-M. Lee, C.-C. Chuo und J.-I. Chyi. „Direct measurement of piezoelectric field in InGaN/GaN multiple quantum wells by electrotransmission spectroscopy“. In: *Journal of Applied Physics* 91.1 (2002), S. 531–533. DOI: 10.1063/1.1426237.
- [27] D. Cherns, J. Barnard und F. Ponce. „Measurement of the piezoelectric field across strained InGaN/GaN layers by electron holography“. In: *Solid State Communications* 111.5 (1999), S. 281–285. ISSN: 0038-1098. DOI: 10.1016/S0038-1098(99)00130-1.
- [28] W. D. Rau, P. Schwander, F. H. Baumann, W. Höppner und A. Ourmazd. „Two-Dimensional Mapping of the Electrostatic Potential in Transistors by Electron Holography“. In: *Physical Review Letters* 82 (März 1999), S. 2614–2617. DOI: 10.1103/PhysRevLett.82.2614.
- [29] W. Lu, C. R. Li und Z. Zhang. „Study of band structure InGaN/GaN multiple quantum wells by high-resolution electron microscopy and electron holography“. In: *Applied Physics Letters* 86.4 (2005), S. 041902. DOI: 10.1063/1.1856138.

- [30] Z. H. Wu, M. Stevens, F. A. Ponce, W. Lee, J. H. Ryou, D. Yoo und R. D. Dupuis. „Mapping the electrostatic potential across AlGaN/AlN/GaN heterostructures using electron holography“. In: *Applied Physics Letters* 90.3 (2007), S. 032101. DOI: 10.1063/1.2431716.
- [31] Z. H. Wu, A. M. Fischer, F. A. Ponce, W. Lee, J. H. Ryou, J. Limb, D. Yoo und R. D. Dupuis. „Effect of internal electrostatic fields in InGaN quantum wells on the properties of green light emitting diodes“. In: *Applied Physics Letters* 91.4, 041915 (2007), S. 041915. DOI: 10.1063/1.2760160.
- [32] L. Zhou, D. A. Cullen, D. J. Smith, M. R. McCartney, A. Mouti, M. Gonschorek u. a. „Polarization field mapping of AlInN/AlN/GaN heterostructure“. In: *Applied Physics Letters* 94.12 (2009), S. 121909. DOI: 10.1063/1.3108084.
- [33] M. Deguchi, S. Tanaka und T. Tanji. „Determination of Piezoelectric Fields Across InGaN/GaN Quantum Wells by Means of Electron Holography“. In: *Journal of Electronic Materials* 39 (6 2010), S. 815–818. ISSN: 0361-5235. DOI: 10.1007/s11664-010-1092-9.
- [34] L. Zhou, M. Gonschorek, E. Giraud, E. Feltin, J. F. Carlin, N. Grandjean, D. J. Smith und M. R. McCartney. „Measurement of polarization-induced electric fields in GaN/AlInN quantum wells“. In: *Applied Physics Letters* 101.25, 251902 (2012), S. 251902. DOI: 10.1063/1.4772633.
- [35] S. Nakamura und G. Fasol. *The blue laser diode: GaN based light emitters and lasers*. Springer, 1997. ISBN: 9783540615903.
- [36] S. C. Jain, M. Willander, J. Narayan und R. V. Overstraeten. „III–nitrides: Growth, characterization, and properties“. In: *Journal of Applied Physics* 87.3 (2000), S. 965–1006. DOI: 10.1063/1.371971.
- [37] I. Vurgaftman und J. R. Meyer. „Band parameters for nitrogen-containing semiconductors“. In: *Journal of Applied Physics* 94.6 (2003), S. 3675–3696. DOI: 10.1063/1.1600519.
- [38] A. E. Romanov, T. J. Baker, S. Nakamura, J. S. Speck und E. U. Group. „Strain-induced polarization in wurtzite III-nitride semipolar layers“. In: *Journal of Applied Physics* 100.2, 023522 (2006), S. 023522. DOI: 10.1063/1.2218385.
- [39] E. F. Schubert. *Light-Emitting Diodes*. Cambridge University Press, 2006. ISBN: 9780521865388.
- [40] J. Piprek. *Nitride Semiconductor Devices: Principles and Simulation*. Wiley, 2007. ISBN: 9783527406678.
- [41] M. Feneberg und K. Thonke. „Polarization fields of III-nitrides grown in different crystal orientations“. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* 19.40 (2007), S. 403201. DOI: 10.1088/0953-8984.

- [42] P. Rinke, M. Winkelkemper, A. Qteish, D. Bimberg, J. Neugebauer und M. Scheffler. „Consistent set of band parameters for the group-III nitrides AlN, GaN, and InN“. In: *Physical Review B* 77 (Feb. 2008), S. 075202. DOI: [10.1103/PhysRevB.77.075202](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.075202).
- [43] J.-R. Chen, S.-C. Ling, H.-M. Huang, P.-Y. Su, T.-S. Ko, T.-C. Lu u. a. „Numerical study of optical properties of InGaN multi-quantum-well laser diodes with polarization-matched AlInGaN barrier layers“. In: *Applied Physics B* 95 (2009), S. 145–153. DOI: [10.1007/s00340-008-3331-9](https://doi.org/10.1007/s00340-008-3331-9).
- [44] M. T. Hardy, D. F. Feezell, S. P. DenBaars und S. Nakamura. „Group III-nitride lasers: a materials perspective“. In: *Materials Today* 14.9 (2011), S. 408–415. ISSN: 1369-7021. DOI: [10.1016/S1369-7021\(11\)70185-7](https://doi.org/10.1016/S1369-7021(11)70185-7).
- [45] D.-Y. Lee, S.-H. Han, D.-J. Lee, J. W. Lee, D.-J. Kim, Y. S. Kim und S.-T. Kim. „Effect of an electron blocking layer on the piezoelectric field in InGaN/GaN multiple quantum well light-emitting diodes“. In: *Applied Physics Letters* 100.4, 041119 (2012), S. 041119. DOI: [10.1063/1.3681162](https://doi.org/10.1063/1.3681162).
- [46] L. Hoffmann, H. Bremers, H. Jonen, U. Rossow, M. Schowalter, T. Mehrtens, A. Rosenauer und A. Hangleiter. „Atomic scale investigations of ultra-thin GaInN/GaN quantum wells with high indium content“. In: *Applied Physics Letters* 102.10 (2013), S. 102110. DOI: [10.1063/1.4795623](https://doi.org/10.1063/1.4795623).
- [47] F. Bernardini, V. Fiorentini und D. Vanderbilt. „Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides“. In: *Physical Review B* 56.16 (16 Okt. 1997), R10024–R10027. DOI: [10.1103/PhysRevB.56.R10024](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.56.R10024).
- [48] V. Fiorentini, F. Bernardini, F. Della Sala, A. Di Carlo und P. Lugli. „Effects of macroscopic polarization in III-V nitride multiple quantum wells“. In: *Physical Review B* 60 (12 Sep. 1999), S. 8849–8858. DOI: [10.1103/PhysRevB.60.8849](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.60.8849).
- [49] S.-H. Park. „Crystal orientation effects on electronic properties of wurtzite InGaN/GaN quantum wells“. In: *Journal of Applied Physics* 91.12 (2002). DOI: [10.1063/1.1480465](https://doi.org/10.1063/1.1480465).
- [50] A. Hangleiter, F. Hitzel, S. Lahmann und U. Rossow. „Composition dependence of polarization fields in GaInN/GaN quantum wells“. In: *Applied Physics Letters* 83.6 (2003). spontaneous polarization InN GaN, S. 1169–1171. DOI: [10.1063/1.1601310](https://doi.org/10.1063/1.1601310).
- [51] M. Thomsen, H. Jönen, U. Rossow und A. Hangleiter. „Spontaneous polarization field in polar and nonpolar GaInN/GaN quantum well structures“. In: *physica status solidi (b)* 248.3 (2011), S. 627–631. ISSN: 1521-3951. DOI: [10.1002/pssb.201046337](https://doi.org/10.1002/pssb.201046337).

- [52] C. C. Shieh, X. Y. Cui, B. Delley und C. Stampfl. „Built-in electric fields and valence band offsets in InN/GaN(0001) superlattices: First-principles investigations“. In: *Journal of Applied Physics* 109.8, 083721 (2011), S. 083721. DOI: [10.1063/1.3573499](https://doi.org/10.1063/1.3573499).
- [53] L. Zhang, K. Ding, N. X. Liu, T. B. Wei, X. L. Ji, P. Ma u. a. „Theoretical study of polarization-doped GaN-based light-emitting diodes“. In: *Applied Physics Letters* 98.10 (2011), S. 101110. DOI: [10.1063/1.3565173](https://doi.org/10.1063/1.3565173).
- [54] J. Pal, G. Tse, V. Haxha, M. A. Migliorato und S. Tomić. „Second-order piezoelectricity in wurtzite III-N semiconductors“. In: *Physical Review B* 84 (8 Aug. 2011), S. 085211. DOI: [10.1103/PhysRevB.84.085211](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.085211).
- [55] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood und C. A. Burrus. „Band-Edge Electroabsorption in Quantum Well Structures: The Quantum-Confining Stark Effect“. In: *Physical Review Letters* 53 (Nov. 1984), S. 2173–2176. DOI: [10.1103/PhysRevLett.53.2173](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.53.2173).
- [56] J. Hader, J. V. Moloney, B. Pasenow, S. W. Koch, M. Sabathil, N. Linder und S. Lutgen. „On the importance of radiative and Auger losses in GaN-based quantum wells“. In: *Applied Physics Letters* 92.26 (2008), S. 261103. DOI: [10.1063/1.2953543](https://doi.org/10.1063/1.2953543).
- [57] M. F. Schubert, J. Xu, J. K. Kim, E. F. Schubert, M. H. Kim, S. Yoon u. a. „Polarization-matched GaInN/AlGaInN multi-quantum-well light-emitting diodes with reduced efficiency droop“. In: *Applied Physics Letters* 93.4 (2008), S. 041102. DOI: [10.1063/1.2963029](https://doi.org/10.1063/1.2963029).
- [58] R. B. Chung, C. Han, C.-C. Pan, N. Pfaff, J. S. Speck, S. P. DenBaars und S. Nakamura. „The reduction of efficiency droop by AlInN/GaN superlattice electron blocking layer in (0001) oriented GaN-based light emitting diodes“. In: *Applied Physics Letters* 101.13, 131113 (2012), S. 131113. DOI: [10.1063/1.4756791](https://doi.org/10.1063/1.4756791).
- [59] M. Lohr, I. Pietzonka, M. Strassburg, K. Müller, A. Rosenauer und J. Zweck. „Quantification of electric fields in InGaN/GaN quantum wells with differential phase contrast microscopy“. In: *Eingereicht* (2013).
- [60] M. Lohr, M. Jetter, C. Wächter, K. Müller, T. Mehrtens, A. Rosenauer und J. Zweck. „Determination of the inelastic mean free path of electrons in GaN by HAADF STEM and EELS measurements and simulation“. In: *Eingereicht* (2013).
- [61] D. Bohm und D. Pines. „A Collective Description of Electron Interactions: III. Coulomb Interactions in a Degenerate Electron Gas“. In: *Phys. Rev.* 92 (Nov. 1953), S. 609–625. DOI: [10.1103/PhysRev.92.609](https://doi.org/10.1103/PhysRev.92.609).

- [62] C. Festenberg. „Energieverlustmessungen an III–V-Verbindungen“. German. In: *Zeitschrift für Physik* 227 (5 1969), S. 453–481. ISSN: 0044-3328. DOI: 10.1007/BF01394892.
- [63] A. Rosenauer, K. Gries, K. Müller, A. Pretorius, M. Schowalter, A. Avramescu, K. Engl und S. Lutgen. „Measurement of specimen thickness and composition in using high-angle annular dark field images“. In: *Ultramicroscopy* 109.9 (2009), S. 1171–1182. ISSN: 0304-3991. DOI: 10.1016/j.ultramic.2009.05.003.
- [64] D. B. Williams und C. B. Carter. *Transmission Electron Microscopy*. New York: Plenum Press, 1996. ISBN: 0-306-45324-X.
- [65] L. Reimer. *Transmission Electron Microscopy*. Fourth Edition. Optical Sciences. Springer, 1997. ISBN: 3-540-62568-2.
- [66] H. Alexander. *Physikalische Grundlagen der Elektronenmikroskopie*. Stuttgart: Teubner, 1997. ISBN: 3-519-03221-X.
- [67] M. Knoll und E. Ruska. „Das Elektronenmikroskop“. In: *Zeitschrift für Physik* 78 (1932), S. 318–339. ISSN: 0044-3328. DOI: 10.1007/BF01342199.
- [68] S. W. Hell und J. Wichmann. „Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission: stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy“. In: *Optics Letters* 19.11 (Juni 1994), S. 780–782. DOI: 10.1364/OL.19.000780.
- [69] S. Hell und M. Kroug. „Ground-state-depletion fluorescence microscopy: A concept for breaking the diffraction resolution limit“. In: *Applied Physics B* 60.5 (1995), S. 495–497. ISSN: 0946-2171. DOI: 10.1007/BF01081333.
- [70] S. W. Hell. „Microscopy and its focal switch“. In: *Nature Methods* 6.1 (2009), S. 24–32. ISSN: 1548-7091. DOI: 10.1038/nmeth.1291.
- [71] *Lehrbuch der Experimentalphysik Bd.3 Optik: Wellen- und Teilchenoptik*. Bergmann. Gruyter, Walter de GmbH, 2004. ISBN: 9783110170818.
- [72] L. Broglie. „The reinterpretation of wave mechanics“. In: *Foundations of Physics* 1 (1 1970), S. 5–15. ISSN: 0015-9018. DOI: 10.1007/BF00708650.
- [73] B. Cordero, V. Gomez, A. E. Platero-Prats, M. Reves, J. Echeverria, E. Cremades, F. Barragan und S. Alvarez. „Covalent radii revisited“. In: *Dalton Trans.* (2008), S. 2832–2838. DOI: 10.1039/B801115J.
- [74] R. F. Egerton. *Electron energy-loss spectroscopy in the electron microscope*. New York: Plenum, 1996. ISBN: 0-306-45223-5.

- [75] T. Malis, S. C. Cheng und R. F. Egerton. „EELS log-ratio technique for specimen-thickness measurement in the TEM“. In: *Journal of Electron Microscopy Technique* 8.2 (1988), S. 193–200. ISSN: 1553-0817. DOI: 10.1002/jemt.1060080206.
- [76] M. Stöger-Pollach. „Mittlere Anregungsenergie von Plasmonen in GaN“. Persönliche Kommunikation. Technische Universität Wien. 2013.
- [77] V. J. Keast, A. J. Scott, M. J. Kappers, C. T. Foxon und C. J. Humphreys. „Electronic structure of GaN and InGaN measured with electron energy-loss spectroscopy“. In: *Physical Review B* 66 (12 Sep. 2002), S. 125319. DOI: 10.1103/PhysRevB.66.125319.
- [78] D. K. Hamilton und C. J. R. Sheppard. „Differential phase contrast in scanning optical microscopy“. In: *Journal of Microscopy* 133.1 (1984), S. 27–39. ISSN: 1365-2818. DOI: 10.1111/j.1365-2818.1984.tb00460.x.
- [79] F. Pfeiffer, T. Weitkamp, O. Bunk und C. David. „Phase retrieval and differential phase-contrast imaging with low-brilliance X-ray sources“. In: *Nature Physics* 2.4 (Apr. 2006), S. 258–261. DOI: 10.1038/nphys265.
- [80] W. B. Amos, S. Reichelt, D. M. Cattermole und J. Laufer. „Re-evaluation of differential phase contrast (DPC) in a scanning laser microscope using a split detector as an alternative to differential interference contrast (DIC) optics“. In: *Journal of Microscopy* 210.2 (2003), S. 166–175. ISSN: 1365-2818.
- [81] B. Hornberger, M. D. de Jonge, M. Feser, P. Holl, C. Holzner, C. Jacobsen u. a. „Differential phase contrast with a segmented detector in a scanning X-ray microprobe“. In: *Journal of Synchrotron Radiation* 15.4 (Juli 2008), S. 355–362.
- [82] J. N. Chapman, I. R. McFadyen und S. McVitie. „Modified Differential Phase Contrast Lorentz Microscopy for Improved Imaging of Magnetic Structures.“ In: *IEEE Trans. Magn.* 26.5 (1997), S. 1506–1511.
- [83] Digia. *Qt Project*. 2013. URL: <http://qt-project.org> (besucht am 08.03.2013).
- [84] C. A. Schneider, W. S. Rasband und K. W. Eliceiri. „NIH Image to ImageJ: 25 years of image analysis“. In: *Nature Methods* 9.7 (Juli 2012), S. 671–675. ISSN: 1548-7091. DOI: 10.1038/nmeth.2089.
- [85] R. Schregle. „Kalibrierung eines DPC-Detektors mit Hilfe eines speziell erstellten Probenhalters“. Diplomarbeit. Fakultät für Physik, Universität Regensburg, 2011.
- [86] F. Bernardini und V. Fiorentini. „Macroscopic polarization and band offsets at nitride heterojunctions“. In: *Physical Review B* 57 (Apr. 1998), R9427–R9430. DOI: 10.1103/PhysRevB.57.R9427.

- [87] F. Bernardini und V. Fiorentini. „Polarization fields in nitride nanostructures: 10 points to think about“. In: *Applied Surface Science* 166.1–4 (2000), S. 23–29. ISSN: 0169-4332. DOI: 10.1016/S0169-4332(00)00434-7.
- [88] S. Kaiser. „TEM-Untersuchungen von heteroepitaktischen Gruppe III-Nitriden“. Dissertation. Fakultät für Physik, Universität Regensburg, 2000.
- [89] T. Schuhrke. „Untersuchungen von Artefakten bei der Präparation von Proben für die Transmissionselektronenmikroskopie“. Diplomarbeit. Fakultät für Physik, Universität Regensburg, 1991.
- [90] Wikipedia. *III-V-Verbindungshalbleiter* — Wikipedia, Die freie Enzyklopädie. Benutzer: Degreen (de.wikipedia.org), Lizenz: CC-BY-SA-2.0-de. 2013. URL: <http://de.wikipedia.org/w/index.php?title=III-V-Verbindungs-halbleiter&oldid=116720812> (besucht am 25.04.2013).
- [91] N. Ashcroft und N. Mermin. *Festkörperphysik*. Oldenbourg, 2005. ISBN: 9783486577204.
- [92] *Theoretische Festkörperphysik: Von den klassischen Modellen zu modernen Forschungsthemen*. Springer-Lehrbuch. 2007.
- [93] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Einführung in die Festkörperphysik. 2013.
- [94] K. Fujito, S. Kubo, H. Nagaoka, T. Mochizuki, H. Namita und S. Nagao. „Bulk GaN crystals grown by HVPE“. In: *Journal of Crystal Growth* 311.10 (2009). Proceedings of the "2nd International Symposium on Growth of III Nitrides, S. 3011–3014. ISSN: 0022-0248. DOI: 10.1016/j.jcrysGro.2009.01.046.
- [95] Z. Andreev, F. Römer und B. Witzigmann. „Simulation of InGaN quantum well LEDs with reduced internal polarization“. In: *physica status solidi (a)* 209.3 (2012), S. 487–490. ISSN: 1862-6319. DOI: 10.1002/pssa.201100377.
- [96] J. Narayan. „Recent progress in thin film epitaxy across the misfit scale (2011 Acta Gold Medal Paper)“. In: *Acta Materialia* 61.8 (2013), S. 2703–2724. ISSN: 1359-6454. DOI: 10.1016/j.actamat.2012.09.070.
- [97] F. El-Ela und B. El-Assy. „Electron transport in wurtzite InN“. In: *Pramana* 79 (1 2012), S. 125–136. ISSN: 0304-4289. DOI: 10.1007/s12043-012-0294-5.
- [98] V. Kladko, A. Kuchuk, P. Lytvyn, O. Yefanov, N. Safriuk, A. Belyaev u. a. „Substrate effects on the strain relaxation in GaN/AlN short-period superlattices“. In: *Nanoscale Research Letters* 7.1 (2012), S. 289. ISSN: 1556-276X. DOI: 10.1186/1556-276X-7-289.

- [99] E. H. Kisi und M. M. Elcombe. „*u* parameters for the wurtzite structure of ZnS and ZnO using powder neutron diffraction“. In: *Acta Crystallographica Section C* 45.12 (Dez. 1989), S. 1867–1870. DOI: 10.1107/S0108270189004269.
- [100] Wikipedia. *Galliumnitrid* — Wikipedia, Die freie Enzyklopädie. 2013. URL: <http://de.wikipedia.org/w/index.php?title=Galliumnitrid&oldid=112520225> (besucht am 25.01.2013).
- [101] L. Bergmann, C. Schaefer und R. Kassing. *Lehrbuch der Experimentalphysik 6. Festkörper*. Lehrbuch der Experimentalphysik. De Gruyter, 2005. ISBN: 978-3-11-019815-7. DOI: 10.1515/9783110198157.
- [102] Y. Tu und J. Tersoff. „Origin of Apparent Critical Thickness for Island Formation in Heteroepitaxy“. In: *Physical Review Letters* 93 (Nov. 2004), S. 216101. DOI: 10.1103/PhysRevLett.93.216101.
- [103] W. Lu, D. B. Li, C. R. Li, F. Shen und Z. Zhang. „Effect of critical thickness on structural and optical properties of InGaN/GaN multiple quantum wells“. In: *Journal of Applied Physics* 95.8 (2004), S. 4362–4366. DOI: 10.1063/1.1667010.
- [104] M. Leyer, J. Stellmach, C. Meissner, M. Pristovsek und M. Kneissl. „The critical thickness of InGaN on (0001)GaN“. In: *Journal of Crystal Growth* 310.23 (2008), S. 4913–4915. ISSN: 0022-0248. DOI: 10.1016/j.jcrysGro.2008.08.021.
- [105] D. Holec, Y. Zhang, D. V. S. Rao, M. J. Kappers, C. McAleese und C. J. Humphreys. „Equilibrium critical thickness for misfit dislocations in III-nitrides“. In: *Journal of Applied Physics* 104.12 (2008), S. 123514. DOI: 10.1063/1.3033553.
- [106] H. Ye, P. Lu, Z. Yu, Z. Chen, B. Jia, H. Feng und Y. Liu. „Equilibrium critical thickness for a wurtzite InGaN/GaN heterostructure“. In: *Superlattices and Microstructures* 48.1 (2010), S. 58–65. ISSN: 0749-6036. DOI: 10.1016/j.spmi.2010.04.009.
- [107] W. Zhao, L. Wang, J. Wang, Z. Hao und Y. Luo. „Theoretical study on critical thicknesses of InGaN grown on (0001) GaN“. In: *Journal of Crystal Growth* 327 (2011), S. 202–204. DOI: 10.1016/j.jcrysGro.2011.05.002.
- [108] A. Belabbes, J. Furthmüller und F. Bechstedt. „Relation between spontaneous polarization and crystal field from first principles“. In: *Physical Review B* 87 (Jan. 2013), S. 035305. DOI: 10.1103/PhysRevB.87.035305.
- [109] B. Bauer, J. Hubmann, M. Lohr, E. Reiger, D. Bougeard und J. Zweck. „Direct detection of spontaneous polarization in wurtzite GaAs nanowires“. In: *7th nanowire growth workshop*. Poster. Lausanne, 2013.

- [110] I. H. Brown, I. A. Pope, P. M. Smowton, P. Blood, J. D. Thomson, W. W. Chow, D. P. Bour und M. Kneissl. „Determination of the piezoelectric field in InGaN quantum wells“. In: *Applied Physics Letters* 86.13 (2005), S. 131108. DOI: 10.1063/1.1896446.
- [111] J. Pal, G. Tse, V. Haxha, M. Migliorato und S. Tomić. „Importance of non linear piezoelectric effect in Wurtzite III-N semiconductors“. In: *Optical and Quantum Electronics* 44.3 (2012), S. 195–203. ISSN: 0306-8919. DOI: 10.1007/s11082-011-9518-z.
- [112] A. Dadgar, L. Groh, S. Metzner, S. Neugebauer, J. Blasing, T. Hempel u. a. „Green to blue polarization compensated c-axis oriented multi-quantum wells by AlGaN barrier layers“. In: *Applied Physics Letters* 102.6, 062110 (2013), S. 062110. DOI: 10.1063/1.4793185.
- [113] A. Pritschet. „Numerical and Experimental Investigations of Boersch Phase Plate equipped Condenser Apertures for Use in Electron Magnetic Circular Dichroism Experiments in a Transmission Electron Microscope“. Dissertation. Fakultät für Physik, Universität Regensburg, 2013.
- [114] Joffe Institut. *Gallium Nitride — Basic Parameters for Wurtzite crystal structure*. 2013. URL: <http://www.ioffe.rssi.ru/SVA/NSM/Semicond/GaN/basic.html> (besucht am 28.03.2013).
- [115] H.-R. Zhang, R. F. Egerton und M. Malac. „Local thickness measurement through scattering contrast and electron energy-loss spectroscopy“. In: *Micron* 43.1 (2012). Applications of EELS in Materials and Physics Research, S. 8–15. ISSN: 0968-4328. DOI: 10.1016/j.micron.2011.07.003.
- [116] S. Hata, H. Sosiati, N. Kuwano, M. Itakura, T. Nakano und Y. Umakoshi. „Removing focused ion-beam damages on transmission electron microscopy specimens by using a plasma cleaner“. In: *Journal of Electron Microscopy* 55.1 (2006), S. 23–26. DOI: 10.1093/jmicro/55.1.23.
- [117] M. Funato, M. Ueda, D. Inoue, Y. Kawakami, Y. Narukawa und T. Mukai. „Experimental and Theoretical Considerations of Polarization Field Direction in Semipolar InGaN/GaN Quantum Wells“. In: *Applied Physics Express* 3.7 (2010), S. 071001. DOI: 10.1143/APEX.3.071001.
- [118] Y. Varshni. „Temperature dependence of the energy gap in semiconductors“. In: *Physica* 34.1 (1967), S. 149–154. ISSN: 0031-8914. DOI: 10.1016/0031-8914(67)90062-6.
- [119] A. Rosenauer, T. Mehtens, K. Müller, K. Gries, M. Schowalter, P. V. Satyam u. a. „Composition mapping in InGaN by scanning transmission electron microscopy“. In: *Ultramicroscopy* 111.8 (2011), S. 1316–1327. ISSN: 0304-3991. DOI: 10.1016/j.ultramic.2011.04.009.

- [120] K. Müller. „Dicke und Indiumgehalt der Doppelquantentrogprobe“. Persönliche Kommunikation. Universität Bremen. 2012.
- [121] R. Leute. „Ergebnisse der Photolumineszenzmessungen des Doppelquantentrogs“. Persönliche Kommunikation. Universität Bremen. 2013.
- [122] A. Trellakis, T. Zibold, T. Andlauer, S. Birner, R. K. Smith, R. Morschl und P. Vogl. „The 3D nanometer device project nextnano: Concepts, methods, results“. In: *Journal of Computational Electronics* 5 (2006), S. 285–289. ISSN: 1569-8025. DOI: 10.1007/s10825-006-0005-x.
- [123] S. Birner, S. Hackenbuchner, M. Sabathil, G. Zandler, J. Majewski, T. Andlauer u. a. „Modeling of Semiconductor Nanostructures with nextnano3“. In: *ACTA PHYSICA POLONICA SERIES A* 110.2 (2006), S. 111.
- [124] S. Birner, T. Zibold, T. Andlauer, T. Kubis, M. Sabathil, A. Trellakis und P. Vogl. „nextnano: General Purpose 3-D Simulations“. In: *IEEE Transactions on Electron Devices* 54.9 (Sep. 2007), S. 2137–2142.
- [125] A. Nirschl. „Simulation der elektrischen Feldstärke“. Persönliche Kommunikation. Osram OS. 2013.
- [126] W. Gotz, N. M. Johnson, J. Walker, D. P. Bour, H. Amano und I. Akasaki. „Hydrogen passivation of Mg acceptors in GaN grown by metalorganic chemical vapor deposition“. In: *Applied Physics Letters* 67.18 (1995), S. 2666–2668. DOI: 10.1063/1.114330.
- [127] J. Wagner. „Photolumineszenzmessungen der quaternär gepufferten Quantentroge“. Persönliche Kommunikation. 2013.
- [128] R. Dingle und M. Ilegems. „Donor-acceptor pair recombination in GaN“. In: *Solid State Communications* 9.3 (1971), S. 175–180. ISSN: 0038-1098. DOI: 10.1016/0038-1098(71)90112-8.
- [129] C. Karbaum. „Ergebnisse Kathodolumineszenzmessungen an BK378X“. Persönliche Kommunikation. Universität Magdeburg. 2013.
- [130] D. Reynolds, D. Look, B. Jogai und R. Molnar. „Phonon replicas associated with donor–bound–excitons in GaN“. In: *Solid State Communications* 108.1 (1998), S. 49–52. ISSN: 0038-1098. DOI: 10.1016/S0038-1098(98)00298-1.
- [131] P. Tronc, Y. Kitaev, G. Wang, M. Limonov und G. Neu. „Phonon-assisted optical transitions in GaN with impurities and defects“. In: *Physica B: Condensed Matter* 302–303 (2001), S. 291–298. ISSN: 0921-4526. DOI: 10.1016/S0921-4526(01)00443-4.

- [132] V. Fiorentini, F. Bernardini und O. Ambacher. „Evidence for nonlinear macroscopic polarization in III–V nitride alloy heterostructures“. In: *Applied Physics Letters* 80.7 (2002), S. 1204–1206. DOI: [10.1063/1.1448668](https://doi.org/10.1063/1.1448668).
- [133] M. Levinstein, S. Rumyantsev und M. Shur. *Properties of Advanced Semiconductor Materials: GaN, AlN, InN, BN, SiC, SiGe*. Wiley-Interscience publication. Wiley, 2001. ISBN: 9780471358275.
- [134] A. Zhelio. „Simulation der elektrischen Feldstärke“. Persönliche Kommunikation. Universität Kassel. 2013.
- [135] O. Gfrörer. „Konsquenzen von Verspannung und Symmetrie in Gruppe III–Nitriden“. Dissertation. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart, 2000.
- [136] L. Vegard. „Die Konstitution der Mischkristalle und die Raumfüllung der Atome“. In: *Zeitschrift für Physik* 5.1 (1921), S. 17–26. ISSN: 0044-3328. DOI: [10.1007/BF01349680](https://doi.org/10.1007/BF01349680).
- [137] K. Müller. „Indiumgehalt der Achtfach-Quantentrogprobe“. Persönliche Kommunikation. Universität Bremen. 2013.
- [138] C. Karbaum. „Beweglichkeit von freien Exzitonen in GaN“. Persönliche Kommunikation. Universität Magdeburg. 2013.
- [139] B. E. Foutz, L. F. Eastman, U. V. Bhapkar und M. S. Shur. „Comparison of high field electron transport in GaN and GaAs“. In: *Applied Physics Letters* 70.21 (1997), S. 2849–2851. DOI: [10.1063/1.119021](https://doi.org/10.1063/1.119021).
- [140] S. K. O’Leary, B. E. Foutz, M. S. Shur, U. V. Bhapkar und L. F. Eastman. „Electron transport in wurtzite indium nitride“. In: *Journal of Applied Physics* 83.2 (1998), S. 826–829. DOI: [10.1063/1.366641](https://doi.org/10.1063/1.366641).
- [141] B. E. Foutz, S. K. O’Leary, M. S. Shur und L. F. Eastman. „Transient electron transport in wurtzite GaN, InN, and AlN“. In: *Journal of Applied Physics* 85.11 (1999), S. 7727–7734. DOI: [10.1063/1.370577](https://doi.org/10.1063/1.370577).
- [142] L. Ardaravicius, A. Matulionis, J. Liberis, O. Kiprijanovic, M. Ramonas, L. F. Eastman, J. R. Shealy und A. Vertiatchikh. „Electron drift velocity in AlGaN/GaN channel at high electric fields“. In: *Applied Physics Letters* 83.19 (2003), S. 4038–4040. DOI: [10.1063/1.1626258](https://doi.org/10.1063/1.1626258).
- [143] J. M. Barker, D. K. Ferry, D. D. Koleske und R. J. Shul. „Bulk GaN and AlGaN/GaN heterostructure drift velocity measurements and comparison to theoretical models“. In: *Journal of Applied Physics* 97.6 (2005), S. 063705. DOI: [10.1063/1.1854724](https://doi.org/10.1063/1.1854724).

- [144] K. Müller. „Aktuelle Abschätzung der Messgenauigkeit bei der Dickenbestimmung mit HAADF STEM“. Persönliche Kommunikation. Universität Bremen. 2013.
- [145] M. Schowalter, A. Rosenauer, D. Lamoen, P. Kruse und D. Gerthsen. „Ab initio computation of the mean inner Coulomb potential of wurtzite-type semiconductors and gold“. In: *Applied Physics Letters* 88.23 (2006), S. 232108. DOI: 10.1063/1.2210453.
- [146] E. Völkl, L. F. Allard und D. C. Joy. *Introduction to electron holography*. Plenum Publishing Corporation, 1999.

# Eigene Veröffentlichungen

## Zeitschriften

M. Lohr, R. Schregle, M. Jetter, C. Wächter, T. Wunderer, F. Scholz und J. Zweck. „Differential phase contrast 2.0 — Opening new “fields” for an established technique“. In: *Ultramicroscopy* 117 (2012), S. 7–14. DOI: [10.1016/j.ultramic.2012.03.020](https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2012.03.020).

S. Ploch, T. Wernicke, J. Thalmair, M. Lohr, M. Pristovsek, J. Zweck, M. Weyers und M. Kneissl. „Topography of AlGaN, GaN and InGaN layers grown by metal-organic vapor phase epitaxy“. In: *Journal of Crystal Growth* 356 (2012), S. 70–74. ISSN: 0022-0248. DOI: [10.1016/j.jcrysgro.2012.07.016](https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2012.07.016).

M. Lohr, I. Pietzonka, M. Strassburg, K. Müller, A. Rosenauer und J. Zweck. „Quantification of electric fields in InGaN/GaN quantum wells with differential phase contrast microscopy“. In: *Eingereicht* (2013).

M. Lohr, M. Jetter, C. Wächter, K. Müller, T. Mehrtens, A. Rosenauer und J. Zweck. „Determination of the inelastic mean free path of electrons in GaN by HAADF-STEM and EELS measurements and simulation“. In: *Eingereicht* (2013).

## Konferenzbeiträge

- M. Lohr, J. Thalmair, M. Jetter, F. Scholz und J. Zweck. „Locally resolved imaging of internal electric fields in GaN/GaInN quantum wells by differential phase contrast microscopy“. In: *Verhandlungen der DPG 2011*. Poster. Dresden, 2011.
- M. Lohr, M. Jetter, P. Michler und J. Zweck. „Investigation of internal electric fields in GaN/InGaN quantum wells by locally resolved differential phase contrast microscopy“. In: *Proceedings der MC 2011*. Vortrag. Kiel, 2011.
- M. Lohr, R. Schregle, I. Pietzonka, M. Strassburg, R. Leute, F. Scholz u. a. „Quantitative Analysis of Internal Electric Fields in InGaN/ GaN Quantum Wells by Spatially Resolved Differential Phase Contrast Microscopy“. In: *Proceedings der EMC 2012*. Poster. Manchester, 2012.
- M. Lohr, R. Schregle, I. Pietzonka, M. Strassburg, R. Leute, F. Scholz u. a. „Quantification of internal electric fields in InGaN/GaN quantum wells by differential phase contrast microscopy“. In: *Verhandlungen der DPG 2013*. Poster. Regensburg, 2013.

# Danksagung

Diese Arbeit wäre ohne sehr viel Hilfe und Unterstützung nicht möglich gewesen. Da eine vollständige Auflistung unmöglich ist, möchte ich stellvertretend einigen Personen danken:

- meinem Doktorvater Joe Zweck, der durch seine offene, menschliche Art, sein großes fachliches Verständnis und die viele Zeit für Diskussionen einen sehr fruchtbaren und menschlichen Rahmen geschaffen hat.
- meinen Mitdoktoranden Benedikt Bauer, Andreas Pritschet und Johannes Thalmair für die durchweg gute Atmosphäre und Diskussionen.
- Benedikt im Speziellen für die vielen, meist fachlichen Diskussionen und das Beantworten ungezählter Fragen bezüglich L<sup>A</sup>T<sub>E</sub>X.
- der guten Seele im Labor, Olga Ganicheva, für die technische und präparatorische Unterstützung.
- allen Beteiligten der Forschergruppe „PolarCoN“ für die guten Zusammenarbeit und der DFG für die Finanzierung derselben. Im Speziellen möchte ich Clemens Wächter, Jan Wagner, Michael Jetter, Marcus Müller, Gordon Schmidt und Robert Leute erwähnen.
- Matthias Sabathil, Ines Pietzonka, Martin Strassburg und Anna Nirschl von Osram Opto Semiconductors für die Bereitstellung von Proben, und Simulationen sowie die ausführlichen Diskussionen.
- Andreas Rosenauer und Knut Müller von der Universität Bremen für die Möglichkeit von Messungen am dortigen TEM, Unterstützung bei der Auswertung und die angenehme Zusammenarbeit.
- Christian Back und dem gesamten Lehrstuhl inklusive unseren Technikern in der Werkstatt für die sehr gute Zusammenarbeit.
- den ungenannten Freiwilligen für das Korrekturlesen dieser Arbeit.
- und schlussendlich meinen Eltern und Großeltern, ohne die diese Arbeit nie möglich gewesen wäre.

Ganz besonderer Dank gebührt meiner Frau Ruth, die mich während meiner Promotion unermüdlich unterstützt und mir den Rücken freigehalten hat.