

TEM-Untersuchungen an GaN basierten Halbleiterheterostrukturen für optoelektronische Anwendungen



Dissertation

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

vorgelegt von

Martin Beer

aus Passau

März 2013

Das Promotionsgesuch wurde am 22.03.2013 eingereicht.
Die Arbeit wurde von Prof. Dr. Josef Zweck angeleitet.
Das Promotionskolloquium fand am 22.07.2013 statt.

Prüfungsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. Vladimir Braun
1. Gutachter: Prof. Dr. Josef Zweck
2. Gutachter: Prof. Dr. Dominique Bougeard
weiterer Prüfer: Prof. Dr. Rupert Huber

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	7
2 Transmissionselektronenmikroskopie	11
2.1 Aufbau eines Elektronenmikroskops	11
2.2 Bildentstehung im TEM - Theorie	14
2.2.1 Kontrastentstehung im TEM	14
2.2.2 Bildentstehung im TEM	17
2.3 XEDS	23
2.3.1 Entstehung und Detektion der Röntgenstrahlung	23
2.3.2 Berechnung der Elementzusammensetzung	27
2.4 DALI-Auswertungen	27
2.4.1 Grundlagen der DALI Methode	28
2.4.2 Experimentelle Durchführung	30
2.5 Probenpräparation	30
2.5.1 Querschnittspräparation	33
2.5.2 „Plan-View“-Präparation	35
3 Materialsystem	37
3.1 Gruppe-III-Nitride - Eigenschaften	37
3.2 Kristallprojektionen und -orientierungen im TEM	40
3.3 Wachstum von Gruppe-III-Nitriden	42
3.4 LED - und Laserstrukturen	48
3.4.1 Schichtaufbau	48
3.4.2 Einflussparameter für die Emissionswellenlänge	50

4 Versetzungen	53
4.1 Definitionen	53
4.2 Versetzungstypen in Gruppe-III-Nitriden	55
4.3 Entstehung von Versetzungen in Gruppe-III-Nitriden	56
4.3.1 Anpassungsversetzungen	57
4.3.2 Durchstoßversetzungen	58
4.4 Versetzungsanalyse im TEM	59
4.4.1 Versetzungsanalyse an Querschnittspräparaten	59
4.4.2 Versetzungsanalyse an Plan-View Präparaten	62
4.5 Weitere Messmethoden zur Versetzungsanalyse	65
4.5.1 Etch Pit Density (EPD)	65
4.5.2 Röntgendiffraktometrie	65
5 Versetzungsanalyse	69
5.1 Versetzungsanalyse bei Epitaxie auf verschiedenen Substraten . . .	70
5.1.1 Versetzungen bei Heteroepitaxie auf Saphir- und Siliziumkarbid-Substraten	71
5.1.2 Versetzungen bei Homoepitaxie auf GaN-Substraten	79
5.2 Versetzungsreduktion durch eine SiN - Zwischenschicht	87
5.2.1 Prozessbeschreibung	89
5.2.2 Einfluss der SiN-Position	96
5.2.3 Einfluss der Anwachsbedingungen	99
5.2.4 Einfluss der SiN-Abscheidedauer	105
5.2.5 Diskussion der Ergebnisse	108
5.2.6 Zusammenfassung SiN-Zwischenschicht	116
5.3 V-Versetzen	117
5.3.1 Definition und Entstehung von V-Versetzen	118
5.3.2 Auswirkungen von V-Versetzen auf Leistungsdaten von optoelektronischen Bauteilen	119
5.3.3 Auswirkung der Wachstumstemperatur der GaN Barrieren auf die Entstehung von V-Versetzen	121
5.3.4 Einfluss des Versetzungstyps auf die Entstehung von V-Versetzen	123
5.4 Zusammenfassung	126
6 Wachstumsanalyse von GaN und InGaN auf semipolaren Seiten-facetten mittels selektiver Epitaxie hergestellter GaN-Streifen	131
6.1 Piezofelder und Verspannungen in QW-Strukturen	132
6.2 Wachstum von InGaN QWs auf semipolaren Seiten-Facetten selektiv gewachsener GaN Streifen	134

INHALTSVERZEICHNIS

5

6.2.1	Probendesign	134
6.2.2	Wachstumsrate und Facettengeometrie	138
6.2.3	Versetzungsanalyse	140
6.2.4	Untersuchungen der aktiven Zone	141
6.2.5	Diskussion der Ergebnisse	147
6.3	Zusammenfassung	153
7	Zusammenfassung	155
A	Versetzungsreduzierende Maßnahmen bei Heteroepitaxie	161
A.1	ELO und FACELO	161
A.2	PENDEO	165
A.3	PSS	166
A.4	Zusammenfassung	168

KAPITEL 1

Einleitung

Eine der vielfältigen Möglichkeiten den weltweiten Energieverbrauch zu senken liegt darin, den Anteil an elektrischer Energie für Beleuchtungszwecke zu reduzieren: Weltweit wurden im Jahr 2005 2650 TWh an elektrischer Energie für Beleuchtung aufgewendet. Dies stellt mit einem Anteil von 19 % den größten Einzelposten im elektrischen Energieverbrauch dar [Hal10].

Beleuchtung mittels LED basierten Lösungen scheint der richtige Weg hohe Einsparungen im globalen Energieverbrauch zu erreichen. Im Vergleich zu herkömmlichen Leuchtmitteln, wie Glüh-, Halogen- oder Fluoreszenzlampen zeigen sie mittlerweile überlegene Effizienzen¹ (s. Abb. 1.1), enthalten kein Quecksilber oder andere giftige Substanzen und sind in der Lebensdauer allen anderen Leuchtmitteln überlegen.

Möglich ist der großflächige Einsatz von LED-Lösungen als Leuchtmittel seit der kommerziellen Einführung blauer LEDs Mitte der 90er Jahre durch Nakamura / Nichia [Nak00]. Seitdem kann mit Leuchtdioden im Prinzip der gesamte Spektralbereich abgedeckt werden. Für die Herstellung blauer LEDs benutzte Nakamura das Materialsystem der Gruppe-III-Nitride: In einem p-n-Übergang von GaN waren InGaN Quantentröge eingebettet, deren energetischer Abstand von Valenz- und Leitungsband Strahlung im blauen Wellenlängenbereich entsprach. Durch die Einführung blauer LEDs ist es seit diesem Zeitpunkt möglich Weißlichtquellen aus LEDs herzustellen. Wie dies technisch realisiert wird, ist in Tabelle 1.1

¹Effizienzen werden für Leuchtmittel in Lichtstrom pro aufgewandter elektrischer Leistung angegeben [Lumen/Watt].

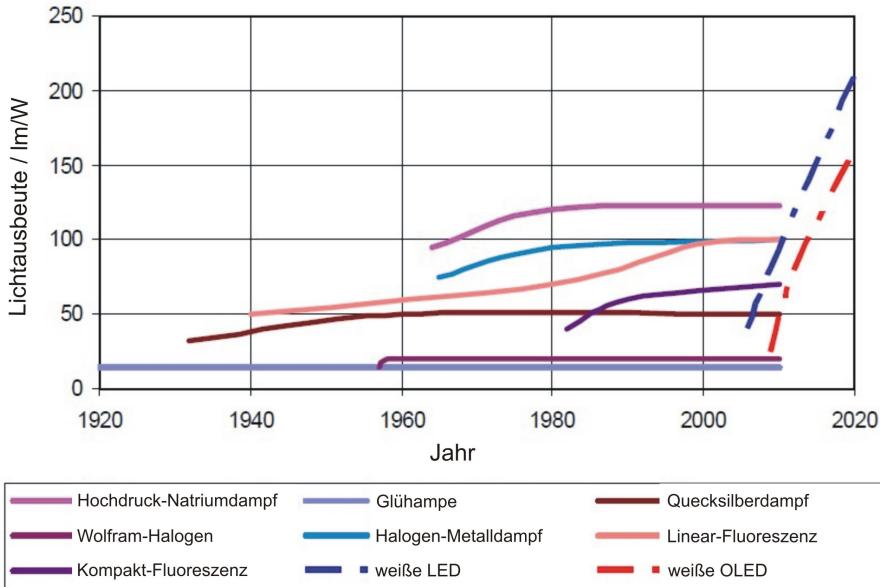


Abbildung 1.1: Zeitliche Entwicklung der Leuchtstärke verschiedener Lichtquellen. Mittlerweile sind LED Leuchtmittel in der Lichtausbeute allen anderen Lichtquellen überlegen [Hal10].

dargestellt: Weißstrahlende LED-Leuchtmittel werden durch Mischung verschiedenfarbiger LEDs oder durch Aufbringen von Phosphorschichten auf einen blauen LED-Chip erzeugt. Es entsteht durch die Mischung des emittierten Lichts unterschiedlicher Wellenlänge Weißlicht. Durch Vermengung geeigneter Phosphore kann die Farbtemperatur und der Farbwiedergabeindex² der Weißlichtstrahlung festgelegt werden.

Mittlerweile ist eine große Zahl weißstrahlender LED-Leuchtmittel, sowohl für den privaten als auch den öffentlichen / kommerziellen Gebrauch erhältlich. Die Anschaffungspreise für LED-Leuchtmittel nähern sich dabei, bei gleichem Lichtstrom (gebräuchlich sind hier die Maßeinheiten Lumen/\$ und Lumen/€), immer mehr den auf Fluoreszenz basierenden Energiesparlampen an.

Das Einsparpotential für den Anwender ist dabei enorm, sowohl im Energieverbrauch wie in der Lebensdauer der Leuchtmittel: Man kann im Moment mit einer LED Leuchte mit 9W elektrischer Leistung eine ähnliche Helligkeit erzielen, wie mit einer Glühlampe mit 60W, das entspricht einer Einsparung an elektrischer Energie von ca. 80%. Geht man bei einer LED Leuchte von einer Lebensdauer

²Der Farbwiedergabeindex ist ein Maß für die Qualität der Wiedergabe der reellen Farben von Objekten. Je höher der Wert, desto besser die Qualität der Wiedergabe. Glühlampen besitzen Werte bis 100, LED Lampen in der Regel zwischen 80 und 90 [Wik13].

von 40000 Stunden aus, entspricht dies, bei täglich 3 stündiger Nutzung, einem Zeitraum von 36 Jahren. D.h. statistisch gesehen müsste eine LED Leuchte alle 36 Jahre ausgetauscht werden, im Vergleich zu einer Glühlampe, die bei ebenfalls täglich dreistündiger Nutzung einmal pro Jahr ausgetauscht werden muss³.

Nichtsdestotrotz ist die Entwicklung bei der Herstellung von GaN-basierten optoelektronischen Bauteilen bei weitem nicht abgeschlossen. So wird z.B. weiter eine Erhöhung der Effizienz sowie eine Verbesserung des Degradationsverhaltens der LEDs angestrebt, um Energieverbrauch und Lebensdauer der Bauteile weiter zu erhöhen.

Diese beiden Punkte lagen auch u.a. den in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen zugrunde: Durch eine Verringerung der Versetzungsdichte in der aktiven Zone eines LED-Schichtsystems kann u.a. eine Verbesserung der Degradationseigenschaften erzielt werden, durch semipolares Wachstum der aktiven Zone von Leuchtdioden und Laserdioden eine Verbesserung der Rekombinationseigenschaften der Ladungsträger und dadurch eine verbesserte Effizienz.

Die Arbeit gliedert sich dabei wie folgt: Im ersten Abschnitt wird das für die Untersuchungen verwendete Transmissionselektronenmikroskop (TEM), seine Funktionsweise und Abbildungstheorie beschrieben. Dabei wird auch auf analytische TEM-Methoden eingegangen, z.B. die energiedispersive Röntgenanalyse XEDS oder die in Regensburg von Prof. Rosenauer entwickelte DALI-Analyse. Für die exakte Anwendung der Transmissionselektronenmikroskopie ist eine sorgfältige Probenpräparation von Nöten, der ein eigener Teilabschnitt gewidmet ist.

Der zweite Abschnitt beschäftigt sich mit dem Materialsystem der Gruppe-III-Nitride, zunächst allgemein theoretisch, anschließend bezogen auf das GaN basierte Wachstum optoelektronischer Bauteile.

Daran anschließend wird im dritten Abschnitt auf Versetzungen, sowohl allgemein, wie auch bezogen auf Gruppe-III-Nitride, eingegangen. Ein großer Teilabschnitt widmet sich den Möglichkeiten der Analyse von Versetzungen durch Transmissionselektronenmikroskopie, sowie den im Rahmen der Arbeit verwendeten Ergänzungs- und Vergleichsmessungen.

Im vierten Abschnitt werden Messungen zur Versetzungsanalyse an hetero- und homoepitaktischen Proben dargestellt. Hierbei wird in einem ausführlichen Teilabschnitt die Versetzungsreduktion durch eine während des Schichtwachstums eingebrachte SiN-Zwischenschicht betrachtet. Den Abschluss dieses Abschnitts bildet die Behandlung einer für Gruppe-III-Nitride typischen Defekt-Art, der V-Versetzung.

Im fünften und letzten Abschnitt wird, zunächst theoretisch, anschließend anhand

³Der Autor dieser Arbeit hätte somit gerade statistisch den ersten Austausch seiner Schreibtischleuchte durchführen müssen und bis ins Rentenalter Zeit, Geld für den zweiten Austausch beiseite zu legen...

Methode der Weißlichterzeugung	Kombination roter, grüner und blauer LEDs	Kombination eines gelben Phosphors mit einer blauen LED
Spektrum		
Effizienz	100%	80%
Vorteile	- hohe Effizienz - Anpassung des Mischverhältnisses der Farben durch elektr. Regelung	- Farbtemperatur und Farbwiedergabeindex lassen sich durch Auswahl der Phosphore beliebig einstellen
Nachteile	- untersch. Leistungsdaten für LEDs versch. Farben - untersch. Alterungsverhalten für LEDs versch. Farben - schlechter Farbwiedergabeindex	- Effizienzverluste durch Phosphorkonversion

Tabelle 1.1: Darstellung der gebräuchlichsten Arten der Herstellung von Weißlicht-LEDs.

von TEM- und EDS-Messungen, das Wachstum und die Eigenschaften von LED Strukturen auf semipolaren Seitenflächen mittels selektiver Epitaxie hergestellter GaN-Streifen beschrieben.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Schichtsystem wurden zum Großteil an der Universität Ulm epitaxiert, weitere Proben wurden vom Fraunhofer Institut (IAF) Freiburg und Osram Opto Semiconductors zur Verfügung gestellt.

KAPITEL 2

Transmissionselektronenmikroskopie

Die Transmissionselektronenmikroskopie (TEM, Transmission Electron Microscopy) ist die Hauptuntersuchungsmethode in dieser Arbeit. In diesem Kapitel werden die Grundlagen dieser Methode zusammengefasst, sowie ein theoretisches Bild der Kontrastentstehung im Transmissionselektronenmikroskop (TEM¹, Transmission Electron Microscope) entwickelt. Zusätzlich werden die Funktionsweise und die Anwendungsmöglichkeiten des am TEM zur Verfügung stehenden XEDS²-Systems und die Auswertesoftware DALI³ beschrieben. Des Weiteren wird dargestellt, welche Anforderungen an Proben für Transmissionselektronenmikroskopie gestellt werden, sowie welche dafür geeigneten Präparationsmethoden verwendet wurden.

2.1 Aufbau eines Elektronenmikroskops

In Abb. 2.1 ist eine vereinfachte Darstellung des Strahlengangs in einem TEM wiedergegeben. Prinzipiell werden zwei unterschiedliche Modi der Transmissionselektronenmikroskopie unterschieden: Im **Abbildungsmodus** wird ein zweidi-

¹Sowohl die Transmissionselektronenmikroskopie als auch das Gerät Transmissionselektronenmikroskop werden üblicherweise mit der selben Abkürzung TEM beschrieben.

²X-Ray Energy Dispersive Spectrometry

³Digital Analysis of Lattice Images

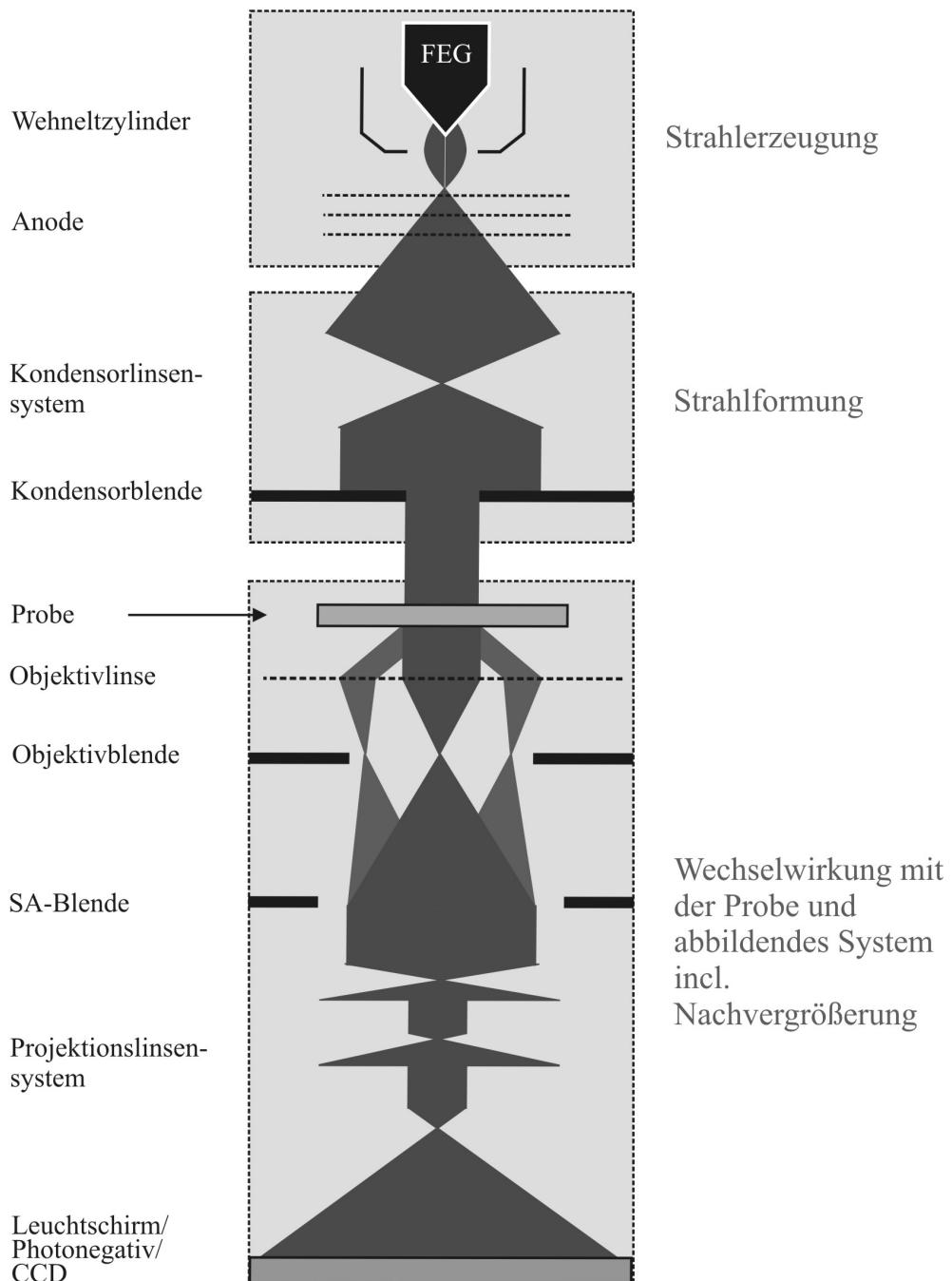


Abbildung 2.1: Skizze des stark vereinfachten Strahlengangs im TEM FEI Tecnai F30 incl. der wichtigsten Komponenten und Teilbereiche des TEM. Hervorgehoben sind die drei wesentlichen Teile: Der Bereich der Strahlerzeugung um die Feldemissionskathode, der Bereich der Strahlformung im Kondensorsystem und der Bereich der Wechselwirkung mit der Probe mit anschließendem abbildendem System.

mensionales Bild der Probe erzeugt, im **Beugungsmodus** wird das Beugungsbild der Probe betrachtet.

Im Großen lässt sich ein TEM in drei wesentliche Teile aufspalten: den Bereich der Strahlerzeugung (um die Feldemissionskathode), den Bereich der Strahlformung (überhalb der Probe) sowie das abbildende System (Bereiche der Wechselwirkung der Elektronen mit der Probe und unterhalb der Probe). Diese drei Bereiche werden im Folgenden genauer vorgestellt. Alle Beschreibungen gelten insbesondere für das in der vorliegenden Arbeit verwendete TEM FEI Tecnai F 30, sind aber mit leichten Modifikationen auf jedes TEM übertragbar.

Strahlerzeugung

Als Elektronenquelle wird im Tecnai F30 eine Feldemissionskathode (FEG, Field Emission Gun) verwendet. Im Gegensatz zu thermisch emittierenden Kathoden, bei denen durch Heizen der Kathode Elektronen freigesetzt werden, werden dabei Elektronen durch ein hohes elektrisches Feld aus der Spitze einer Wolframkathode extrahiert. Die hohen elektrischen Felder entstehen durch den extrem kleinen Krümmungsradius der Wolframspitze ($r \sim 0.1\mu\text{m}$) und bewegen sich im Bereich von $E \sim 10^{10}\text{V/m}$, bei einem an der Spitze angelegten Potential von 1 kV [Wil96]. Durch die im Vergleich zu thermisch emittierenden Kathoden kleine Austrittsfläche weisen die aus der Spitze extrahierten Elektronen eine hohe laterale Kohärenz auf; dies ist z.B. für höchstauflösende Transmissionselektronenmikroskopie, aber auch für Spezialanwendungen wie die Elektronenholografie von entscheidender Bedeutung. Die Elektronen werden anschließend durch die Gun Lens in einen ersten Brennpunkt (Cross Over) fokussiert, der als virtuelle Elektronenquelle dient. Danach werden sie durch ein mehrstufiges Anodensystem auf eine bestimmte, vorher vom Benutzer festgelegte, Energie (beim Tecnai F30 maximal: $E_{\max} = 300\text{ keV}$) beschleunigt.

Strahlformung

Anschließend durchlaufen die Elektronen das Kondensorsystem des TEMs. Hier wird mit Hilfe von Linsen⁴ und der Kondensorblende die weitere Ausbreitungsform des Strahls festgelegt. Es kann zwischen paralleler Beleuchtung, die z.B. für höchstauflösende Transmissionselektronenmikroskopie benötigt wird, sowie konvergenter Beleuchtung, z.B. für Untersuchungen im STEM⁵-Modus, gewählt werden. Allgemein kann man sagen, dass durch das Kondensorsystem die Konvergenz und die Kohärenz der Elektronenwelle sowie die Strahlintensität am Probenort festgelegt wird.

⁴In der Elektronenoptik werden magnetische Linsen verwendet.

⁵Scanning Transmission Electron Microscope

Abbildendes System

Nach der Wechselwirkung der Elektronen mit der Probe entsteht in der hinteren Brennebene der Objektivlinse das Beugungsbild. An diesem Ort befindet sich die Objektivblende durch die ein oder mehrere, zur Abbildung beitragende, Beugungsreflexe ausgewählt werden können. Ist in den ausgewählten Teilstrahlen der ungebeugte Zentralstrahl enthalten, spricht man von einer Hellfeldabbildung (BF, Bright Field); ist dieser nicht enthalten, von einer Dunkelfeldabbildung (DF, Dark Field). In der Bildebene der Objektivlinse entsteht das erste Zwischenbild, das mit Hilfe der Projektionslinsen bis zu einer Gesamtvergrößerung von maximal 1000000-fach nachvergrößert wird. Das Bild der Probe (bzw. im Beugungsmodus das Beugungsbild der Probe) wird auf einem Leuchtschirm ausgegeben und kann sowohl auf eine CCD⁶-Kamera, als auch auf Fotonegative, belichtet werden.

2.2 Bildentstehung im TEM - Theorie

Für die weitere Betrachtung der Theorie wird vom konventionellen TEM-Abbildungsmodus mit paralleler Beleuchtung der Probe ausgegangen. Dies bietet sich an, da die meisten Untersuchungen unter diesen Bedingungen durchgeführt wurden. Die weiteren Modi, wie z.B. konvergente Beleuchtung der Probe und Beugungsmodus können z.B. in [Rei93] oder [Wil96] nachgelesen werden. Auch die Strahlerzeugung, die Strahlformung und die Nachvergrößerung des ersten Zwischenbildes sollen hier vernachlässigt werden, da diese Teile für die Bildentstehung eine untergeordnete Rolle spielen.

2.2.1 Kontrastentstehung im TEM

Der im TEM detektierbare Kontrast basiert im Wesentlichen auf der elastischen Coulombstreuung von Elektronen an den Potentialen der Atome. Die potentielle Energie eines Strahlelektrons in der Umgebung eines Atomkerns beträgt

$$V_{Kern}(r_i) = -\frac{e^2 Z_{eff}}{4\pi\epsilon_0 r_i} \quad \text{mit} \quad Z_{eff} < Z, \quad (2.1)$$

dabei ist Z_{eff} die effektive Kernladungszahl, in der die Abschirmung des Kernpotentials durch die Hüllelektronen berücksichtigt wird. e und ϵ_0 sind die Elementarladung bzw. die Dielektrizitätskonstante. Unterschieden wird grundsätzlich zwischen Amplitudenkontrast und Phasenkontrast, wobei beim Amplitudenkontrast zwischen Streukontrast⁷ und Beugungskontrast differenziert wird.

⁶charged coupled device

⁷Wird im Englischen auch als „mass-thickness-contrast“ bezeichnet.

Der **Streukontrast** wird verursacht durch inelastische Streuprozesse von Strahl-elektronen an Atomen unterschiedlicher Ordnungszahl bzw. durch verschieden starke Streuung an unterschiedlich dicken Bereichen der Probe. Der Kontrast in der Abbildung entsteht durch Absorption der inelastisch gestreuten Elektronen im Bereich der Objektivblende. Je nach Streuvermögen der abgebildeten Probenorte ergeben sich Bereiche höherer und niedrigerer Intensität.

Dem **Beugungskontrast** zugrunde liegt die Beugung der einfallenden Elektronenwelle am periodischen Atomgitter im Kristall. Für den Grenzfall dünner Proben gilt die kinematische Beugungstheorie, in der der Primärstrahl beim Durchgang durch die Probe als nicht abgeschwächt angenommen wird und nur die elastische Streuung berücksichtigt wird [Rei93]. Dabei gilt die Bragg-Bedingung

$$2d \sin \Theta_{\text{Bragg}} = n \cdot \lambda \quad (n \text{ ganzzahlig}) \quad (2.2)$$

Der Kontrast in der Abbildung entsteht dadurch, dass in der Brennebene der Objektivlinse durch die Objektivblende ein Teil der elastisch gestreuten Elektronen absorbiert wird. Durch Auswahl bestimmter Teilstrahlen (Beugungsreflexe) mittels Positionierung einer Objektivblende geeigneter Größe kann man selektiv Kontrast erzeugen. Je nachdem, ob der ungebeugte Zentralstrahl in den zur Abbildung ausgewählten Teilstrahlen enthalten ist oder nicht, spricht man von einer Hellfeld- oder Dunkelfeldabbildung.

Wellenoptisch betrachtet lässt sich der Kontrast im TEM wie folgt beschreiben: Durchstrahlt man eine Probe mit einer ebenen Elektronenwelle, so wird diese in Phase und Amplitude moduliert. Die elastische Wechselwirkung einer ebenen Elektronenwelle Ψ_0 mit einer Probe der Dicke t führt zu einer Phasenmodulation, deren Stärke durch den elektronenoptischen Brechungsindex bestimmt ist und durch die Phasenverschiebung $\phi(x, y)$ berücksichtigt wird. Die Amplitudenmodulation wird durch inelastische Streuprozesse verursacht und durch einen Dämpfungsfaktor $a(x, y)$ mit $0 \leq a(x, y) \leq 1$ beschrieben. Damit erhält man für die Wellenfunktion der Elektronen nach Wechselwirkung mit der Probe nach [Rei93]:

$$\Psi_{aus} = \Psi_{ein} \cdot a(x, y) \cdot e^{i\Phi(x, y)} \quad (2.3)$$

Für den Grenzfall sehr dünner Proben (Dicke ≤ 40 nm) kann die Amplitudenmodulation vernachlässigt werden und die Probe als reines Phasenobjekt betrachtet werden [Wil96] [Rei93]. Daraus folgt für die aus der Probe austretende Welle

$$\Psi_{aus} = \Psi_{ein} \cdot e^{i\Phi(x, y)} \quad (2.4)$$

Im Elektronenmikroskop wird jedoch nicht die Phase, sondern die Intensität der Elektronenwelle, die als das Betragsquadrat der Wellenfunktion Ψ definiert ist,

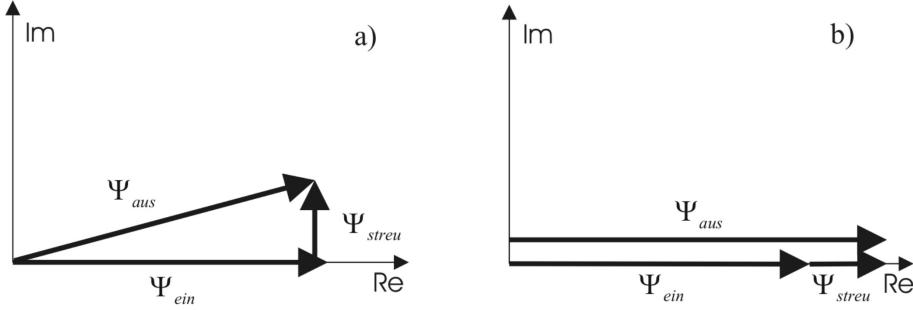


Abbildung 2.2: Darstellung der einfallenden, gestreuten und austretenden Welle im komplexen Zeigerdiagramm:

a) reines Phasenobjekt

b) zusätzliche Phasenverschiebung von ψ_{streu} um $\frac{\pi}{2}$.

detektiert. Im Fall sehr dünner Proben entsteht hiermit im Idealfall unter perfekten Abbildungsbedingungen kein Kontrast:

$$I = |\Psi_{aus}|^2 = |\Psi_{ein} e^{i\Phi(x,y)}|^2 = |\Psi_{ein}|^2 = \text{const.} \quad (2.5)$$

Da die Probe wegen der geringen Dicke näherungsweise als ein schwaches Phasenobjekt ($|\Phi(x,y)| \ll 1$) betrachtet werden kann, können bei einer Reihenentwicklung des Exponentialterms die höheren Ordnungen vernachlässigt werden:

$$\Psi_{aus} = \Psi_{ein} e^{i\Phi(x,y)} \approx \Psi_{ein} (1 + i\Phi(x,y)) = \Psi_{ein} + i \underbrace{(\Psi_{ein} \cdot \Phi(x,y))}_{\Psi_{streu}} \quad (2.6)$$

Wie das Zeigerdiagramm in Abbildung 2.2 a) zeigt, ergibt sich die austretende Welle Ψ_{aus} aus der Summe von Ψ_{ein} und der imaginären Streuwelle Ψ_{streu} . Wegen des geringen Betrags der Streuwelle Ψ_{streu} sind die Werte von Ψ_{ein} und Ψ_{aus} nahezu identisch, es entsteht kein erkennbarer Kontrast. Wenn man aber eine zusätzliche Phasenverschiebung von $\phi = \pm \frac{\pi}{2}$ zwischen Ψ_{ein} und Ψ_{streu} erzielen kann, wird der Intensitätsunterschied maximiert (s.Abb. 2.2 b)) und es gilt:

$$\Psi_{aus} = \Psi_{ein} \pm \Psi_{streu} \quad (2.7)$$

In der Realität kann diese zusätzliche Phasenverschiebung, und damit die **Phasenkontrastabbildung**, durch Ausnutzen eines Linsenfehlers der Elektronenoptik, der sphärischen Aberration der Objektivlinse, gepaart mit gezieltem Defokussieren der Probe erreicht werden. Genaueres dazu im nächsten Abschnitt, in dem die Abbildungstheorie im TEM genauer erklärt wird.

2.2.2 Bildentstehung im TEM

In diesem Abschnitt soll die Bildentstehung im TEM beschrieben werden. Dabei wird besonderes Augenmerk auf die elektronenoptischen Komponenten des TEMs gelegt. Insbesondere die für die Abbildungstheorie entscheidenden Linsenfehler (sphärische Aberration, chromatische Aberration), sowie die Strahlkonvergenz, werden erläutert und anschließend die Bildentstehung ausgehend von der aus der Probe austretenden Elektronenwelle beschrieben.

Linsenfehler

Unter **sphärischer Aberration** einer Elektronenlinse versteht man die Abhängigkeit der Brennweite f vom Einfallswinkel des Elektronenstrahls bzgl. der optischen Achse. Dadurch entsteht eine grundsätzliche Qualitätsminderung der Abbildung, da die Elektronen mit Einfallswinkel θ in der Bildebene keinen Bildpunkt erzeugen, sondern ein Unschärifescheibchen mit Radius $r(\theta) = C_s \theta^3$ (C_s : sphärische Aberrationskonstante, für das Tecnai F30 $C_s=1,4$ mm). Darüber hinaus bewirkt die sphärische Aberration eine winkelabhängige Phasenverschiebung der einfalenden Elektronenwelle ψ_{ein} um $\frac{\pi}{2} \frac{C_s}{\lambda} \theta^4$ [Spe88], so dass folgendes gilt:

$$\psi_{aus} = \psi_{ein} \cdot e^{i\Delta\phi_{sph}} = \psi_{ein} \cdot e^{i(\frac{\pi}{2\lambda} C_s \theta^4)} \quad (2.8)$$

Da der Korrekturterm $e^{i\Delta\phi_{sph}}$ für den ungestreuten Teil der Welle ($\theta=0$) gleich eins ist, kann die Wirkung der sphärischen Aberration als zusätzliche Phasenverschiebung des gestreuten Anteils bezeichnet werden. Wie im nächsten Abschnitt genauer beschrieben wird, ermöglicht dieser Effekt mit Hilfe von gezieltem Defokussieren der Probe die Phasenkontrastabbildung und somit HRTEM. Zusätzlich zur sphärischen Aberration weisen Elektronenlinsen eine **chromatische Aberration** auf. Unter der chromatischen Aberration von Elektronenlinsen versteht man die Abhängigkeit der Brennweite f von der Elektronenwellenlänge λ . Ursache für die Energieverteilung der Elektronen sind Schwankungen in der Beschleunigungsspannung, inelastische Streuprozesse, Fluktuationen der Objektivlinsenströme sowie Elektron-Elektron-Wechselwirkungen (Boersch-Effekt). Die chromatische Aberration lässt sich nach [Rei93] formulieren als

$$C_\Delta(\theta) = e^{-\frac{1}{2}\pi^2 \Delta^2 \frac{\theta^4}{\lambda^2}} \quad (2.9)$$

mit

$$\Delta = C_c \sqrt{\frac{\sigma^2(U_0)}{U_0^2} + 4 \frac{\sigma^2(I_0)}{I_0^2} + \frac{\sigma^2(E_0)}{E_0^2}}$$

Dabei sind:

- C_c : chromatische Aberrationskonstante
 $\sigma(U_0)$: Standardabweichung von der Beschleunigungsspannung U_0
 $\sigma(I_0)$: Standardabweichung vom Objektivlinsenstrom I_0
 $\sigma(E_0)$: Standardabweichung der Energieverteilung von E_0
 θ : Einfallswinkel der Elektronen
 λ : Elektronenwellenlänge

Bei der **Strahlkonvergenz** handelt es sich um keinen Linsenfehler, da aber auch durch sie die Qualität der Abbildung stark beeinflusst wird, bietet sich eine Behandlung in diesem Kapitel an. Die einfallende Welle ist nicht ideal eben, sondern die Elektronen treffen unter dem Konvergenzwinkel Θ_c zur optischen Achse auf die Probe. Dadurch verringert sich die laterale Kohärenz des Elektronenstrahls, was die Phasenkontrastabbildung als Interferenzerscheinung verschlechtert. Die charakteristische Größe für die Strahlkonvergenz ist der Konvergenzhalfwinkel Θ_c . Abhängig ist er im Wesentlichen von der Brechkraft der Kondensorlinse und der Öffnung der Kondensorblende. Hier gilt es immer einen Kompromiss zu schließen aus einem starken Strahlstrom durch das Objekt (große Helligkeit durch große Kondensorblende) und einer hohen lateralen Kohärenz (als Folge niedriger Konvergenz). Mathematisch lässt sich der Einfluss der partiellen Kohärenz genähert durch Multiplikation des folgenden Faktors mit der Fourier-Transformierten der Wellenfunktion, die in der hinteren Brennebene vorliegt, darstellen [Spe88]:

$$D(\Theta) \approx e^{-\pi^2 \frac{\Theta_c^2}{\lambda^2 \ln 2} (C_s \Theta^3 + \Delta f \Theta)^2} \propto e^{(C_s \Theta^3 + \Delta f \Theta)^2} \quad (2.10)$$

- Δf : Defokus
 Θ_c : Konvergenzhalfwinkel
 Θ : Öffnungswinkel zur Brennebene ($\Theta = \frac{\sqrt{x^2+y^2}}{f}$)

Abbildung im TEM

In Abbildung 2.3 ist schematisch die Ausbreitung der Elektronenwelle vom Austritt aus der Probe bis zur Bildebene der Objektivlinse dargestellt. Die idealisierterweise vor der Probe ebene Elektronenwelle wechselwirkt mit der Probe und erfährt dabei eine Phasen- und Amplitudenmodulation. Danach propagiert die Welle über den einstellbaren Defokus Δf und die Gegenstandsweite g bis zur Objektivlinse. Die freie Ausbreitung einer Welle über eine Strecke Δz wird mathematisch näherungsweise beschrieben durch das Faltungsprodukt [Bro91] von ψ mit dem Fresnelpropagator $P_{\Delta z}$ [Spe88]

$$\psi_{\text{propagiert}} = (\psi \otimes P_{\Delta z})(x, y)$$

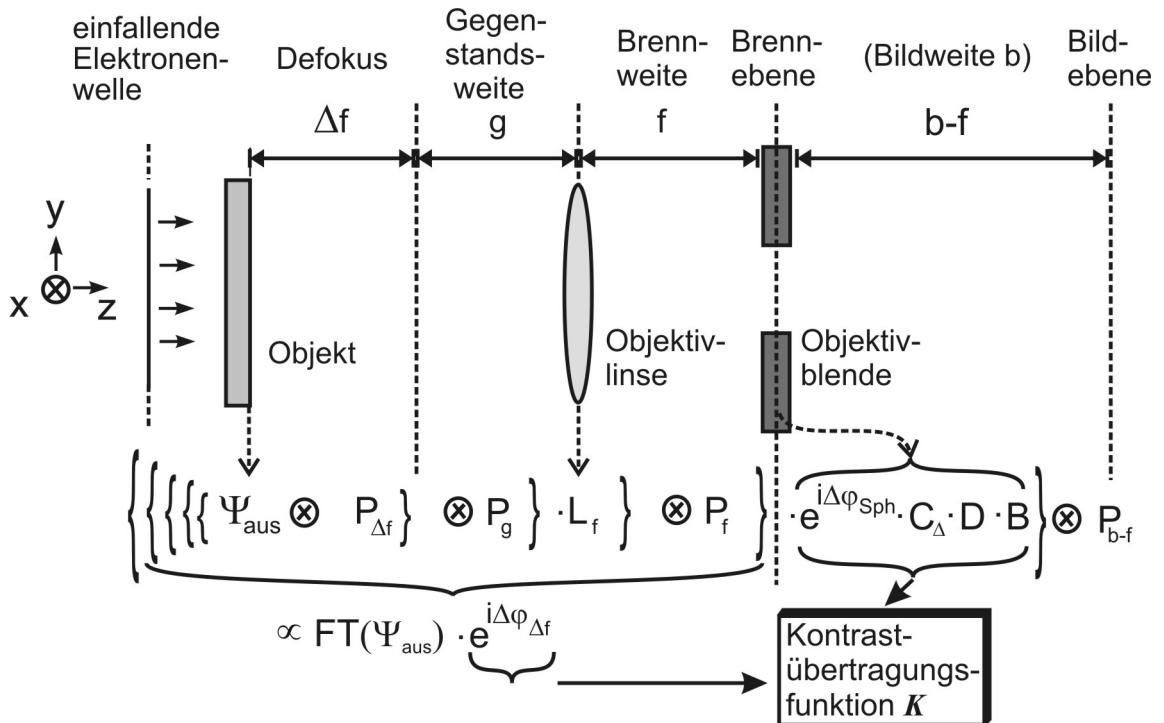


Abbildung 2.3: Veranschaulichung zur mathematischen Beschreibung der Propagation der Elektronenwelle im TEM, von der Wechselwirkung mit der Probe bis zur Bildebene der Objektivlinse, Abb. nach [Eng05].

Der Fresnel-Propagator kann in der Form

$$P_{\Delta z} = \frac{i}{\lambda \Delta z} e^{\frac{-i\pi}{\lambda \Delta z} (x^2 + y^2)}$$

dargestellt werden. Die darauffolgende Wechselwirkung der Elektronenwelle mit der Objektivlinse wird durch Multiplikation der einfallenden Welle mit einer Linsenfunktion L_f (f entspricht der Brennweite der Linse)

$$L_f = e^{\frac{i\pi}{f\lambda} (x^2 + y^2)}$$

berücksichtigt [Spe88]. Dabei ist in beiden Ausdrücken λ die relativistische Elektronenwellenlänge, die aus der de-Broglie Beziehung für Materiewellen folgt und für ein 300 kV-Gerät, wie dem Tecnai F30, 1,97 pm beträgt.

Die weitere Ausbreitung der Welle bis zur Brennebene der Objektivlinse (Brennweite f) entspricht wieder einer Faltung der Welle mit dem Fresnelpropagator P_f .

$$\psi_{Brennebene} = (((\psi_{aus} \otimes P_{\Delta f}) \otimes P_g) \cdot L_f) \otimes P_f \quad (2.11)$$

Somit lässt sich die Ausbreitung der Elektronenwelle vom Austritt aus der Probe bis zur hinteren Brennebene der Objektivlinse unter Berücksichtigung der weiter

oben eingeführten Linsenfehler folgendermaßen zusammenfassen:

$$\psi_{Bildebene} = (((((\psi_{aus} \otimes P_{\Delta f}) \otimes P_g) \cdot L_f) \otimes P_f) \cdot e^{i\Delta_{sph}} \cdot B \cdot C_{\Delta} \cdot D) \otimes P_{b-f} \quad (2.12)$$

Für eine Abbildung, die mit einer perfekten Linse ohne Blende im Fokus durchgeführt wird, ergibt sich die Wellenfunktion in der hinteren Brennebene als Fourier-Transformierte der Objektaustrittswelle:

$$\psi_{Brennebene} = (((\psi_{aus} \otimes P_g) \cdot L_f) \otimes P_f) \propto FT(\psi_{aus}) \quad (2.13)$$

Die nicht berücksichtigten Störfaktoren (Linsenfehler, Blende, Defokus, Strahlkonvergenz) werden zusammengefasst in der sogenannten Kontrastübertragungsfunktion K und in der hinteren Brennebene berücksichtigt:

$$\psi_{Brennebene} \propto FT(\psi_{aus}) \cdot K \quad (2.14)$$

Das Propagieren der Welle über die restliche Strecke $b-f$ entspricht mathematisch einer inversen Fourier-Transformation. Insgesamt kann man also schreiben:

$$\psi_{Bildebene} \propto FT^{-1}[FT(\psi_{aus}) \cdot K] \quad (2.15)$$

Die Kontrastübertragungsfunktion K beinhaltet somit alle Einflüsse des Elektronenmikroskops auf das Endbild. Sie hat folgende Form:

$$K = \underbrace{e^{\frac{i2\pi}{\lambda}(\frac{1}{2}\Delta f\Theta^2 + \frac{1}{4}C_s\Theta^4)}}_{=e^{i\Delta\phi_{\Delta f}} \cdot e^{i\Delta\phi_{sph}} = CTF(\Theta)} \cdot C_{\Delta}(\Theta) \cdot D(\Theta) \cdot B(\Theta) = CTF(\Theta)B(\Theta)D(\Theta)C_{\Delta}(\Theta) \quad (2.16)$$

- | | |
|----------------------|--|
| Θ | : Öffnungswinkel zur Brennebene ($\Theta = \frac{\sqrt{x^2+y^2}}{f}$) |
| C_s | : Sphärische Aberrationskonstante |
| Δf | : Defokus |
| $B(\Theta)$ | : Blendenfunktion ($B(\Theta) = 1$ innerhalb der Blendenöffnung, sonst 0) |
| $C_{\Delta}(\Theta)$ | : Einfluss der chromatischen Aberration, $\propto e^{-\frac{\pi^2}{2\lambda^2}\Delta^2\Theta^4}$ |
| $D(\Theta)$ | : Einfluss der Strahlkonvergenz, $\propto e^{(C_s\Theta^3 + \Delta f\Theta)^2}$ |
| $CTF(\Theta)$ | : Coherent Transfer Function |

Beschleunigungsspannung U_0	300 kV
Elektronenwellenlänge λ	1,97 pm
Sphärische Aberrationskonstante C_s	1,2 mm
Chromatische Wellenaberration Δ	1,4 nm
Strahlkonvergenz Θ_c	0,5-3 mrad

Tabelle 2.1: Abbildungsparameter des TEM FEI Tecnai F30

In Tabelle 2.1 sind die entsprechenden Parameter für das TEM FEI Tecnai F30 zusammengefasst.

Man kann die Kontrastübertragungsfunktion K also in 2 Faktoren zerlegen. Defokus und sphärische Aberration bewirken eine Phasenmodulation:

$$CTF(\Theta) = e^{i\frac{\pi}{\lambda}(\Delta f \Theta^2 + \frac{1}{2}C_s \Theta^4)} = e^{i\gamma(\Theta)} \quad (2.17)$$

Die restlichen Bestandteile von K verursachen eine Dämpfung hoher Ortsfrequenzen im Fourierraum:

$$B(\Theta)D(\Theta)C_\Delta(\Theta) = e^{-h(\Theta)} \quad (2.18)$$

Eine Zerlegung von K in Real- und Imaginärteil führt damit zu:

$$\begin{aligned} K = B(\Theta)D(\Theta)C_\Delta(\Theta) \cdot CTF(\Theta) &= e^{-h(\Theta)} \cdot e^{i\gamma} \\ &= e^{-h(\Theta)}(\cos \gamma(\Theta) + i \sin \gamma(\Theta)) \end{aligned} \quad (2.19)$$

Während der Kosinusanteil (Realteil von K) die Amplitudenmodulation beschreibt und damit für die Abbildung größerer Objektdetails (Dimension des Objektdetails d groß $\Rightarrow \Theta \rightarrow 0 \Rightarrow \cos \gamma(\Theta) \rightarrow 1$) mittels Streu- und Beugungskontrast verantwortlich ist, kann dieser Anteil im Grenzfall sehr dünner Proben vernachlässigt werden.

$$\text{Im}(K)(\Theta) = B(\Theta)D(\Theta)C_\Delta(\Theta) \underbrace{\sin(\pi \frac{\Delta f}{\lambda} \Theta^2 + \frac{\pi}{2\lambda} C_s \Theta^4)}_{\text{Im}(CTF)(\Theta)} \quad (2.20)$$

Somit ist es ausreichend, den Sinusanteil, der die Phasenmodulation beinhaltet, zu betrachten. Abbildung 2.4 a) - c) zeigt die jeweiligen Anteile aller Faktoren, bis auf die Blendenfunktion $B(\Theta)$. Bei dieser handelt es sich um eine Stufenfunktion, welche bei einem bestimmten, von der Größe der gewählten Blende abhängigen, Wert das Frequenzspektrum abschneidet. Den wichtigsten Anteil der Kontrastübertragungsfunktion K bildet der im Teil a) abgebildete Imaginärteil der CTF, da dieser direkt durch die Fokussierung am Mikroskop verändert werden kann. Es handelt sich dabei um eine oszillierende Funktion. Dargestellt ist sie hier für den Defokus-Wert von $\Delta f = -56,1 \text{ nm}$. In dieser optimalen Einstellung entspricht der Wert der Funktion in einem möglichst breiten Band von Ortsfrequenzen k zwischen ca. $1,4 \text{ nm}^{-1}$ und $5,1 \text{ nm}^{-1}$ nahezu dem Wert -1. Dies bedeutet, dass für entsprechende Objektdetails im Bereich von $0,19 \text{ nm}$ bis $0,71 \text{ nm}$ die zusätzliche Phasenverschiebung fast durchgehend $-\frac{\pi}{2}$ beträgt. Dadurch wird der größtmögliche Kontrast erzielt. Man kann durch Variation des Defokuswertes das Passband der CTF verschieben, um eine höhere Auflösung zu erzielen. Gleichzeitig nimmt aber auch die Breite des Bandes ab und der Kontrast moduliert schon innerhalb eines schmalen Ortsfrequenzintervalls. Die maximale Breite

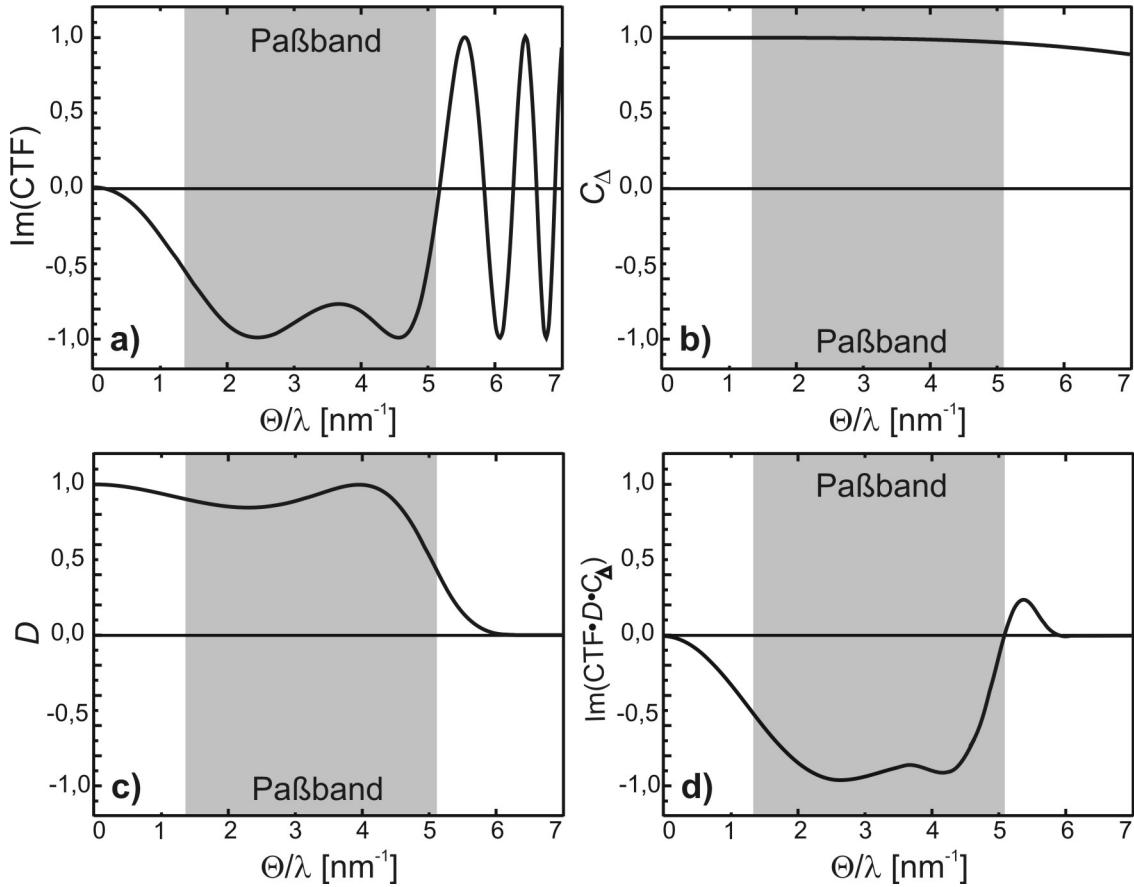


Abbildung 2.4: Veranschaulichung der Entstehung der Kontrastübertragungsfunktion K aus CTF und den Dämpfungsfaktoren für $\Delta f_{\text{Scherzer}}$, nach [Bin02]:

- Imaginärteil der ungedämpften CTF
- Beitrag der chromatischen Abberation
- Beitrag der Strahlkonvergenz (für $\theta_c = 1 \text{ mrad}$)
- Imaginär- und Realteil der gesamten Kontrastübertragungsfunktion K .

des Passbandes schöpft man im Scherzer-Defokus aus [Sch36]. Dieser ist gegeben durch:

$$\Delta f_{\text{Scherzer}} = -\sqrt{\frac{4}{3}\lambda C_s} \quad (2.21)$$

Für das Tecnai F30 ergibt sich der bereits erwähnte Wert von -56,1 nm. Im Teil b) ist die chromatische Aberration dargestellt. Diese führt nur zu einer geringen Dämpfung der Ortsfrequenzen und hat somit kaum Einfluss auf den Abbildungsprozess. Teil c) zeigt den Einfluss der Strahlkonvergenz. Durch ihr rasches Abklingen dämpft sie höhere Frequenzen sehr stark noch vor dem Abschneiden durch die Blendenfunktion. Dadurch wird die maximal erzielbare Auflösung eingeschränkt.

Im Teil d) der Abbildung 2.4 ist schließlich die gesamte Kontrastübertragungsfunktion K abgebildet. Die Oszillationen der CTF werden abgeschnitten, nur das Passband bleibt übrig. Durch die erste Nullstelle des Imaginärteils von K im Scherzer-Defokus ist die maximale Punktauflösung gegeben. Für das Tecnai F30 errechnet sich diese zu $0,19 \text{ nm}$ (für $k' = \frac{1}{d} = 5,3 \text{ nm}^{-1}$). Es sei noch darauf hingewiesen, dass ohne das Vorhandensein des Linsenfehlers der sphärischen Aberration (das heißt für eine perfekte Objektivlinse mit $C_s = 0$) die Phasenkontrastabbildung nicht möglich wäre. Nur durch die mangelnde Perfektion der Linse wird die HRTEM erst ermöglicht. Allerdings kann mit Hilfe der Gleichungen 2.16 und 2.21 leicht nachgerechnet werden, dass sich durch eine Verringerung der sphärischen Aberrationskonstante C_s auf einen sehr kleinen Wert ($\neq 0$) das Auflösungsvermögen eines TEMs erhöhen lässt, da dadurch der erste Nulldurchgang des Imaginärteils der CTF zu höheren Ortsfrequenzen verschoben wird. Die Reduzierung der sphärischen Aberration erfolgt mit sogenannten C_s -Korrektoren, die z.B. elektromagnetische Hexapole und Quadrupole zur Korrektur verwenden [Ros90].

2.3 XEDS

XEDS (X-Ray Energy Dispersive Spectrometry) ist eine analytische Möglichkeit, Proben im TEM auf ihre Elementzusammensetzung zu untersuchen. Dabei wird die bei der Wechselwirkung der Strahlelektronen mit dem Probenmaterial entstehende Röntgenstrahlung analysiert.

2.3.1 Entstehung und Detektion der Röntgenstrahlung

Entstehung

Im TEM treffen hochenergetische Elektronen auf das Probenmaterial. Wie in einer Röntgenröhre werden durch inelastische Streuung Röntgenquanten erzeugt, deren Energie durch die verwendete Hochspannung an der Kathode begrenzt wird. Analog zu einer gewöhnlichen Röntgenröhre gibt es auch im XEDS-Spektrum einer Probe (siehe als Beispiel das Spektrum einer Gallium-Probe in Abb. 2.5) zwei Hauptkomponenten: Bremsstrahlung und charakteristische Strahlung.

Bremsstrahlung entsteht, wenn die einfallenden Strahlelektronen durch das elektrische Feld der Atomkerne im Probenmaterial beschleunigt werden. Die Winkelverteilung der Bremsstrahlung ist stark vorwärts gerichtet und fällt zu höheren Energien E hin mit einer $1/E$ -Proportionalität ab. Der auch in Abb. 2.5 sichtbare Abfall des Spektrums bei geringen Energien wird durch Reabsorption der Röntgenquanten mit geringen Energien vor Erreichen des Detektors hervorgerufen.

Charakteristische Strahlung entsteht, wenn ein Elektron aus einer inneren Schale eines Atoms in der Probe durch ein Strahlelektron herausgeschlagen wird. Der freiwerdende Platz wird durch ein Elektron einer höheren Schale wieder besetzt und es wird ein Röntgenquant der Differenz der beiden beteiligten Energieniveaus emittiert (s. Abb. 2.6). Da die auftretenden Energieniveaus vom Element im Probenmaterial abhängen, ist auch die emittierte Strahlung elementspezifisch. Die Emission des charakteristischen Anteils des Röntgenspektrums erfolgt isotrop in alle Richtungen.

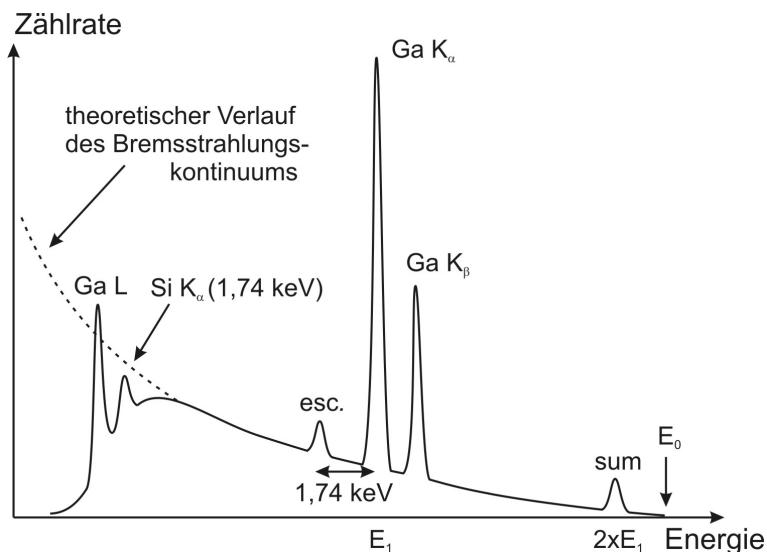


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung des Spektrums einer Gallium Probe: Neben der dominanten, charakteristischen K_{α} -Linie sind mit XEDS noch die Linien K_{β} und L nachzuweisen. Hinzu kommt der kontinuierliche Bremsstrahlungshintergrund und die kohärente Bremsstrahlung (C.B.). Schließlich sind noch die drei wichtigsten Detektorartefakte eingezeichnet: Der Fluoreszenz-Peak ($Si-K_{\alpha}$ bei $Si(Li)$ -Detektoren), ein Escape-Peak (esc.) 1,74 keV unterhalb des dominanten Peaks und ein Sum-Peak bei seiner doppelten Energie. Abbildung aus [Utz07].

Detektion

Um in einem TEM Röntgenstrahlung zu detektieren, verwendet man meistens Halbleiterdetektoren aus Silizium, die folgendermaßen aufgebaut sind (s. Abb 2.7): Das Herzstück des Detektors ist eine Silizium pin-Diode⁸, die negativ mit etwa 1 kV vorgespannt ist. Im intrinsischen Bereich werden von den einfallenden

⁸pin: p-dotiert - intrinsisch - n-dotiert

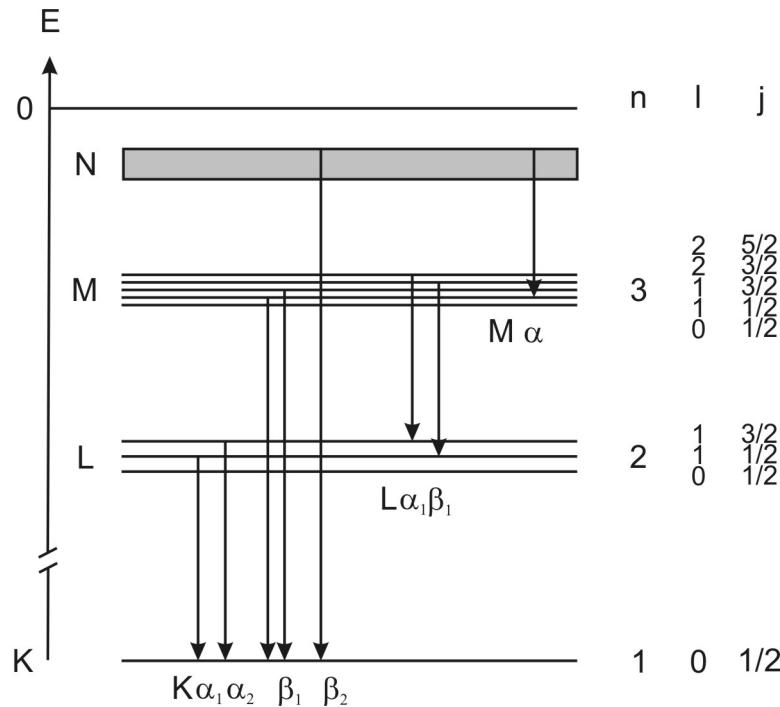


Abbildung 2.6: Bezeichnungen der hochenergetischsten Röntgenlinien eines Atoms mit den beteiligten Energie Niveaus und ihren Quantenzahlen. Im Falle des Galliums aus Abbildung 2.5 sind nur K_α , K_β und L nachweisbar, ihre einzelnen Komponenten K_{α_1} und K_{α_2} bzw K_{β_1} und K_{β_2} liegen zu dicht beieinander, um mit einem XEDS-Detektor aufgelöst zu werden. Nach [Rei93].

Röntgenquanten Elektron-Loch Paare erzeugt und von der angelegten Spannung abgesaugt. Die Anzahl der Elektron-Loch-Paare ist proportional zur Energie des ursprünglichen Röntgenquants. Den intrinsischen Bereich der Diode nennt man die aktive Zone des Detektors, im Gegensatz zu den inaktiven Zonen an den p- und n-dotierten Bereichen⁹. Durch einen nachgeschalteten Feldeffektransistor (FET) wird der Ladungspuls in einen Spannungspuls umgewandelt und das Signal vorverstärkt. Pin-Diode und FET werden durch flüssigen Stickstoff gekühlt. Dadurch wird einerseits gesichert, dass Diffusionsprozesse im Si-Kristall verhindert werden und er seine intrinsische Eigenschaft behält, andererseits wird das thermische Rauschen im FET abgesenkt und das Signal verbessert. Vor dem Detektor befindet sich ein Beryllium-Fenster (ca. 10 μm dick), durch das verhindert wird, dass sich Restgase am kalten Detektor anlagern (allerdings wird durch das Beryllium Fenster niederenergetische Röntgenstrahlung absorbiert, eine Detektion von K_α -Linien unterhalb von Natrium ist nicht möglich [Wil96]). Der im FET

⁹Die dort entstandenen Ladungsträger tragen aufgrund von starker Diffusion nicht zum Ladungspuls bei [Joy95].

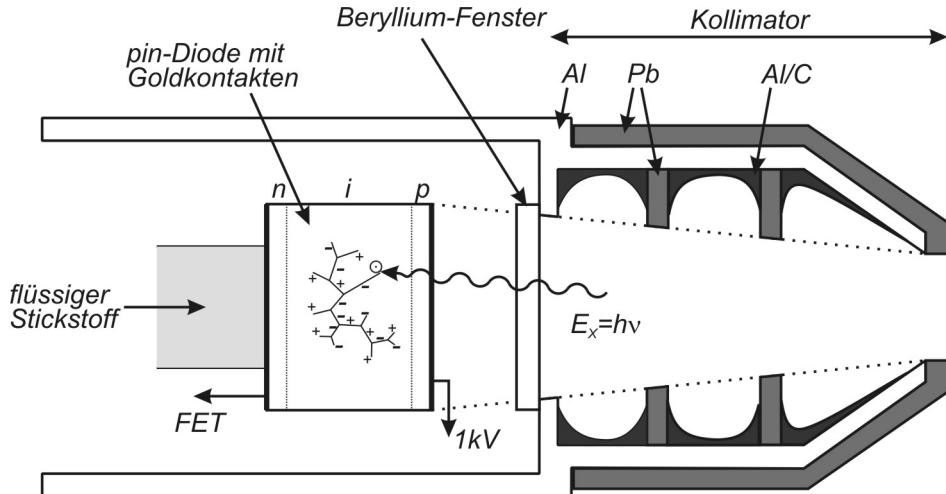


Abbildung 2.7: Schematischer Aufbau eines Si Detektors: Durch das Berylliumfenster gelangen Röntgenquanten zur Silizium pin-Diode, in der sie Elektron-Loch Paare erzeugen. Die Anzahl der Elektron Loch Paare ist proportional zur Energie des ursprünglichen Röntgenquants. Abbildung aus [Utz07].

erzeugte Spannungspuls wird per nachgeschalteter Elektronik weiter verstärkt und nach seinem Wert einem bestimmten Energiekanal im Röntgenhistogramm zugeordnet. Die jeweilige Häufigkeit bestimmter Spannungspulswerte ergibt dann nach einer gewissen Messzeit z.B. das in Abb. 2.5 dargestellte Röntgenspektrum. Zusätzlich zu Bremsstrahlung und charakteristischer Strahlung treten in aufgenommenen Spektren Artefakte auf (s. Abb. 2.5), die durch die Art der Pulsdetektion und -prozessierung bedingt sind und bei den Auswertungen der gemessenen Spektren berücksichtigt werden müssen:

- *Si Escape Peaks* treten im Spektrum 1,74 keV unterhalb der Position eines charakteristischen Peaks auf (1,74 keV entsprechen der K_{α} -Linie von Silizium). Sie entstehen, wenn ein einfallendes Röntgenquant ein Atom des Si Detektors ionisiert, das dabei entstehende sekundäre Röntgenquant dem intrinsischen Bereich des Detektors entkommt, ohne ein Elektron Loch Paar im Detektor zu erzeugen, und damit die detektierte Energie des Röntgenquants der charakteristischen Strahlung um 1,74 keV reduziert ist.
- Si K_{α} peaks bei $E=1,74$ keV treten bei allen Spektren, die an einem Si Detektor gemessen werden, auf, insbesondere bei längerer Messzeit. Sie entstehen durch Ionisation von Si in der inaktiven Zone des Detektors. Gelangen dabei erzeugte Si- K_{α} -Quanten in den intrinsischen Bereich des Detektors, werden sie dort registriert, können aber nicht mehr den Primärquanten zugeordnet werden, sondern werden als Si K_{α} -Linie im Spektrum registriert.

Man spricht dabei von einem *internen Floureszenz-Peak*.

- Gelangen zwei Röntgenquanten nahezu gleichzeitig in den Detektor, besteht die Möglichkeit, dass die Summen ihrer Energien registriert werden. Es entstehen *Sum-Peaks* im Spektrum bei den Summen der einzelnen Charakteristischen Peaks. Bei nur einer markanten Linie im Spektrum entsteht ein Peak bei doppelter Energie.

Auf weiterführende Details zum Messverfahren soll hier nicht genauer eingegangen werden, eine ausführliche Beschreibung findet sich z.B. in [Utz07] oder [Wil96].

2.3.2 Berechnung der Elementzusammensetzung

Zur Ermittlung der elementaren Zusammensetzung einer Probenstelle verwendet man nur die Charakteristischen Peaks des gemessenen Spektrums, der störende Bremsstrahlungshintergrund wird ausgefiltert. Zu Einzelheiten der Filterung siehe [Utz07] oder [Wil96]. Um das gefilterte Spektrum zu interpretieren, muss ein Abgleich mit Spektren von Standardpräparaten durchgeführt werden. Danach erhält man die Intensitäten der Charakteristischen Peaks I_X . Die Konzentrationen der einzelnen Elemente erhält man für ein System aus zwei Komponenten A und B über die Cliff-Lorimer-Gleichungen¹⁰ [Wil96]:

$$\frac{C_A}{C_B} = k_{AB} \frac{I_A}{I_B} \quad (2.22)$$

$$C_A + C_B = 100\% \quad (2.23)$$

Der k-Faktor in der ersten der Cliff-Lorimer-Gleichungen wird entweder mathematisch berechnet, aus Tabellen entnommen oder aus Proben mit bekannter Zusammensetzung bestimmt. Für die in Kapitel 6.2.4 beschriebenen XEDS-Analysen an InGaN-Quantentrögen wurde der k-Faktor durch Abgleich mit durch DALI-Messungen (siehe nachfolgender Abschnitt) ermittelter In-Konzentration berechnet.

2.4 DALI-Auswertungen

Das DALI¹¹-Auswerte-Programm ist von Prof. Rosenauer an der Universität Regensburg entwickelt worden und ermöglicht die Bestimmung der Konzentration x in ternären Verbindungen $A_xB_{1-x}C$ anhand von hochauflösenden TEM-Aufnahmen. Zur Analyse von InGaN Schichten in einer GaN Umgebung wurden

¹⁰Hat man mehr als zwei zu analysierende Komponenten, erhält man entsprechend zusätzliche Gleichungen.

¹¹digital analysis of lattice images

von Rosenauer theoretisch optimale Abbildungsbedingungen bestimmt, die den Einfluss von Probendicke und Fokussierung der Probe im TEM, und dadurch den Fehler in den Auswertungen minimieren.

2.4.1 Grundlagen der DALI Methode

Grundlage des DALI-Verfahrens ist der lineare Zusammenhang zwischen den Gitterabständen d im Kristall und der Konzentration x in ternären Verbindungen $A_xB_{1-x}C$, der durch das Vegardsche Gesetz beschrieben wird [Veg21]. Angewandt auf $In_xGa_{1-x}N$ ergibt sich:

$$d_{In_xGa_{1-x}N} = d_{GaN} + x \cdot (d_{InN} - d_{GaN}) \quad (2.24)$$

Mit diesem Zusammenhang ist eine Berechnung der In-Konzentration in InGaN-

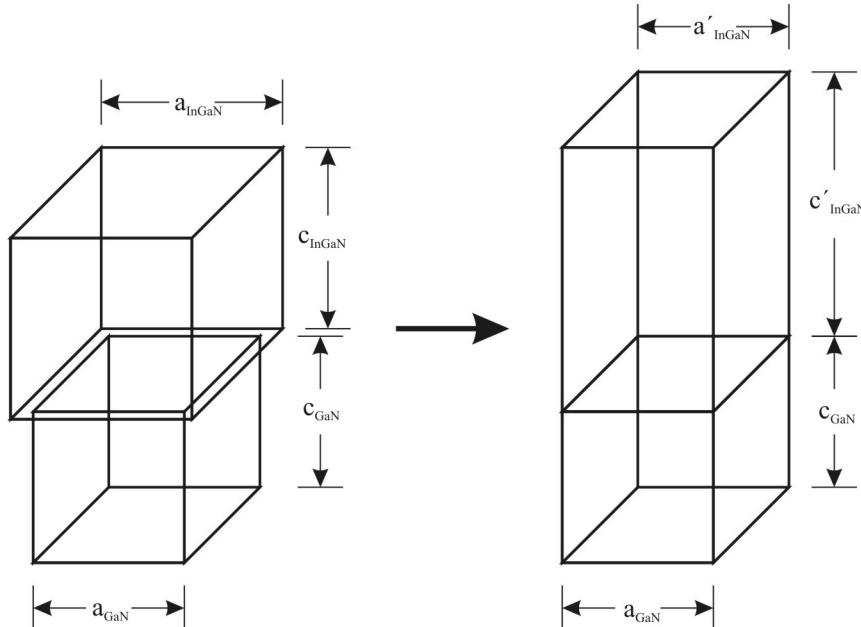


Abbildung 2.8: Schematische Veranschaulichung der tetragonalen Verzerrung: Der gewachsenen Schicht wird senkrecht zur Wachstumsrichtung die Gitterkonstante des darunterliegenden Materials aufgezwungen, in Wachstumsrichtung kommt es zu einer Vergrößerung der Gitterkonstanten. Abbildung aus [Bil03]

Schichten (z.B. Quantentrögen) durch die Bestimmung von lokalen Gitterabständen d , bei bekannten Gitterkonstanten von GaN und InN möglich. Allerdings muss dabei die tetragonale Verzerrung des Gitters berücksichtigt werden. Durch die unterschiedlichen Gitterkonstanten von GaN und InGaN kommt es beim

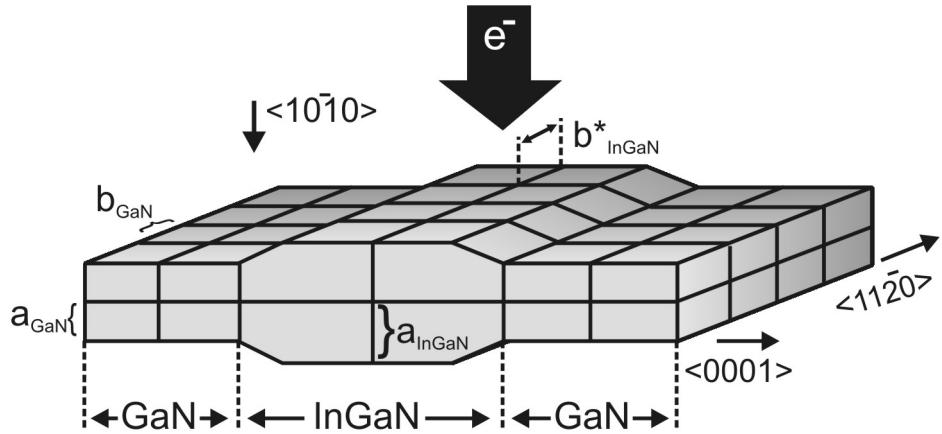


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung der Relaxation der tetragonalen Verzerrung in einer Richtung für dünne Proben: a_{InGaN} ist vollständig relaxiert, b^*_{InGaN} dagegen noch verspannt. Abbildung nach [Kai00].

Wachstum der Schichten zu biaxialen Verspannungen (schematische Darstellung, der besseren Übersichtlichkeit wegen für ein kubisches Gitter, siehe Abb. 2.8). Der größeren Elementarzelle von InGaN wird senkrecht zur Wachstumsrichtung die kleinere Gitterkonstante der zugrunde liegenden GaN Schicht aufgezwungen. Dies führt zu einer Verlängerung der Gitterkonstante in Wachstumsrichtung. Andererseits unterliegt prinzipiell auch umgekehrt die GaN Schicht einer Verspannung durch die größere Gitterkonstante von InGaN mit analogen Auswirkungen, die aber für dünne InGaN Schichten in GaN Umgebung vernachlässigt werden kann. Zusätzlich tritt in TEM Proben, die für höchstauflösende Phasenkontrastabbildung eine Dicke $\leq 40\text{ nm}$ haben müssen, eine Relaxation parallel zur Durchstrahlrichtung auf (siehe Abb. 2.9). Die c-Gitterkonstante ändert sich dadurch und nähert sich wieder umso näher dem unverspannten Wert an, je dünner die Probe ist. Mathematisch lässt sich die tetragonale Verzerrung mit Hilfe der linearen Elastizitätstheorie beschreiben, eine genaue Erklärung dazu findet sich in [Hah00] und [Sch00]. In der DALI Software ist die Abhängigkeit der tetragonalen Verzerrung von der Probendicke in Form eines einstellbaren Parameters implementiert. Über diesen Parameter kann der Relaxationsgrad eingegeben werden, der von der Probendicke abhängt. Da die Probendicke nicht genau bestimmbar ist (es kann angenommen werden, dass die Dicke der untersuchten Probenbereiche im Intervall zwischen 10 nm und 40 nm liegt), wird für die Indiumkonzentration häufig ein Konzentrationsintervall angegeben, in dem sich die wahre Konzentration befinden muss [Eng05].

2.4.2 Experimentelle Durchführung

In Abb. 2.10 sind die verschiedenen Schritte zusammengefasst und beschrieben, wie man von der HRTEM-Aufnahme zur zwei-dimensionalen Auswertung der In-Konzentration einer InGaN Schicht kommt. Die genauen Details dazu sind mehrfach ausführlich beschrieben ([Ros96], [Eng05], [Bil03]), und sollen hier nicht weiter im Detail wiedergegeben werden. Für eine aussagekräftige und verlässliche Aussage der DALI Auswertungen von entscheidender Bedeutung ist die Qualität der verwendeten HRTEM-Aufnahmen. Besonders ist darauf zu achten, dass sie die Gitterabstände an der analysierten Probenstelle exakt wiedergeben. Anhand von Simulationen wurden Abbildungsbedingungen bestimmt [Ger03] [Hah00], die den Einfluss von Probendicke und Defokus im TEM und dadurch entstehende Fehlmessungen minimieren: Für die Auswertungen nach der DALI-Methode werden die Gitterabstände nur in einer Richtung, der Wachstumsrichtung des Kristalls benötigt, d. h. man kann sich bei den TEM-Aufnahmen auf eine Abbildung der Gitterebenen in Wachstumsrichtung beschränken, die Gitterabstände senkrecht dazu sind nicht relevant. Dafür bietet sich der Zweistrahlfall an: Die Probe wird im TEM so verkippt, dass z.B. nur noch der (0000)- und der (0002)-Strahl im Beugungsbild stark angeregt sind. Diese beiden Beugungsreflexe werden mit der Objektivblende selektiert, so dass nur noch sie für die Abbildung verwendet werden. Dadurch erhält man die vollständige Information über die relevanten Gitterebenenabstände in (0002)-Richtung, man ist aber im Gegensatz zu einer herkömmlichen HRTEM-Abbildung mit mehreren ausgewählten Beugungsreflexen und Gitterinformation in und senkrecht zur Wachstumsrichtung weniger sensitiv zum eingestellten Defokus. Durch Simulation kann gezeigt werden [Ger03], dass die besten Abbildungsbedingungen im (0004)-Zweistrahlfall erreicht werden. Nur der (0000)- und (0002)-Strahl werden, bei stark angeregtem (0004)-Strahl (siehe Abb. 2.11), mit der Objektivblende selektiert und zur Abbildung verwendet¹².

2.5 Probenpräparation

Von entscheidender Bedeutung für gute Ergebnisse mittels TEM ist die Herstellung qualitativ hochwertiger Präparate. Im Folgenden wird gezeigt, welchen Kriterien die Proben für hochauflösende Transmissionselektronenmikroskopie genügen sollen und mit welchen Präparationsmethoden man versucht, diesen Kriterien gerecht zu werden.

¹²Um die Auswirkungen der spärlichen Aberration der Objektivlinse (vgl. Kapitel 2.2.2), die zu einer Verschmierung der Gitterbenen (Delokalisation) führt, zu umgehen, wird der (0002)-Strahl durch Verkippen des Elektronenstrahls auf die optische Achse verschoben, da hier die sphärische Aberration unabhängig vom Defokus-Wert = 0 ist.

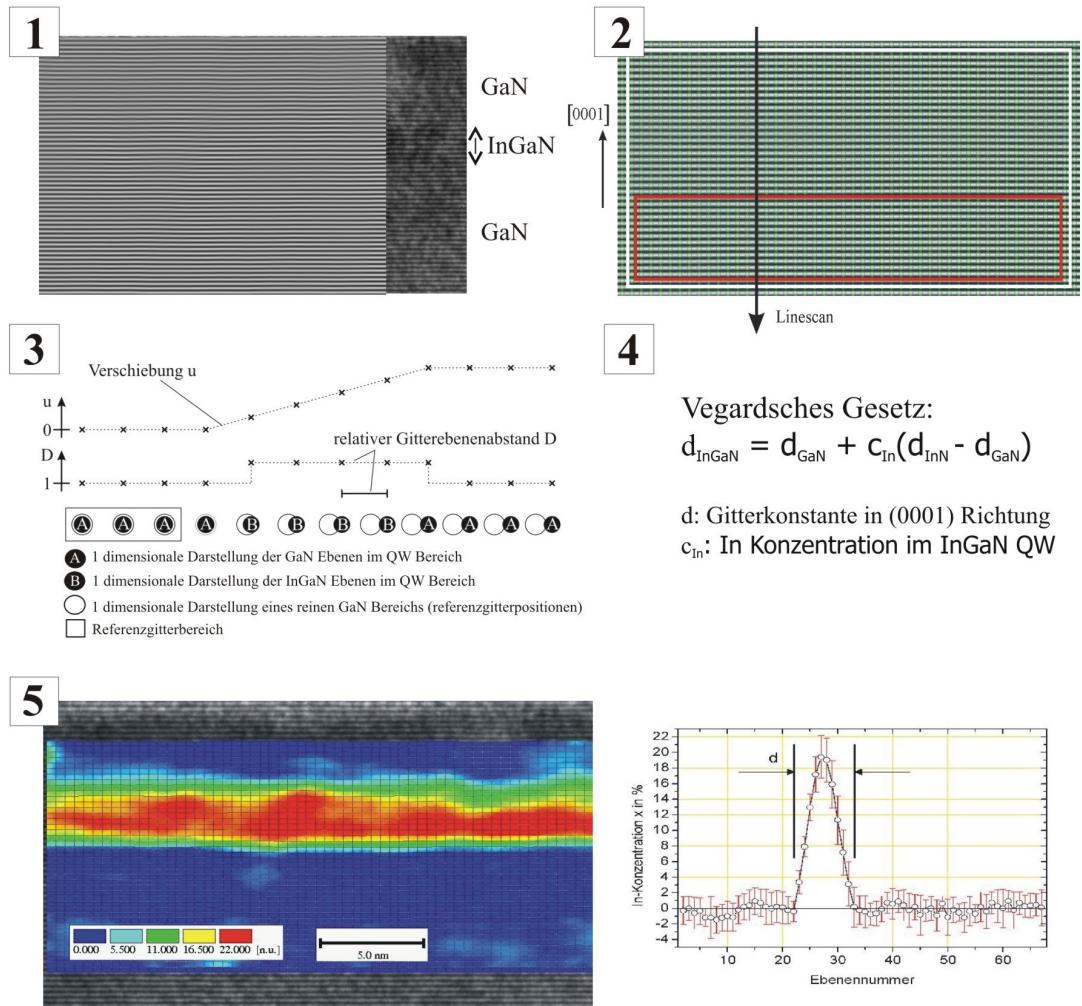


Abbildung 2.10: Bestimmung der In-/Al-Konzentration einer InGaN/AlGaN-Schicht:

- 1) HRTEM-Aufnahme vor (rechts) und nach (links) Filterung: Überlagerungen des Bildes der Gitterebenen durch Artefakte (amorphe Probenoberfläche, Verunreinigungen der Probe, CCD-Kamera) werden entfernt.
- 2) Mittels Linescans werden die Helligkeitsmaxima der Gitterebenenstreifen in einem frei einstellbaren Abstand bestimmt. Anschließend wird ein Referenzgitterbereich (reines GaN, rot gekennzeichnet) ausgewählt.
- 3) Nacheinander werden für die einzelnen Linescans die lokalen Gitterebenenabstände bestimmt und daraus der relative Gitterebenenabstand zum Referenzgitter berechnet.
- 4) Aus den relativen Gitterebenenabständen und dem Vegardschen Gesetz wird die In-/Al-Konzentration bestimmt.
- 5) Die einzelnen Linescans werden zu einem zweidimensionalen In-/Al-Konzentrationsprofil zusammengefügt. Über Mittelung der Linescans erhält man ein gemitteltes Konzentrationsprofil der InGaN/AlGaN Schicht in Wachstumsrichtung.

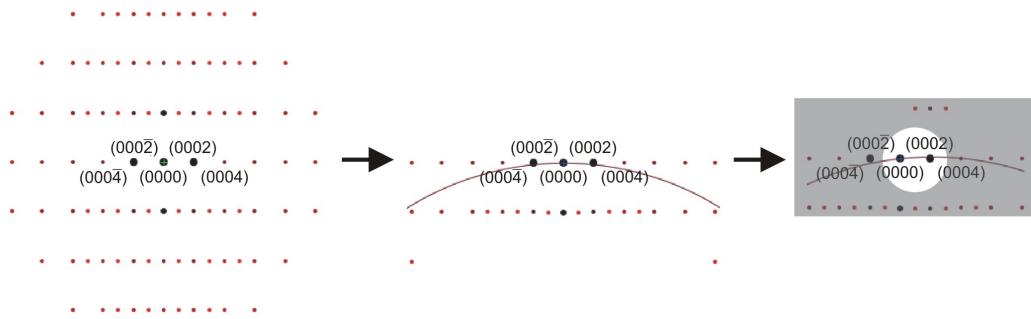


Abbildung 2.11: Darstellung der Verkipfung der Probe im TEM für DALI
Abbildungsbedingungen: Ausgehend vom zentrierten SA-Beugungsbild wird die Probe in die (0004)-Zweistrahlbedingung verkippt, d.h. neben dem Zentralstrahl ist der (0004)-Strahl im Beugungsbild angeregt. In der Abbildung sind angeregte Beugungsreflexe durch Schnittpunkte mit der Ewald-Kugel gekennzeichnet; je näher die Schnittpunkte am Zentrum der Beugungspunkte desto stärker die Anregung, maximal im gezeigten Fall für (0004). Durch die Objektivblende werden der (0000) und (0002) Beugungsreflex für die Abbildung ausgewählt (grau angedeutet).

Anforderungen an Präparate für TEM

- Die Proben sollen ausgedehnte elektronentransparente Bereiche möglichst homogener Dicke aufweisen. Für HRTEM bzw. Phasenkontrast sind Bereiche mit einer Dicke unterhalb 40 nm notwendig, insgesamt sind Proben bei einer Elektronen-Energie von $E_{\text{kin}}=300$ keV bis zu einer Dicke von etwa 1 μm elektronentransparent [Wil96].
- Durch die Präparation sollen keine Präparationsartefakte in den Proben entstehen. Besonders Amorphisierungen der Probenoberfläche bei der Ionendünnung sind zu vermeiden.
- Die Proben sollen elektrisch leitfähig sein, um einerseits Ablenkungen des Elektronenstrahls durch Aufladungen der Probe und andererseits aufladungsbedingte mechanische Verspannungen der Probe im TEM zu vermeiden.
- Die Proben müssen insgesamt genügend Stabilität für eine vernünftige Handhabung (Ein- und Ausbau in den Probenhalter, etc.) besitzen und den durch die Probenhalter im TEM und in den Ionenätzanlagen vorgegebenen Geometrien entsprechen.

Grundsätzlich wurden zwei unterschiedliche Arten von TEM Präparaten hergestellt und im Elektronenmikroskop untersucht: Querschnittspräparate und „Plan-View“-Präparate:

Querschnittspräparate werden so hergestellt, dass im TEM der Elektronenstrahl senkrecht zur Wachstumsrichtung der epitaxierten Schicht einfällt, man also eine Seitenansicht der Probe erhält. Dadurch gewinnt man z.B. Informationen über Aufbau und Dicke der epitaxierten Schichten, die Beschaffenheit der Grenzflächen, den Verlauf von Versetzungen innerhalb der Epitaxieschichten sowie, z.B. mittels DALI und XEDS, über die chemische Zusammensetzung einzelner Schichten.

Bei der „**Plan-View**“-Präparation wird ein Aufsichtspräparat hergestellt, d.h. der Elektronenstrahl fällt parallel zur Wachstumsrichtung ein. In dieser Arbeit wurden „Plan-View“-Präparate v.a. zur Bestimmung der Versetzungsdichte verwendet.

2.5.1 Querschnittspräparation

Für die Wurtzitstruktur gibt es zwei ausgezeichnete kristallographische Orientierungen (Zonenachsen, $[10\bar{1}0]$ und $[11\bar{2}0]$) senkrecht zur c-Achse, die relativ zueinander um 30° verkippt sind (s. Abschnitt 3.3). Da für unterschiedliche Untersuchungsmethoden im TEM beide Orientierungen verwendet werden, man aber die effektiv vom Elektronenstrahl durchstrahlte Präparatdicke gering halten, also auf zu starke Verkipfung des Probenhalters im TEM verzichten möchte, wird schon während der Querschnittspräparation darauf geachtet, dass beide Orientierungen in einem fertigen Präparat leicht zugänglich sind. Dies geschieht im ersten Präparationsschritt, in dem, unter Zuhilfenahme der bekannten kristallographischen Orientierungen der Wafer(-stücke) mit den zu analysierenden epitaxierten Schichten, mit einer Präzisionsdiamantdrahtsäge (Modell 3242, Fa. Well) zwei um 90° gegeneinander verdrehte Probenstücke ausgesägt werden. Die beiden Stücke (Abmessungen: $2 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$) werden zunächst in Aceton in einem Ultraschallbad gereinigt und anschließend schichtseitig mit Zweikomponentenkleber (M-Bond 610, Measurement Group Inc.) zusammengeklebt (s. Abb. 2.12 a)).

Nachdem der Kleber für 2,5 Stunden bei 120°C ausgehärtet wurde, wird das Probensandwich, wenn nötig, von beiden Seiten auf einer Diamantschleifscheibe gleichmäßig auf eine Restdicke von $500 \mu\text{m}$ abgeschliffen. Anschließend wird es in ein Korund Zylindersystem, bestehend aus Hohlzylinder und Vollzylinder mit Schlitz eingepasst, mit Epoxydharz G1 (Fa. Gatan) vergossen und bei 80°C eine Stunde ausgehärtet (s. Abb. 2.12 b)). Die Dimension des Zylindersystems ist den im Probenhalter zur Verfügung stehenden Abmessungen angepasst.

Aus dem Zylinder werden im Anschluss mit der Diamantdrahtsäge $200 \mu\text{m}$ dicke

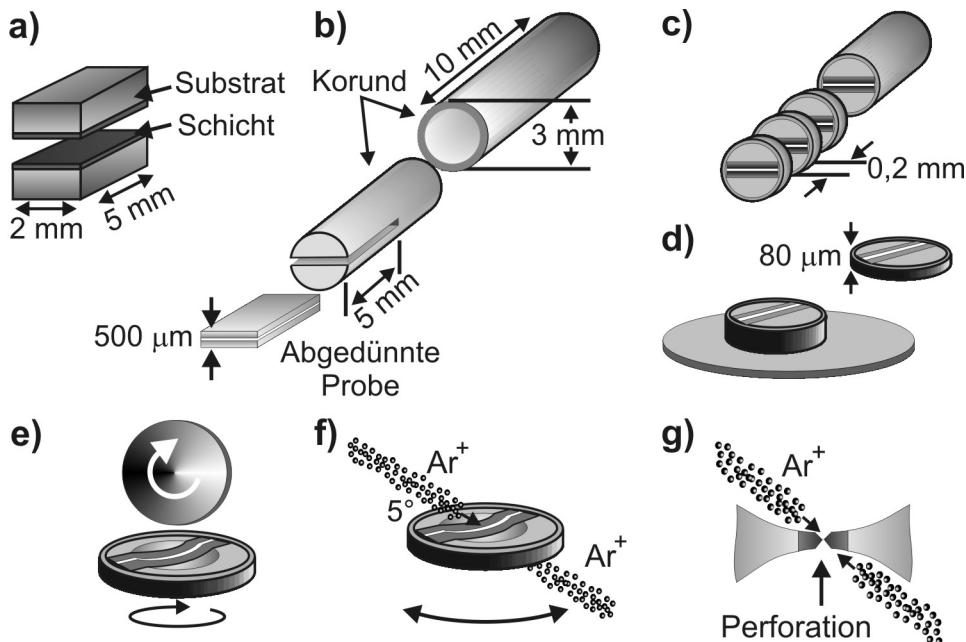


Abbildung 2.12: Darstellung der Schritte bei der Herstellung eines Querschnittspräparates, nach [Kai00]:

- zurechtgeschnittene Probenstücke werden schichtweise aufeinandergeklebt
- „Probensandwich“ wird in Röhrchen eingebettet
- Scheibchen mit $D=0,2\text{ mm}$ werden abgesägt
- Planparalleles Abdünnen auf etwa $80\text{ }\mu\text{m}$
- Muldenschleifen und Polieren beider Seiten (Restdicke im Zentrum:
etwa $20\text{ }\mu\text{m}$)
- weiteres Abdünnen durch Ar^+ -Ionenbeschuss
- Seitenansicht der Probe in der Ionenätzanlage: Ionenbeschuss bis Perforation in der Probenmitte auftritt

Scheibchen ausgesägt¹³, die wiederum im nächsten Schritt auf der Diamantschleifscheibe auf ca. 80 μm abgedünnt werden (s. Abb. 2.12 c) und d)). Als nächstes wird, durch beidseitiges Muldenschleifen (Dimple Grinder, Fa. Gatan), die Dicke der Probe im Zentrum auf ca. 20 μm reduziert und anschließend zur Verminderung von beim Ätzen störender Rauigkeiten auf beiden Seiten ca. eine halbe Stunde poliert (s. Abb. 2.12 e)).

Als letzter Schritt folgt die Ionendünnung der Probe. Sie wird dabei von beiden Seiten im dünnsten Bereich der Mulde mit Ar⁺ Ionen unter einem sehr flachen

¹³Ein Aussägen dünnerer Scheibchen, um den nächsten Präparationsschritt zu beschleunigen, ist aufgrund der groben Körnung des Diamantdrahts nicht möglich ohne ein Zerstören der Probe zu riskieren.

Winkel (ca. 5°) bis zur Perforation abgesputtert (s. Abb. 2.12 f) und g)). Während des Ätzvorgangs ist die Probe auf einem rotierenden Halter montiert, der eine in jede Richtung gleichmäßige Abtragung gewährleistet. Die Beschleunigungsspannung der Ionen wird im Verlauf des Ätzvorgangs sukzessive von 5 kV auf ca. 2 kV reduziert. Dadurch wird zwar die Ätzrate reduziert, jedoch wird durch die niedrige Beschleunigungsspannung am Ende des Ätzvorgangs ein feines Polieren der Oberfläche der Probe erreicht und es werden etwaige, bei höheren Beschleunigungsspannungen entstandene, Amorphisierungen der Probenoberfläche abgetragen ohne eine zusätzliche Amorphisierung zu erzeugen.

An den Rändern der Perforation des Präparats ist die Probe nach Beendigung der Ionendünnung elektronentransparent. Um Aufladungen der Probe durch den Elektronenstrahl, die insbesondere bei höchstauflösender Transmissionselektronenmikroskopie stören würden, zu verhindern, wird die Probe zum Abschluss mit einer feinen Kohlenstoffschicht besputtert, die die nötige elektrische Leitfähigkeit des Präparats gewährleistet, allerdings auch die Abbildung verschlechtert.

Zusätzlich zu dieser konventionellen Präparationsmethode für Querschnittspräparate wurde eine zweite, etwas vereinfachte, Methode verwendet. Dabei ändern sich im Speziellen die Schritte b) bis d) im vorher beschriebenen Präparationsablauf. Statt das gesamte Probensandwich in das Zylindersystem einzukleben, schneidet man mit der Diamantdrahtsäge ein ca. 0,5 mm breites Stück vom Probensandwich ab und klebt dieses mit Zweikomponentenkleber in ein in der Mitte geschlitztes Titanplättchen. Nach Aushärten des Klebers, wie oben beschrieben, wird die Präparation analog zur konventionellen Methode fortgesetzt. Im Gegensatz zu den im oben beschriebenen Verfahren verwendeten Korund besitzt Titan eine hohe elektrische Leitfähigkeit, d.h. man erhält auch ohne zusätzliches Besputtern der Probe mit Kohlenstoff wenig störende Aufladungen der Probe. Die Abbildung ist bei diesem Verfahren durch die fehlende Kohlenstoffschicht verbessert.

2.5.2 „Plan-View“-Präparation

Im Gegensatz zur Querschnittspräparation sollen mit Hilfe der Plan-View (PV) Präparationstechnik Proben hergestellt werden, die im TEM in Aufsicht, mit dem einfallenden Elektronenstrahl parallel zur Wachstumsrichtung, untersucht werden können. Im ersten Schritt der PV Präparation wird aus einem Wafer ein quadratisches Probenstück mit ca. 2 mm Kantenlänge mit der Diamantdrahtsäge ausgeschnitten. Dieses Probenstück wird anschließend auf der Diamantschleifscheibe von der Substratseite auf ca. 80 µm abgedünnt (s. Abb. 2.13 a)), danach mit dem Muldenschleifgerät im Zentrum bis zu einer Restdicke von ca. 30 µm weiter abgeschliffen und anschließend poliert (s. Abb. 2.13 b)). Zur Stabilisierung wird die soweit behandelte Probe mit M-Bond 610 auf einen Stahlring aufgeklebt und

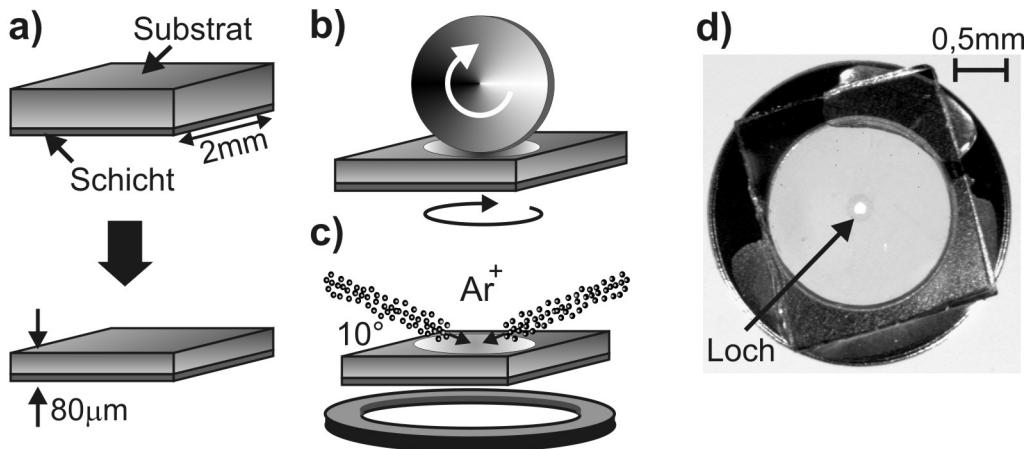


Abbildung 2.13: Arbeitsschritte bei der Fertigung eines Plan-View-Präparates:

- Aussägen eines $2\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ großen Probenstücks;
Planparalleles Abdünnen von der Substratseite auf etwa $80\text{ }\mu\text{m}$
- Muldenschleifen bis zu einer Restdicke im Zentrum von ca. $30\text{ }\mu\text{m}$
- Stabilisierung der Probe durch Aufkleben auf einen Stahlring, Ätzen durch Ar^+ -Ionen Beschuss bis zur Perforation
- fertige PV-Probe

der Kleber für wenige Minuten auf einer Heizplatte bei 120°C ausgehärtet. Als letzter Schritt erfolgt auch hier die Ionendünnung wie bei der Querschnittspräparation beschrieben, wobei beachtet werden muss, dass der Ionenbeschuss nur von der Substratseite her stattfindet (s. Abb. 2.13 c)). Wenn nötig kann die erhaltene Probe zur Erhöhung der Leitfähigkeit, wie oben beschrieben, mit Kohlenstoff besputtert werden.

KAPITEL 3

Materialsystem

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Halbleiterheterostrukturen für optoelektronische Anwendungen untersucht, die auf Basis von Gruppe-III-Nitriden hergestellt wurden. In diesem Kapitel werden die wichtigsten physikalischen Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride, der prinzipielle Aufbau der Schichtsysteme der Halbleiterheterostrukturen für LEDs und LDs sowie das Wachstum der Halbleiterheterostrukturen auf verschiedenen Substraten erläutert.

3.1 Gruppe-III-Nitride - Eigenschaften

Unter Gruppe-III-Nitriden versteht man binäre Halbleiter, wie z.B. Galliumnitrid (GaN), Aluminiumnitrid (AlN) und Indiumnitrid (InN), sowie deren ternäre Verbindungen $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ und $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ und die quarternäre Verbindung AlInGaN. Insbesondere die ternären Verbindungen sind für die Herstellung optoelektronischer Bauelemente geeignet, da sich ihre Bandlücken über die In- bzw. Al-Konzentrationen so einstellen lassen, dass der gesamte Spektralbereich vom infraroten über den sichtbaren bis zum ultravioletten abgedeckt ist (s. Abb. 3.1). Gruppe-III-Nitride werden über ionisch-kovalente Bindungen der Metallatome (Ga, Al, In) mit Stickstoff (N) gebildet. Dabei wird jedes Atom über jeweils vier sp^3 -hybridisierte Atomorbitale gebunden, was eine tetraedrische Atomanordnung zur Folge hat. Auf den für Heteroepitaxie üblicherweise verwendeten Substratmaterialien SiC und Al_2O_3 kristallisieren Gruppe-III-Nitride in hexagonaler Wurtzitstruktur, der sog. α -Phase. Diese kann durch zwei hexagonal dicht gepackte

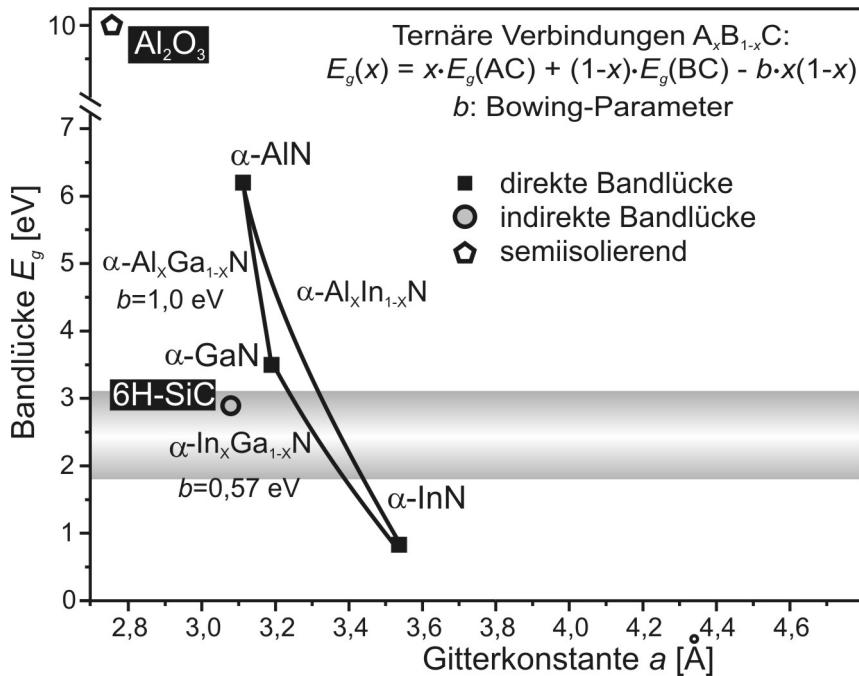


Abbildung 3.1: Bandlücken E_g der für optoelektronische Anwendungen relevanten hexagonalen α -Phase von GaN, AlN, InN als Funktion der zugehörigen Gitterkonstante, sowie näherungsweise der ternären Verbindungen $A_xB_{1-x}C$. Der nichtlineare Zusammenhang zwischen E_g und x wird mit Hilfe des Bowing-Parameters b beschrieben. Zusätzlich sind die wichtigsten Fremdsubstrate (schwarz hinterlegt) aufgeführt. (Abbildung nach [Kai00])

hcp-Gitter¹ beschrieben werden, die um $\frac{5}{8} c_{\text{hex}}$ entlang der $\langle 0001 \rangle$ -Richtung gegeneinander verschoben sind (s. Abb. 3.2a)). Wählt man eine kubische Substratoberfläche, können die Gruppe-III-Nitride auch in Zinkblendestruktur abgeschieden werden. Diese setzt sich aus einem kubisch flächenzentrierten (fcc) Kristallgitter und einer zweiatomigen Basis mit den Koordinaten (000) und $(\frac{1}{4}\frac{1}{4}\frac{1}{4})a_0$ zusammen (s. Abb. 3.2b)).

Wurtzitstruktur und Zinkblendestruktur unterscheiden sich kristallographisch nur in der Stapelfolge der dicht gepackten Ebenen (Zinkblende: aAbBcC aAbBcC ..., Wurtzit: aAbB aAbB ..., wobei aA, bB und cC jeweils die zweiatomige Basis bestehend aus einem Metallatom und einem Stickstoffatom darstellen).

Für anwendungsorientierte Halbleiter-Bauelemente ist die hexagonale α -Phase aufgrund ihrer vergleichsweise höheren thermischen Stabilität und der besseren erreichbaren Schichtqualität von größerer Bedeutung als die kubische β -Phase. Da allen in dieser Arbeit untersuchten Proben die Wurtzitstruktur zugrunde lag,

¹hexagonal close packed

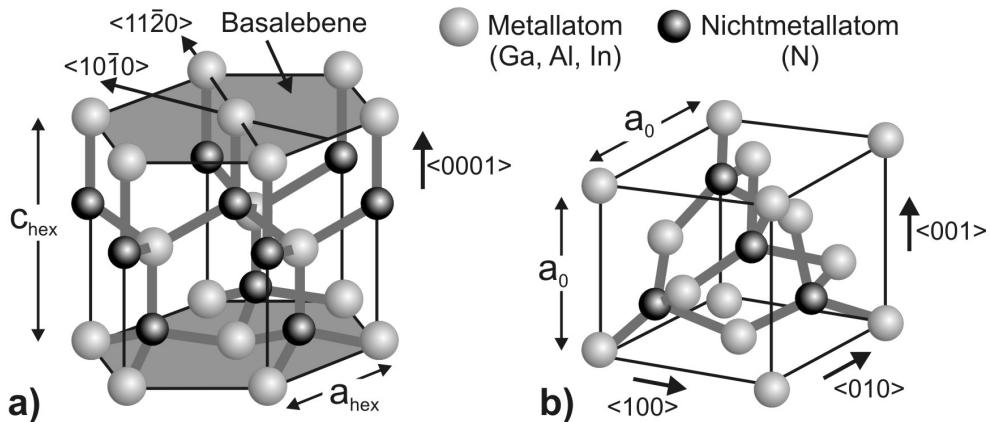


Abbildung 3.2: Darstellung der beiden Wachstumsmodi, (a) hexagonale Wurtzitstruktur (α -Phase) und (b) kubische Zinkblendestruktur (β -Phase), mit Definition der jeweiligen Kristallrichtungen und Gitterkonstanten (Abbildung aus [Kai00]).

	Gitterkonstante a_{hex} [nm]	Gitterkonstante c_{hex} [nm]	therm. Ausdehnungskoeffizient $\alpha_a [10^{-6} K^{-1}]$	therm. Ausdehnungskoeffizient $\alpha_c [10^{-6} K^{-1}]$	therm. Leitfähigkeit $\kappa [W cm^{-1} K^{-1}]$
AlN	0,3112	0,4982	4,2	5,3	3,2
GaN	0,3189	0,5185	5,59	3,17	1,7
InN	0,3545	0,5703	3,8	2,7	0,8

Tabelle 3.1: Zusammenfassung der Gitterkonstanten ($T = 20^\circ C$), der thermischen Ausdehnungskoeffizienten ($T = 20^\circ C$) und der Wärmeleitfähigkeit der Gruppe-III-Nitride in der Wurtzitstruktur [Vur03], [Wan01], [Har02], [Sla87], [Sla73].

bezieht sich die weitere Behandlung nur noch auf diese Struktur. Wie weiter oben beschrieben, decken die ternären Verbindungen für optische Anwendungen den Spektralbereich von ultraviolet (200 nm, AlN) bis infrarot (1700 nm, InN) ab. Bei Raumtemperatur entspricht dies Bandlücken von $E_{g,AlN} = 6,2$ eV bzw. $E_{g,InN} = 0,7 \dots 0,8$ eV ([Dav02], [Wu02], [Nan03]). Für reines GaN beträgt die Bandlücke $E_{g,GaN} = 3,44$ eV [Mon74]. Der Zusammenhang zwischen E_g und der Konzentration x einer ternären Verbindung $A_xB_{1-x}C$ wird durch folgende empirische Näherungsformel beschrieben:

$$E_g(x) = x \cdot E_g(AC) + (1 - x) \cdot E_g(BC) - b \cdot x(1 - x) \quad (3.1)$$

Dabei ist $E_g(AC)$ die Bandlücke der binären Verbindung AC, $E_g(BC)$ die Bandlücke der binären Verbindung BC, x bzw. $(1-x)$ die jeweilige Konzentration,

	$E_g(0K)$ [eV]	$E_g(300K)$ [eV]	α_v [$meVK^{-1}$]	β_v [K]
AlN	6,29	6,2	1,799	1462
GaN	3,51	3,44	0,909	830
InN	0,7 ... 0,8		0,245	624

Tabelle 3.2: Bandlückenenergien der Gruppe-III-Nitride in Wurtzitstruktur bei 0 K und Raumtemperatur (300 K) unter Angabe der zur Berechnung von $E_g(0K)$ verwendeten Varshni-Parameter [Vur03], [Mon74], [Dav02], [Wu02], [Nan03].

sowie b der sogenannte Bowing-Parameter. Der Zusammenhang zwischen E_g und x ist also nichtlinear und hängt vom Bowing-Parameter b ab. Für $In_xGa_{1-x}N$ findet man für b in der Literatur unterschiedliche Werte im Bereich von 1,4 eV bis 3,8 eV ([Dav02], [Bec03], [Xia04]).

Neben der Konzentration x hängt die Bandlücke E_g auch über folgenden Zusammenhang von der Temperatur T ab [Var67]:

$$E_g(T) = E_g(T = 0K) - \frac{\alpha_v \cdot T^2}{\beta_v + T} \quad (3.2)$$

Dabei sind α_v und β_v die sogenannten Vishini-Parameter.

Tabelle 3.1 fasst die wichtigsten Bandparameter der Wurtzitstruktur der Gruppe-III-Nitride zusammen. Die tetraedische Anordnung der Atome in Gruppe-III-Nitriden führt wegen des geringen Stickstoff-Atomradius von 0,7 Å [Kit96] und der damit verbundenen kurzen Bindungslänge zu hohen ionisch-kovalenten Bindungsenergien. Da Stickstoff stark elektronegativ ist, sind die Ladungsschwerpunkte der Bindungen zu den Stickstoffatomen verschoben. Die Bindungswinkel zwischen Metallatomen und Stickstoffatomen weichen vom idealen Tetraederwinkel ab. Deshalb besitzen die Kristalle von Gruppe-III-Nitriden keine Inversionssymmetrie bezüglich der c-Achse. Aus dem Fehlen des Inversionszentrums resultiert eine spontane Polarisierung. Überlagert wird diese spontane Polarisierung von zusätzlichen piezoelektrischen Feldern, die durch Verspannungen in Heterostrukturen durch die unterschiedlichen Gitterkonstanten von AlN, GaN und InN entstehen [Neu08] [Her08/1]. Genaueres zu diesem Thema siehe Kapitel 6.1.

3.2 Kristallprojektionen und -orientierungen im TEM

Bei TEM-Untersuchungen an querpräparierten Gruppe-III-Nitriden (α -Phase) existieren aufgrund der hexagonalen Symmetrie der {0001}-Ebene zwei ausgezeichnete Kristallprojektionen mit einer Strahlrichtung senkrecht zu {11̄20} bzw.

	$d_{\{0001\}}$	$d_{\{11\bar{2}0\}}$	$d_{\{10\bar{1}0\}}$
AlN	0,249 nm	0,156 nm	0,270 nm
GaN	0,259 nm	0,160 nm	0,276 nm
InN	0,285 nm	0,177 nm	0,307 nm

Tabelle 3.3: Gitterabstände der Gruppe-III-Nitride in den beiden kristallographisch ausgezeichneten Orientierungen, nach [Kai00].

zu $\{10\bar{1}0\}$ (s. Abb. 3.2), die durch Verkippen der Probe um 30° ineinander übergeführt werden können. Bei beiden Projektionen ergibt sich ein identischer Git-

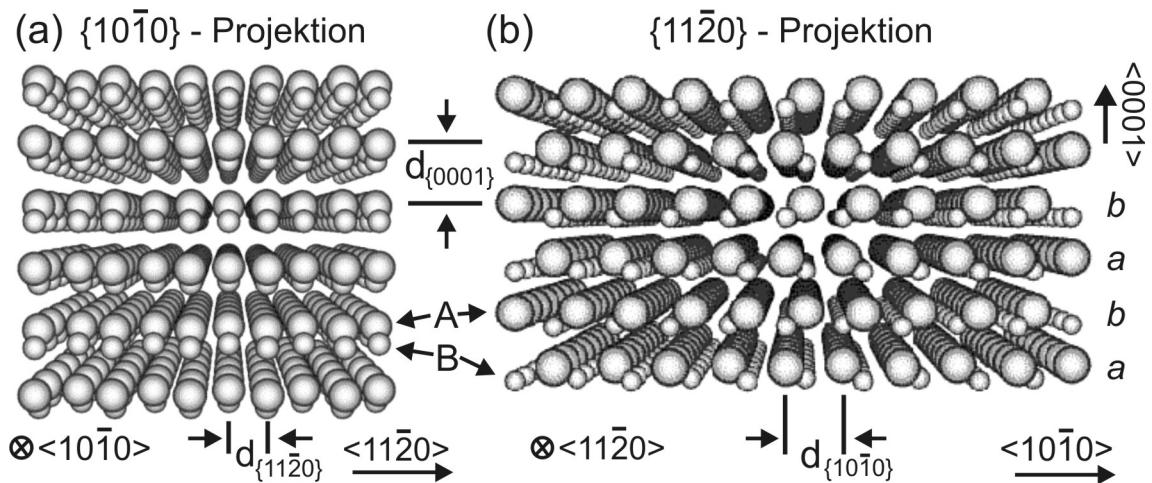


Abbildung 3.3: Position der Atome (Atomsäulen), Basisatome A und B, im Wurtzitkristall in den beiden ausgewählten Orientierungen
a) Elektronenstrahlrichtung senkrecht zu $\{10\bar{1}0\}$
b) Elektronenstrahlrichtung senkrecht zu $\{11\bar{2}0\}$

terebenenabstand $d_{\{0001\}}$, wohingegen sich die Abstände $d_{\{11\bar{2}0\}}$ und $d_{\{10\bar{1}0\}}$ in der Basalebene deutlich unterscheiden (s. Tabelle 3.3 und Abb. 3.3).

Punktaufgelöste Gitter-Abbildung ist nur in der $\{11\bar{2}0\}$ -Projektion zu erwarten, da hier sowohl $d_{\{0001\}}$ als auch $d_{\{11\bar{2}0\}}$ größer als die Punktauflösung des EMs (0,19 nm) sind. Allerdings können nur die Basisatompaare punktaufgelöst abgebildet werden, da der Abstand der Basisatome $d_{\text{Ga-N, Al-N, In-N}} \leq 0,17 \text{ nm}$ kleiner als die höchstmögliche Punktauflösung des Mikroskops ist. Folglich entspricht ein Intensitätsmaximum im HRTEM-Bild der Gitterposition eines Basisatompaars und nicht der Position eines einzelnen Basisatoms.

Für Weak-Beam Dark Field (WBDF)-Aufnahmen (s. Kapitel 5) wurde die $\{10\bar{1}0\}$ -Orientierung verwendet, da nur in dieser Orientierung die Abstände der Beugungsreflexe im Beugungsbild ausreichend groß sind, um durch Positionierung

einer Blende einen einzelnen Reflex zu selektieren.

3.3 Wachstum von Gruppe-III-Nitriden

Halbleiterstrukturen auf Basis der Gruppe-III -Nitride werden bis zum jetzigen Zeitpunkt hauptsächlich auf Fremdsubstraten gewachsen. Einkristalline GaN-Substrate sind zwar seit einiger Zeit verfügbar, die Preise dafür liegen aber noch immer weit über denen für die traditionell verwendeten Fremdsubstrate wie SiC und Al₂O₃. Dies liegt daran, dass GaN-Volumenkristalle im Gegensatz zu anderen Halbleitern, wie z.B. Silizium, nicht großvolumig nach traditionellen Methoden, wie die Czochralski und Bridgeman Techniken, hergestellt werden können [Ste04]. Mittlerweile gibt es andere, allerdings ungleich aufwendigere, Methoden einkristalline GaN-Substrate herzustellen, wie z.B. durch HVPE-Wachstum. Die komplexen Herstellungsprozesse beschränken jedoch das Angebot an GaN-Substraten und führen zu hohen Preisen, was einen weiter verbreiteten industriellen Einsatz bisher verhindert². Zusätzlich sind die Vorteile von GaN-Substraten (niedrige Versetzungsichte, gleiche thermische Ausdehnungskoeffizienten,...) für viele Bauteiltypen (z.B. LEDs mittlerer Leistung) schlicht nicht von entscheidender Bedeutung, da man auch bei Wachstum auf Fremdsubstraten ausreichend gute Resultate zu einem niedrigeren Preis erzielt. Bei der Auswahl der verwendeten Fremdsubstrate ist auf folgende Punkte zu achten:

- Die Materialien sollen eine geeignete Gitterstruktur mit einer zu GaN vergleichbaren Gitterkonstante aufweisen.
- Die thermischen Eigenschaften (Ausdehnungskoeffizienten, Schmelztemperatur,...) von GaN und den verwendeten Substratmaterialien sollten ähnlich sein.
- Die Fremdsubstrate sollten in hoher Anzahl und zu möglichst geringem Preis verfügbar sein.
- Die Spaltflächen sollten denen von GaN entsprechen.

Als Maß für die geeignete Gitterstruktur wird oft der Wert der Gitterfehlkompensation f zwischen Substrat und Epitaxieschicht angegeben:

$$f := \frac{a_s - a_l}{a_l} \quad (3.3)$$

Dabei entspricht a_s der Volumengitterkonstante des Substrats, a_l der der Epitaxieschicht.

²Genaueres zu GaN-Substraten und den Herstellungsmethoden findet sich in Kapitel 5.1.2.

Substrat		Al_2O_3	6H-SiC
(projizierte) Gitterkonstante bei 20° C [nm]	a_{hex} c_{hex}	0,2747 *) 1,2991	0,3081 1,5117
Gitterfehlanpassung f bei 20° C	AlN GaN InN	-11,8 -13,9 -22,5	-1,0 -3,4 -13,1
thermischer Ausdehnungskoeffizient bei 20° C [10^{-6} K^{-1}]	α_a α_c	7,3 8,5	4,46 4,16
relativer Unterschied im thermischen Ausdehnungskoeffizienten α_a [%]	AlN GaN InN	73,8 30,6 92,1	6,2 -20,2 17,4

Tabelle 3.4: Wichtige Kenngrößen der für die Heteroepitaxie verwendeten Substratmaterialien [Amb98].

*) Der gekennzeichnete Wert gibt nicht die Gitterkonstante von Al_2O_3 sondern die des kleineren Sauerstoffuntergitters an, die für die Epitaxie von GaN relevant ist.

Ist $f < 0$, so übt das Substrat einen biaxialen Druck auf die Schicht aus und die Schicht ist kompressiv verspannt. Für $f > 0$ wirkt ein biaxialer Zug auf die Schicht (tensile Verspannung), durch den ein Reissen der Epitaxieschicht verursacht werden kann. Analog zur Gitterfehlanpassung kann der relative Unterschied der thermischen Ausdehnungskoeffizienten α definiert und als $(\alpha_s - \alpha_l)/\alpha_s$ angegeben werden. Als geeignete Materialien haben sich für das Abscheiden der stabilen, hexagonalen α -Phase vor allem Saphir (Al_2O_3) und Siliziumkarbid (SiC) etabliert. In Tabelle 3.3 sind einige Materialparameter von Saphir und Siliziumkarbid zusammengestellt, im Folgenden werden die beiden Materialien genauer vorgestellt.

Saphir (Al_2O_3)

Al_2O_3 besitzt eine rhomboedrische Kristallstruktur, kann aber auch durch eine hexagonale Einheitszelle beschrieben werden, die größer als die rhomboedrische Zelle ist (s. Abb. 3.4). Die hexagonale Einheitszelle wird begrenzt durch die äußeren Sauerstoffatome, durch deren Abstand zum mittleren O-Atom die nominelle Gitterkonstante $a_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 0,4758 \text{ nm}$ bestimmt ist. Das innere Sechseck aus Sauerstoffatomen besitzt einen Gitterabstand von 0,2747 nm und ist gegenüber dem äußeren um 30° verdreht. Das kleinere Sauerstoffuntergitter von Al_2O_3 entspricht somit in seiner Symmetrie der Einheitszelle von GaN; deshalb kann das hexa-

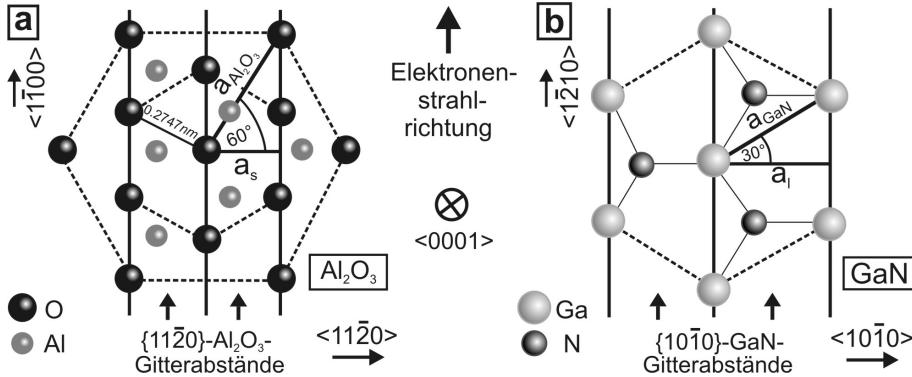


Abbildung 3.4: {0001}-Projektion der (a) hexagonalen Al_2O_3 - und (b) GaN-Einheitszellen in der beobachteten Wachstumsrichtung mit 30°-Verdrehung (Abbildung aus [Kai00]).

gonale GaN mit einer 30°-Verdrehung in der (0001)-Ebene auf rhomboedrischem Saphir aufwachsen (s. Abb. 3.4). Vergleicht man die Gitterkonstanten von GaN mit der des Sauerstoffuntergitters, so ergibt sich für die Gitterfehlanpassung bei Raumtemperatur:

$$f_{\text{GaN}/\text{Al}_2\text{O}_3} = \frac{0,2747 - 0,3189}{0,3189} = -13,9\% \quad (3.4)$$

Diese hohe Fehlanpassung wird allerdings schon im Grenzflächenbereich durch Versetzungseinschluss stark reduziert (auf einen Restwert von -2,1 % [Kai00]), wodurch eine sinnvolle Anwendung der Epitaxie von GaN auf Saphir ermöglicht wird (s. Kapitel 5.1.1).

Al_2O_3 ist bis zum jetzigen Zeitpunkt das meist verwendete für die Epitaxie von LED-Heterostrukturen. Hauptgründe dafür sind die hohe kristalline Qualität von Al_2O_3 -Substraten, der, verglichen mit anderen möglichen Substratmaterialien, moderate Preis und die durch langjährige Anwendung und intensive weltweite Forschung und Entwicklung etablierten Epitaxieprozesse.

Siliziumkarbid (SiC)

In SiC ist jedes Siliziumatom tetraedisch von 4 Kohlenstoffatomen, sowie jedes Kohlenstoffatom tetraedisch von 4 Siliziumatomen umgeben. Es existieren verschiedene Polytypen, deren Unterschied in den verschiedenen Stapelfolgen der Doppelschichten von Silizium- und Kohlenstoffatomen liegt. Im SiC-Kristall ist somit sowohl eine kubische, rhomboedrische als auch eine hexagonale Symmetrie möglich. Bei den untersuchten Proben wurden 6H-SiC-Substrate, einem hexagonalen Polytypen mit Wiederholung der Stapelfolge nach 6 Doppel-Atomlagen, verwendet.

α -GaN wächst auf 6H-SiC(0001) ohne Verdrehung auf. Für die Gitterfehlspannung ergibt sich:

$$f_{GaN/SiC} = \frac{0,308 - 0,3189}{0,3189} = -3,4\% \quad (3.5)$$

Vorteile von SiC gegenüber Al_2O_3 sind, neben der geringeren Gitterfehlspannung, u.a. die höhere thermische Leitfähigkeit und die Möglichkeit der n-Dotierung von SiC und damit der elektrischen Kontaktierung am Substrat. Zusätzlich besitzt SiC dieselben Spaltflächen wie GaN, was gerade bei Laserdioden die Möglichkeit eröffnet, gespaltene Laserfacetten zu erzeugen. Ein wesentlicher Unterschied zwischen der Epitaxie auf Al_2O_3 und SiC sind die relativen Unterschiede im thermischen Ausdehnungskoeffizienten (s. Tabelle 3.3). Während GaN auf Al_2O_3 nach Abkühlen im Anschluss an den Epitaxieprozess kompressiv verspannt vorliegt, ist die Verspannung im Fall von GaN auf SiC tensil. Durch diese tensile Verspannung kann es ab einer GaN-Schichtdicke von etwa 3 - 4 μm zu Rissbildung kommen [Fur07], die den epitaxierten Wafer unbrauchbar machen.

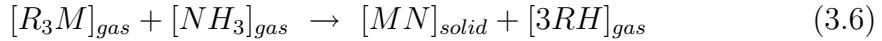
Epitaxie

Das Wachstum von GaN auf den beschriebenen Substraten wird im Wesentlichen mit drei verschiedenen Verfahren durchgeführt: Molekularstrahlepitaxie (Molecular Beam Epitaxy, MBE), Hydride Vapor Phase Epitaxy (HVPE) und Metallorganische Gasphasenepitaxie (Metal Organic Vapor Phase Epitaxy, MOVPE). Für den industriellen Einsatz, zur Herstellung von Schichtsystemen für optoelektronische Bauteile, wird vor allem das Wachstum per MOVPE verwendet, da damit gute Schichtqualitäten bei relativ hohen Wachstumsraten (bis zu 4 $\mu m/h$) erreicht werden können.

Alle in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden per MOVPE hergestellt, weshalb nur diese Wachstumsmethode erläutert werden soll.

MOVPE ist für die kommerzielle Produktion von Gruppe-III-Nitriden besonders geeignet, da eine Abscheidung mit hoher Wachstumsrate von bis zu 4 $\mu m/h$ ohne UHV-Bedingungen möglich ist. Als Quellen für die Gruppe-III-Elemente ist der Einsatz der Metallorganyle Trimethylaluminium (TMAl), Trimethylgallium (TMGa) und Trimethylindium (TMIn) üblich. Sie liegen als chemische Verbindungen in der Gasphase vor und werden zusammen mit den Trägergasen H_2 oder N_2 hochverdünnt in den MOVPE-Reaktor eingeleitet. Stickstoff wird meist durch Einleiten von Ammoniak (NH_3) bereitgestellt. Die Abscheidung der Gruppe-III-Elemente bzw. des Stickstoffs erfolgt durch thermisches Aufbrechen der Verbindungen über der geheizten Substratoberfläche. Werden parasitäre Reaktionen und Zwischenprodukte vernachlässigt, kann man den Abscheidevorgang stark verein-

facht wie folgt beschreiben:



M ist hierbei das Gruppe-III-Atom, R das organische Radikal des metallorganischen Moleküls sowie N und H das Stickstoff- und Wasserstoffatom des Ammoniakgases. Ammoniak besitzt eine hohe thermische Stabilität, so dass für eine effektive Zerlegung in Wasserstoff und Stickstoff vorzugsweise hohe Substrattemperaturen verwendet werden³. Für GaN-Wachstum stellen die hohen Temperaturen kein Problem dar, typische Wachstumstemperaturen liegen im Bereich 1100°C bis 1150°C. Diese hohen Temperaturen sind allerdings beim Wachstum der InGaN-Schichten in der aktiven Zone der LED nicht möglich, da effizienter In-Einbau nur in einem Temperaturbereich von 700°C bis 850°C gewährleistet ist. Ausgeglichen wird die ineffiziente Zerlegung des Ammoniaks in diesem Temperaturbereich durch Einstellen eines wesentlich höheren NH₃-Flusses, so dass trotzdem ausreichend atomarer Stickstoff zur Verfügung gestellt wird. Die geschieht allerdings auf Kosten der Wachstumsgeschwindigkeit und der Kristallqualität [Neu08]. Die hohen thermischen Anforderungen, die an die Substratmaterialien während des MOVPE Prozesses gestellt werden, werden z.B. von den beschriebenen Al₂O₃ und SiC erfüllt.

In-situ-Reflektometrie

Die In-situ-Reflektometrie wird während des MOVPE-Prozesses zur Kontrolle der Wachstumsrate und der Oberflächenbeschaffenheit genutzt. Das Funktionsprinzip ist in Abb. 3.5 dargestellt. Ein Laserstrahl fällt über einen Strahlteiler auf die Wafer in der MOVPE-Anlage. Er wird dort an der Probenoberfläche und der Grenzfläche zum Substrat reflektiert. Abhängig von der Dicke der gewachsenen Schicht tritt konstruktive oder destruktive Interferenz auf. Die Intensität des Interferenzsignals wird nach Reflexion am Strahlteiler auf einer Photodiode detektiert.

Neben den dickenabhängigen Intensitätsoszillationen durch Interferenz treten auch oberflächenabhängige Schwankungen der Intensität auf: Je rauer die Oberfläche der gewachsenen Schicht, umso mehr Licht wird diffus gestreut und nicht in Einfallrichtung reflektiert. Intensitätseinbrüche im detektierten Signal deuten auf eine Aufrauung der Oberfläche während der Epitaxie hin. In Abb. 3.6 ist der Graph der In-situ-Reflektometrie-Messung während eines Epitaxieprozesses einer GaN-Schicht auf einer GaN-Nukleationsschicht dargestellt (Abbildung aus [Kal03]). Der gleiche Wachstumsprozess wurde mehrmals durchgeführt und an mehreren Stellen abgebrochen um eine Oberflächenanalyse mit AFM durchzuführen und

³Die Ammoniakzerlegung fällt von 60 % bei 1000°C zu 7% bei 900°C ab [Neu05].

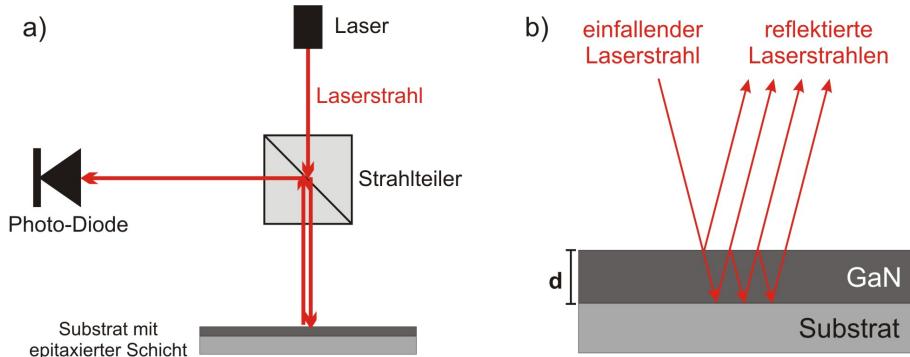


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung des Aufbaus (a) und des physikalischen Prinzips (b) der In-situ-Reflektometrie-Messung. Laserstrahlung fällt über einen Strahlteiler auf die Waferoberfläche. Sie wird an der Waferoberfläche und an der Grenzfläche zum Substrat reflektiert. Die Intensität des reflektierten Signals wird mit einer Photodiode detektiert und ist von zwei wesentlichen Faktoren beeinflusst:

GaN-Schichtdicke: Abhängig von der Dicke der GaN-Schicht tritt konstruktive oder destruktive Interferenz auf.

GaN-Oberfläche: Der Grad der Reflektivität ist abhängig von der Beschaffenheit, insbesondere der Rauigkeit, der Oberfläche der epitaxierten Schicht.

mit dem Reflektometrie-Signal der vollständig epitaxierten Schicht zu den Zeitpunkten der Wachstumsunterbrechung abzugleichen.

Nach einem Desorptionsschritt zur Reinigung der Substratoberfläche beginnt das Wachstum der GaN-Nukleationsschicht. Das Reflektometrie-Signal steigt wegen der unterschiedlichen Brechungsindizes von Al_2O_3 ($n \approx 1,75$) und GaN ($n \approx 2,45$) an. Die Höhe des Signals hängt von der Dicke der Nukleationsschicht zum jeweiligen Messzeitpunkt ab. Die Oberflächenbeschaffenheit zum Zeitpunkt (a) ist im Bild links oben dargestellt: Man erkennt eine feinkörnige Probenoberfläche. Im nächsten Schritt wird die Probe einem Annealing unterzogen. Die kleinen, während des Wachstums der Nukleationsschicht entstandenen Inseln vereinen sich zu größeren GaN-Inseln, die Oberfläche wird insgesamt rauer. Nachdem die Epitaxie wieder aufgenommen wurde, fällt das Signal weiter ab. GaN wächst in dieser Wachstumphase bei den verwendeten Wachstumsparametern [Kal03] dreidimensional, wie man auf AFM-Bild (b) erkennen kann. Wird das Wachstum weiter fortgesetzt, steigt das Reflektometrie-Signal an, die einzelnen GaN-Inseln koaleszieren und bilden zum Zeitpunkt (c) eine fast vollständig geschlossenen Oberfläche. Nach dem Ende der Koaleszenzphase liegt eine vollständig geschlossene Oberfläche vor. Das Wachstum erfolgt nun zweidimensional, die periodischen Oszillationen des Signals, verursacht durch Interferenz von an der Oberfläche und

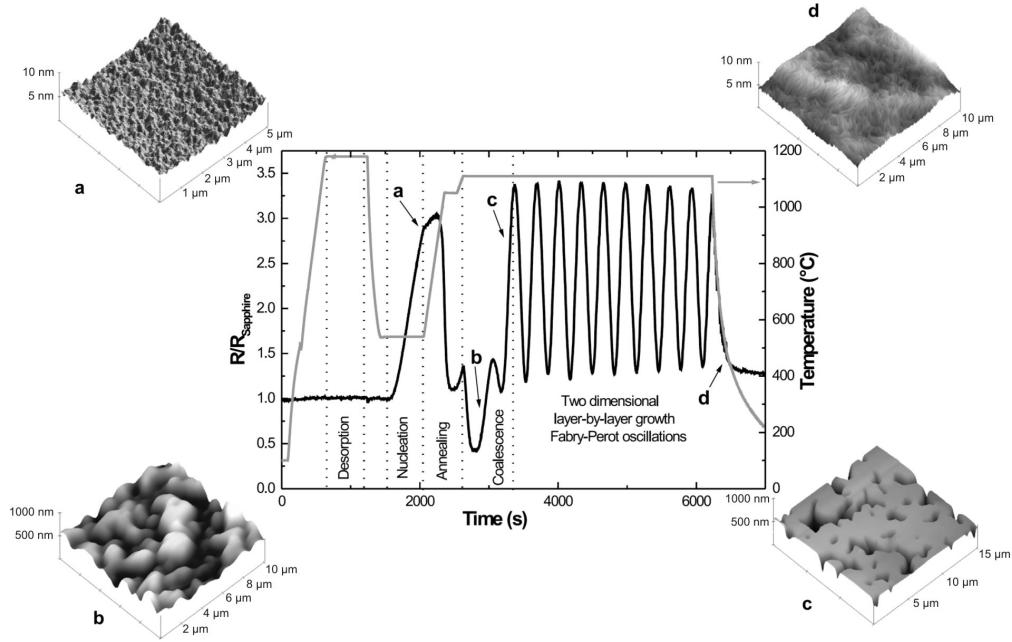


Abbildung 3.6: Verlauf einer *In-situ*-Reflektometrie-Messung während eines Epitaxieprozesses einer GaN-Schicht auf einer GaN-Nukleationsschicht im Vergleich zu AFM-Messungen der Schichtoberfläche. Die Höhe des Reflektometrie-Signals hängt einerseits (bis zu Punkt c) von der Oberflächenbeschaffenheit, andererseits (im Bereich der Oszillationen ab Punkt c) von der Dicke der epitaxiierten Schicht ab. Ausführliche Erklärung, siehe Text. Abbildung aus [Kal03].

an der Grenzfläche zum Substrat reflektierter Strahlung, treten auf. Am Ende der Epitaxie zum Zeitpunkt (d) erkennt man auf dem AFM-Bild eine ebene und gleichmäßige Probenoberfläche.

3.4 LED - und Laserstrukturen

3.4.1 Schichtaufbau

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Schichtsysteme für optoelektronische Anwendungen, d.h. Leuchtdioden- (LED, light emitting diode) und Laserdioden- (LD, laser diode) Strukturen, untersucht⁴. Im Folgenden wird zum besseren Verständ-

⁴Es handelte sich dabei nicht immer um vollständig epitaxierte Heterostrukturen, oftmals wurden Teststrukturen untersucht, die an einer bestimmten Stelle der Schichtfolge unterbrochen wurden (s. Kapitel 5).

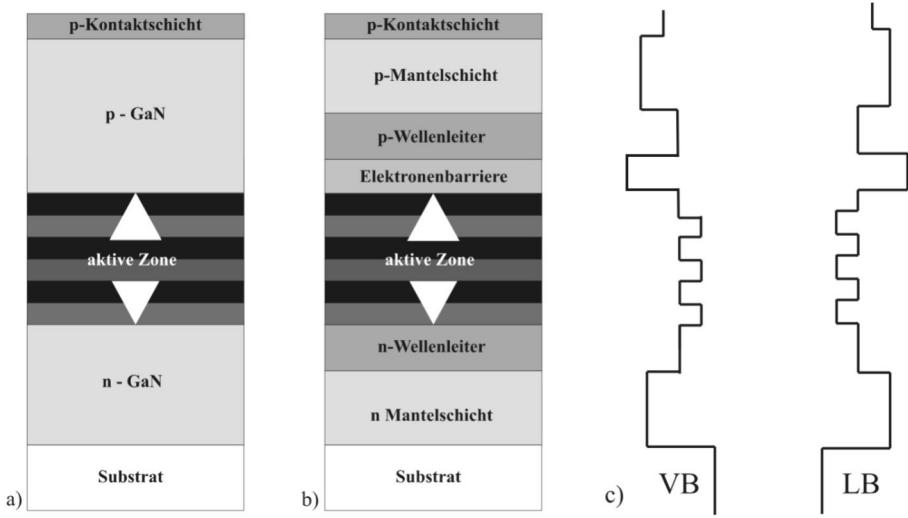


Abbildung 3.7: Schematische (nicht maßstabsgetreue) Darstellung des :
 a) typischen Schichtaufbaus für eine LED- Struktur
 b) typischen Schichtaufbaus für eine LD-Struktur
 c) Bänderschemas einer Laserdiodenstruktur mit Valenzband (VB) und Leitungsband (LB)

nis kurz der grundlegende Aufbau der entsprechenden Heterostrukturen erklärt. LED- und LD-Schichtsystemen gemeinsam ist ein p-n-Übergang, in dessen Bereich strahlende Rekombination von Ladungsträgern stattfindet. Während jedoch bei einer LED nur spontane Emission stattfindet, ist für eine Laserdiodenstruktur der Übergang zu stimulierter Emission entscheidend. Um stimulierte Emission zu erreichen, benötigt man Besetzungsinversion in einem Resonator mit Medium, was bedeutet, dass das obere Laserniveau stärker besetzt sein muss als das untere. In einem Halbleiterdiodenlaser besteht das obere Laserniveau aus Elektronen im Leitungsband und Löchern im Valenzband. Abb. 3.7 zeigt den schematischen Schichtaufbau von LED und LD auf GaN-Basis sowie die Bandstruktur einer Laserdiode. Um für den Laserbetrieb Besetzungsinversion zu erreichen, werden $In_xGa_{1-x}N$ Quantentröge mit einer Dicke von wenigen Monolagen im Bereich des p-n-Übergangs eingebracht. Den Bereich der Quantentröge nennt man die aktive Zone der LD. Da $In_xGa_{1-x}N$ eine kleinere Bandlücke als das umgebende GaN hat, entsteht an den Quantentrögen ein Potentialminimum, in dem bei Stromfluss Elektronen und Löcher eingefangen werden können. Ab einem ausreichend hohen Strom, dem sogenannten Schwellstrom, sammeln sich genug Ladungsträger im Quantentrog, so dass in diesem Bereich die stimulierte Emission die Resonatorverluste übersteigt und der Laserbetrieb einsetzt. Die Emissionswellenlänge einer Laserdiode kann vorrangig durch die In-Konzentration, die zu einer be-

stimmten Tiefe der Quantentröge und damit zu einer bestimmten Energielücke führt, eingestellt werden. Um eine Ausbreitung der sehr beweglichen Elektronen ins p-Gebiet zu verhindern, wird die aktive Zone auf der p-Seite durch eine Elektronenbarriere aus $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ abgeschlossen, die aufgrund ihrer höheren Bandlücke im Vergleich zu GaN als Potentialbarriere dient. Umgeben sind aktive Zone und Elektronenbarriere von einer Wellenleiterschicht (GaN) mit hohem Brechungsindex und einer Mantelschicht ($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$) mit niedrigem Brechungsindex. Wellenleiter- und Mantelschicht dienen der Führung der Lasermoden, eine Ausbreitung in die übrigen Schichten wird verhindert, da eine Verstärkung nur in der aktiven Zone stattfindet. Abgeschlossen wird die Laserstruktur von einer hochdotierten p-Kontaktschicht, um den Kontaktwiderstand zwischen Halbleiter und Metallkontakt zu vermindern (p-Dotierung erfolgt mit Magnesium, n-Dotierung mit Silizium).

Für LED-Strukturen würde prinzipiell ein einfacher p-n-Übergang ausreichen. Es werden jedoch auch hier Quantentröge verwendet um die Effizienz der Bauteile zu erhöhen. Auf Wellenleiter- und Mantelschicht kann jedoch verzichtet werden, da nur spontane Emission stattfindet.

3.4.2 Einflussparameter für die Emissionswellenlänge

Die Emissionswellenlänge von LEDs und LDs wird durch mehrere Faktoren beeinflusst die im Folgenden phänomenologisch zusammengefasst werden.

Indium-Gehalt in den Quantentrögen

Wie in Kapitel 3.1 beschrieben, wird über die Indium-Konzentration x in den $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Quantentrögen der Abstand zwischen Leitungs- und Valenzband eingestellt. Es gilt, je höher die Indium-Konzentration in den Quantentrögen desto geringer die Energielücke und umso höher die Wellenlänge der emittierten Strahlung.

Dicke der Quantentröge

Für dünne Schichten, wie z.B. Quantentröge in der aktiven Zone von LED-Strukturen, sind die Energiezustände in den Schichten quantisiert. Theoretisch kann man die quantisierten Energieniveaus, mit der Annahme unendlich hoher Barrieren⁵, folgendermaßen nähern:

$$E_n = \frac{\hbar}{2m^*} \left(\frac{n\pi}{L_{QW}} \right)^2 , \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (3.7)$$

⁵Entspricht der Behandlung eines geladenen Teilchens in einem unendlich hohen Potentialtopf.

Dabei ist \hbar das Plancksche Wirkungsquantum, m^* die effektive Masse von Elektronen bzw. Löchern und L_{QW} die Dicke des Quantenfilms. Für reelle Quantröge müssten endliche Barrierenhöhen, möglicherweise variierende Quantentrogdicken und eine ungleichmäßige Indium-Verteilung im Quantentrog berücksichtigt werden. Dies ist nicht Thema dieser Arbeit, darum soll darauf nicht näher eingegangen werden.

Wichtig für die weitere Betrachtung, v.a. der semipolar gewachsenen Quantentrogstrukturen in Kapitel 6, ist, dass die Quantisierung in den Quantentrögen mit abnehmender Schichtdicke zunimmt. Die stärkere Quantisierung führt zu einer größeren Übergangsenergie und damit zu einer Verringerung der emittierten Wellenlänge.

Verkippung der Energiebänder

In der aktiven Zone von LED-Strukturen wachsen die InGaN-Schichten durch die im Vergleich zu GaN höhere Gitterkonstante bei pseudomorphem Wachstum verspannt auf. Diese Verspannungen induzieren ein Piezofeld in den Quantentrögen und dadurch eine Verkippung der Energiebänder. Diese Verkippung führt zum einen durch den geringen Überlapp der Wellenfunktionen zu einer Absenkung der internen Quanteneffizienz der optischen Übergänge des Systems, zum anderen verringert sich die Bandlücke, d.h. die emittierte Strahlung besitzt eine höhere Wellenlänge. Dieser Effekt wird in der Literatur als „Quantum Confined Stark Effect“(QCSE) bezeichnet. Genauer wird auf diesen Punkt in Kapitel 6 eingegangen.

KAPITEL 4

Versetzungen

Obwohl zum jetzigen Zeitpunkt GaN-Substrate kommerziell erhältlich sind, sind sie für industrielle Anwendungen z.B. im LED Massenmarkt wie in Abschnitt 3.3 beschrieben nicht in ausreichender Menge erhältlich und zu teuer. Aus diesem Grund wird weiterhin versucht die Qualität der heteroepitaktisch gewachsenen Schichten zu verbessern. Ein wichtiger Punkt ist dabei das Erreichen einer möglichst geringen Versetzungsdichte in den für die Lichterzeugung wichtigen Bereichen des Schichtsystems, der aktiven Zone.

Im folgenden Kapitel wird zunächst Grundlegendes über Versetzungen, im Speziellen Versetzungen in Gruppe-III-Nitriden, zusammengefasst. Anschließend wird erklärt, welche Möglichkeiten und Methoden im TEM zur Versetzungsanalyse zur Verfügung stehen und kurz auf andere Methoden der Versetzungsanalyse eingegangen, die an den im Rahmen dieser Arbeit vermessenen Proben durchgeführt wurden.

4.1 Definitionen

Unter einer Versetzung versteht man einen linienförmig gestörten Bereich eines Kristallgitters. Sie wird durch die Versetzungslinie \vec{u} und ihren Burgers-Vektor \vec{b} eindeutig charakterisiert. Der Burgers-Vektor wird durch einen Burgers-Umlauf bestimmt, der die Versetzungslinie umschließt; der Burgers-Umlauf wird im Uhrzeigersinn so durchgeführt, dass sich bei einem versetzungsfreien Kristall durch Abzählen der Gitterpositionen ein geschlossener Kreis ergeben würde. Im gestörten

Kristall entspricht der Vektor, der vom Anfangs- zum Endpunkt des Umlaufs zeigt dem Burgersvektor \vec{b} . Man unterscheidet zwei Arten von Versetzungen (s. Abb. 4.1): Stufenversetzungen bei denen die Versetzungsleitung senkrecht zum Burgers-Vektor verläuft ($\vec{u} \perp \vec{b}$) und Schraubenversetzungen mit parallelem Verlauf von Versetzungsleitung und Burgers-Vektor ($\vec{u} \parallel \vec{b}$). Darüber hinaus existieren Versetzungen die sowohl einen Schrauben- als auch einen Stufenanteil enthalten. Sie werden als gemischte Versetzungen bezeichnet und manchmal durch Angabe des Winkels zwischen \vec{u} und \vec{b} charakterisiert. Entspricht der Burgers-Vektor einer

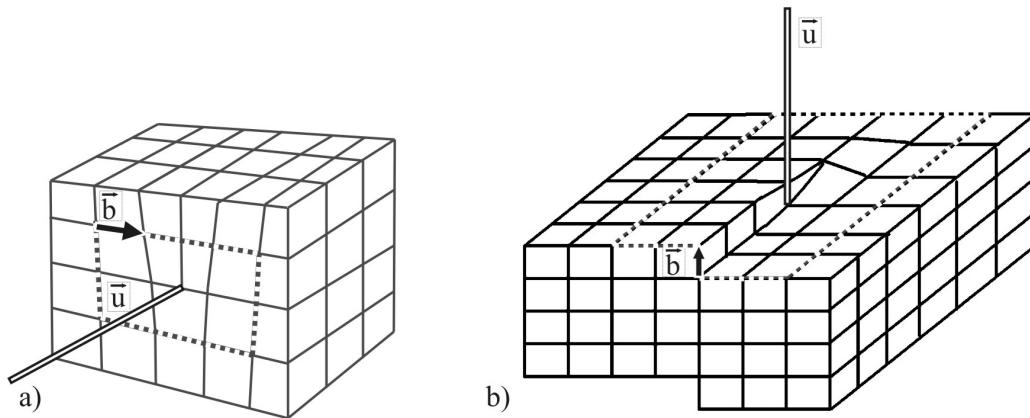


Abbildung 4.1: Burgersvektor \vec{b} , Versetzungsleitung \vec{u} und Burgersumlauf für
a) Stufenversetzung
b) Schraubenversetzung

primitiven Translation des Gitters, wird die zugehörige Versetzung als perfekte Versetzung bezeichnet, ist dies nicht der Fall, handelt es sich um eine Teilversetzung. Im Falle einer Teilversetzung ändert sich die Stapelfolge der Gitterebenen, wodurch ein planarer Defekt entsteht, der als Stapelfehler bezeichnet wird.

Eine Versetzungsleitung kann innerhalb eines Kristalls¹ weder beginnen noch enden². Sie bildet deshalb entweder eine geschlossene Schleife oder beginnt bzw. endet an Grenzflächen des Kristalls. Im Allgemeinen nukleiert eine Versetzung an einer Kristallfläche (z.B. Wachstumssoberfläche) und bewegt sich anschließend unter dem Einfluss einer Kraft (z.B. Verspannung) durch den Kristall. Für die Bewegung einer Versetzung gibt es zwei verschiedene Möglichkeiten: Gleitprozesse und Kletterprozesse. Bei einem Gleitprozess bewegt sich eine Versetzung durch plastisches Abscheren des Kristalls. Dies ist nur in Kristallebenen möglich,

¹Wobei einzelne Schichten in einem Schichtsystem in dieser Definition bei nicht exakt gleicher Gitterkonstante als verschiedene Kristalle gelten.

²Folgt aus geometrischen Überlegungen zur topologischen Erzeugung von Versetzungen, s. [Kai00].

die durch den Burgersvektor \vec{b} und die Versetzungslinie \vec{u} aufgespannt werden, den sogenannten Gleitebenen einer Versetzung. Ein Kletterprozess erfolgt in einer Ebene, die die Versetzungslinie \vec{u} enthält und senkrecht zum Burgersvektor \vec{b} liegt. Eine ausführliche Analyse zu Gleit- und Kletterprozessen, insbesondere auch bezogen auf Gruppe-III-Nitride findet sich in [Kai00].

4.2 Versetzungstypen in Gruppe-III-Nitriden

Wie in Abschnitt 3.1 beschrieben, besitzen die in dieser Arbeit untersuchten Gruppe-III-Nitride eine hexagonale Wurtzitstruktur, die sich aus zwei um $\frac{5}{8}c_{\text{hex}}$ entlang der c-Achse gegeneinander verschobenen hcp-Gittern zusammensetzt, die jeweils entweder mit Metall- oder Stickstoffatomen besetzt sind. Somit kann man die möglichen Versetzungen aus einem hcp-Untergitter ableiten [Kai00]. Zur Veranschaulichung der möglichen Burgers-Vektoren und Versetzungslinien bedient man sich der Dreiecksdoppelpyramide (s. Abb. 4.2). Die Vektoren \overrightarrow{AB} , \overrightarrow{AC} , \overrightarrow{BC} ,

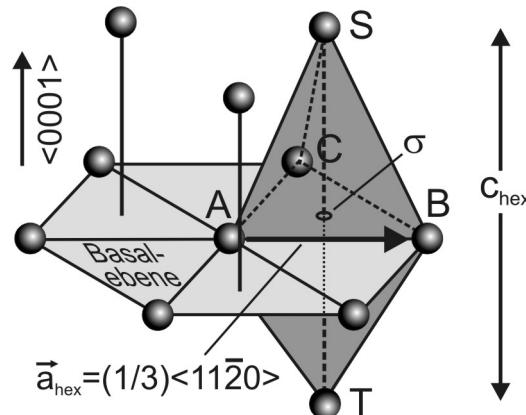


Abbildung 4.2: Dreiecksdoppelpyramide zur Veranschaulichung der möglichen Burgers-Vektoren in der hcp-Struktur, nach [Kai00].

\overrightarrow{ST} , $\overrightarrow{AB} + \overrightarrow{ST}$ entsprechen einer primitiven Translation in der hcp-Struktur und die dazugehörigen Versetzungen perfekten Versetzungen. Außerdem treten noch die nicht-primitiven Gittertransformationen \overrightarrow{AS} , $\overrightarrow{A\sigma}$, $\overrightarrow{\sigma S}$ auf, die den möglichen Teilversetzungen im Kristall entsprechen. Diese Teilversetzungen begrenzen Bereiche mit geänderter Stapelfolge in den epitaxierten Schichten. Die Teilversetzungen mit Burgers-Vektor $\vec{b} = \overrightarrow{AS}$ sind verbunden mit einer einfachen Verletzung der Stapelfolge (*ab ab abc bc bc ...*), die Teilversetzungen mit $\vec{b} = \overrightarrow{\sigma S}$ mit einer dreifachen Verletzung der Stapelfolge (*ab ab ab c ab ab ab ...*). Sie entstehen z.B. durch die Deposition einer Ebene in falscher Position während des Wachstums und werden als Frank-Teilversetzungen bezeichnet (Typ I bzw. Typ III). Im Gegensatz

Burgers-Vektoren	Kristallogr. Notation	Versetzungstyp
\vec{AB} , \vec{AC} , \vec{BC}	\vec{a}_1 , \vec{a}_2 , \vec{a}_3 oder $\frac{1}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle$	Stufenversetzung
\vec{ST}	\vec{c} oder $\langle 0001 \rangle$	Schraubenversetzung
$\vec{AB} + \vec{ST}$	$\vec{c} + \vec{a}$	gemischte Versetzung
$\vec{A}\sigma$	$\frac{1}{3}\langle 10\bar{1}0 \rangle$	Shockley Teilversetzung (Typ II)
\vec{AS}	$\frac{1}{6}\langle 20\bar{2}3 \rangle$	Frank Teilversetzung (Typ I)
$\vec{\sigma S}$	$\frac{1}{2}\langle 0001 \rangle$	Frank Teilversetzung (Typ III)

Tabelle 4.1: Burgers-Vektoren perfekter Versetzungen und von Teilversetzungen in Gruppe-III-Nitriden in der Wurtzitstruktur.

dazu ist die Shockley-Teilversetzung (Typ II) mit Burgers-Vektor $\vec{b} = \vec{A}\sigma$ keine gewachsene Versetzung. Sie ist verspannungsinduziert und trägt zum Abbau einer Gitterfehlpanpassung bei. Diese Art von Teilversetzung ist verbunden mit einer zweifachen Verletzung der Stapelfolge ($ab ab ac bc bc \dots$), kann aber durch Abscheren einer $\{0001\}$ -Ebene um $(1/3)\langle 10\bar{1}0 \rangle$ erzeugt werden. Um die beschriebenen Teilversetzungen von der hcp-Struktur auf die Wurtzitstruktur zu übertragen, müssen lediglich die Positionen der beiden Basisatome in der Form $aA bB aA bB \dots$ berücksichtigt werden. In Tabelle 4.1 sind die Burgers-Vektoren und kristallographische Notation der im Wurtzitkristall auftretenden Versetzungen und Teilversetzungen zusammengefasst.

4.3 Entstehung von Versetzungen in Gruppe-III-Nitriden

Grundsätzlich entstehen Versetzungen bei heteroepitaktischem Wachstum von Halbleiterhetrostrukturen v.a. wegen der Gitterfehlpanpassung zwischen Substrat und epitaxierter Schicht. Die durch die unterschiedlichen Gitterkonstanten von Substrat und gewachsener Schicht entstehenden Verspannungen werden unter Nukleation von Versetzungen abgebaut. Die Nukleation von Versetzungen ist energetisch günstig, wenn der Betrag der durch die Versetzung abgebauten Verspannungsenergie größer ist als die zur Bildung der Versetzung nötigen Energie. Bei homoepitaktischem Wachstum entstehen, im Normalfall, keine zusätzlichen Versetzungen, nur die bereits im Substrat vorhanden Versetzungen setzen sich in der epitaxierten Schicht fort.

In den gewachsenen Schichten muss unterschieden werden zwischen Anpassungsversetzungen (*misfit dislocations*) und Durchstoßversetzungen (*threading dislocations*). Bei Anpassungsversetzungen liegen die Versetzungslinie und Burgers-

verktor in der Wachstumsebene, bei Durchstoßversetzungen verläuft die Versetzungslinie (zumindest teilweise, möglicherweise auch unter einem Winkel) in Wachstumsrichtung, die Lage des Burgersvektors hängt vom Typ der Versetzung ab.

4.3.1 Anpassungsversetzungen

Während des epitaktischen Wachstums auf das Fremdsubstrat wird der gewachsenen Schicht zunächst senkrecht zur Wachstumsrichtung die Gitterkonstante des Substrats aufgezwungen. Die dadurch in der Schicht erzeugte Verspannung, und damit die potentielle Energie des Kristalls, nimmt mit zunehmender Schichtdicke zu. Ab einer gewissen, materialabhängigen Schichtdicke (kritische Schichtdicke) ist die potentielle Energie im Kristall so groß, dass sie durch Bildung einer Versetzung abgebaut wird. Dies ist möglich, wenn die durch die Bildung einer Versetzung abgebaute Verspannungsenergie größer ist als die zur Bildung der Versetzung notwendige Energie. Die Bildungsenergie pro Längeneinheit einer Versetzung ist nach [Hu91]:

$$E_{Vers} = \frac{G|\vec{b}|^2}{4\pi} \left[\frac{\sin^2 \theta}{(1-\nu)} + \cos^2 \theta \right] \left(\ln \frac{h}{r_0} - 1 \right) \quad (4.1)$$

Debei sind G der Schermodul, ν die Poissonzahl, h die Schichtdicke und r_0 der Radius des Versetzungskerns (die Ausdehnung der plastischen Verformung). Nach [Hu91] ist die mit einer Versetzung pro Längeneinheit abgebaute Verspannungsenergie:

$$\delta W = L \frac{2G(1+\nu)}{(1-\nu)} |f| \cdot h \cdot |\vec{b}| \sin \theta \cos \phi \quad (4.2)$$

f entspricht dabei der Gitterfehlanpassung zwischen Substrat und Schicht, θ dem Winkel zwischen Versetzungslinie \vec{u} und Burgersvektor \vec{b} , ϕ dem Winkel zwischen Gleitebene und Wachstumsgrenzfläche. Aus Gleichung 4.2 lassen sich folgende allgemein gültige Eigenschaften für Versetzungen ableiten:

- *Reine Schraubenversetzungen können keine Verspannungsenergie abbauen.*
Dies folgt aus dem $|\vec{b}| \sin \theta$ -Term:
Versetzungslinie und Burgersvektor laufen für Schraubenversetzungen parallel, d.h. $\theta=0^\circ$ und damit $\sin \theta = 0$.
- *Stufenversetzungen, die senkrecht zur Wachstumsgrenzfläche verlaufen, können keine Verspannungsenergie abbauen.*
Dies folgt aus dem $\cos \phi$ -Term:
Die Gleitebene von Stufenversetzungen mit Ausbreitungsrichtung senkrecht zur Wachstumsgrenzfläche ist aufgespannt durch Versetzungslinie \vec{u} und

Burgersvektor \vec{b} und liegt ebenfalls in einem rechten Winkel zur Wachstumsgrenzfläche. Daraus folgt $\phi=90^\circ$ und damit $\cos\phi = 0$.

Aus diesen Überlegungen kann man folgern, dass die Versetzungslinie \vec{u} einer Anpassungsversetzung eine Stufenkomponente besitzt und, um eine große Reduktion der Verspannungsenergie im Kristall zu gewährleisten, parallel zur Wachstumsoberfläche verläuft. Bei Wachstum von Gruppe-III-Nitriden auf Saphir-Substraten wurden diese Anpassungsversetzungen parallel zur Wachstumsgrenzfläche nahe der Substrat-Epitaxieschicht-Grenzfläche mit Hilfe von HRTEM Abbildungen nachgewiesen und z.B. in [Kai00] ausführlich analysiert (s. auch Abschnitt 5.1.1).

4.3.2 Durchstoßversetzungen

Während die im vorangegangenen Teilabschnitt behandelten Anpassungsversetzungen parallel zur Wachstumsoberfläche verlaufen und sich damit nicht in die für die Lichterzeugung wichtigen Bereiche der aktiven Zone fortsetzen, kann dies für die Durchstoßversetzungen der Fall sein. Sie wachsen in Richtung des epitaktischen Wachstums mit und können sich bis in die aktive Zone der Heterostruktur fortsetzen. Der Entstehungsmechanismus der Durchstoßversetzungen wird bis zum heutigen Tag kontrovers diskutiert. Im Folgenden sind einige mögliche Entstehungsmechanismen für Durchstoßversetzungen zusammengefasst [Ben10]:

- Durchstoßversetzungen können an Störstellen an der Substratoberfläche (z.B. atomare Stufen, Verunreinigungen, Kratzer) entstehen.
- Bereits im Substrat vorhandene Versetzungen können sich in die epitaxierten Schichten fortsetzen.
- Beinhaltet der Epitaxie Prozess einen dreidimensionalen Wachstumsschritt, entstehen Inseln, die zueinander eine Missorientierung aufweisen können. Bei der Koaleszenz dieser Inseln wird diese Missorientierung durch Bildung von Durchstoßversetzungen ausgeglichen. Dabei gilt: Eine Verdrehung (*twist*) der Inseln zueinander führt zur Bildung von Stufenversetzungen, eine Verkippung (*tilt*) zur Bildung von Schraubenversetzungen. Liegt sowohl eine Verkippung als auch eine Verdrehung vor, entstehen gemischte Versetzungen.
- In der Basalebene verlaufende Versetzungen (z.B. Anpassungsversetzungen) können die Ausbreitungsrichtung ändern und sich in Wachstumsrichtung fortsetzen.
- Durch Reaktion von Teilversetzungen können perfekte Versetzungen entstehen, deren Ausbreitungsrichtung in Wachstumsrichtung ist.

Welche der beschriebenen Mechanismen für die Entstehung von Versetzungen in einem gewachsenen Gruppe-III-Nitrid Schichtsystem verantwortlich sind, hängt z.B. von den folgenden Parametern ab:

- Auswahl des Substratmaterials - z.B. Saphir (Al_2O_3) oder Siliziumkarbid (SiC)
- Qualität des Substratmaterials - Reinheit der Oberfläche, Versetzungsichte im Substratmaterial,...
- Wachstumsparameter / Material der Nukleationsschicht / Pufferschicht - besonders wichtig bei Wachstum auf Al_2O_3
- Wachstumsparameter der epitaxierten Schichten - z.B. ausgedehnte 3D Wachstumsschritte oder 2D Lagenwachstum

Es ist davon auszugehen, dass für die meisten Wachstumsprozesse grundsätzlich eine Mischung aus allen beschriebenen Entstehungsmechanismen für Durchstoßversetzungen vorliegt. Der prozentuale Anteil der verschiedenen Mechanismen unterscheidet sich für verschiedene Wachstumsprozesse allerdings drastisch. Anhand von TEM Analysen werden einige dieser Unterschiede im Abschnitt 5.1 dargestellt.

4.4 Versetzungsanalyse im TEM

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei unterschiedliche Möglichkeiten zur Versetzungsanalyse im TEM genutzt: Die Bestimmung der Versetzungsichte mit Hilfe von Plan-View Präparaten sowie die Analyse des Verlaufs von Versetzungen in den epitaxierten Schichten und die Charakterisierung der Versetzungen nach Versetzungstypen mit Hilfe von Querschnittspräparaten. Im Folgenden werden der Versetzungskontrast im TEM sowie die verwendeten Abbildungsmethoden erläutert.

4.4.1 Versetzungsanalyse an Querschnittspräparaten

In Querschnittspräparaten kann eine Charakterisierung des Verlaufs von Versetzungen in der Epitaxieschicht bzw., falls vorhanden, auch im Substrat vorgenommen werden. Die einzelnen Versetzungen können unter speziellen Abbildungsbedingungen hinsichtlich ihres Typs (Schrauben-, Stufen-, gemischte Versetzung) unterschieden werden. Eine Bestimmung der Versetzungsichte ist quantitativ nicht möglich, qualitativ kann die Anzahl von Versetzungen in verschiedenen Proben verglichen werden. Versetzungen sind durch die lokale Auslenkung der Atome

aus ihrer Position im perfekten Kristall detektierbar. In Hellfeld-Abbildungen erscheinen Versetzungslinien dunkel, da die Bragg-Bedingung im Bereich der Versetzung durch die Gitterverzerrung nicht erfüllt ist. Umgekehrt kann im Dunkelfeld-Modus durch gezieltes Verkippen der Probe gerade dieser verbogene Gitterbereich die Bragg-Bedingung erfüllen, so dass Versetzungen als helle Linien auf dunklem Hintergrund sichtbar gemacht werden können.

Dieser Effekt wird bei der Weak-Beam-Dark-Field³ (WBDF)-Abbildung genutzt, mit der Versetzungen typfein untersucht werden können und deren theoretischer Hintergrund im Folgenden genauer erklärt werden soll. Hilfreich um die WBDF Methode zu beschreiben ist ein Blick auf die Ewald-Konstruktion: Im reziproken Raum wird ein Kristall durch die reziproken Gitterpunkte \vec{g}_i repräsentiert, die den möglichen Reflexen im Beugungsbild entsprechen. Im Beugungsbild sind diejenigen Reflexe angeregt, deren reziproke Gitterpunkte von der durch den Einfallsvektor \vec{k}_0 der Elektronenwelle bestimmten Ewald-Kugel geschnitten werden. Der Abstand eines reziproken Gitterpunktes \vec{g}_i von der Ewald-Kugel wird als Anregungsfehler $s_{\vec{g}_i}$ bezeichnet.

Wegen der geringen Probendicke t der TEM-Proben sind die reziproken Gitterpunkte in Elektronenstrahlrichtung proportional zu $\frac{1}{t}$ ausgedehnt [Rei93]. Zusätzlich ist der Radius der Ewald-Kugel im TEM sehr groß⁴ und kann im Bereich um \vec{g}_0 , dem zentralen Beugungsreflex, als Ebene betrachtet werden. Durch diese beiden Faktoren können im TEM mehrere Reflexe zugleich angeregt werden, so dass das typische Beugungsbild entsteht (s. Abb. 4.3 a)).

Um die Weak-Beam-Abbildungsbedingungen zu erreichen, wird die Probe im TEM zunächst in einer Richtung um ca. 5° verkippt. Neben dem Zentralstrahl sind nun weiter v.a. die Reflexe \vec{g}_1 und \vec{g}_{-1} angeregt (s. Abb. 4.3 b)). Im zweiten Schritt werden nun durch erneutes Verkippen der Probe senkrecht zur ersten Kipprichtung die durch \vec{g}_1 repräsentierten Ebenen von der Bragg-Bedingung entfernt. Der zur Bildrekonstruktion verwendete Reflex \vec{g}_1 ist nur noch schwach angeregt ("weak beam") (s. Abb. 4.3 c)). In der Umgebung der Versetzungen sind jedoch die Gitterebenen lokal verbogen, so dass für einige Ebenen die Bragg-Bedingung lokal erfüllt ist. Um diese gestörten Bereiche des Gitters abzubilden wird in der hinteren Brennebene der Objektivlinse eine Objektivblende so um \vec{g}_1 positioniert, dass nur dieser Reflex zur Bildentstehung beiträgt. Als Ergebnis erscheinen nur die verzerrten Bereiche des Gitters um eine Versetzung im Bild als helle Linie⁵.

³Bedeutet sinngemäß eine Dunkelfeld-Abbildung unter Verwendung eines schwach angeregten Beugungsreflexes.

⁴Für ein 300 kV Gerät wie das FEI Tecnai F30: $R = 508 \text{ nm}^{-1}$ [Wil96]

⁵Mit der beschriebenen Technik kann eine Auflösung der Versetzungslinien von ca. 3 nm erreicht werden.

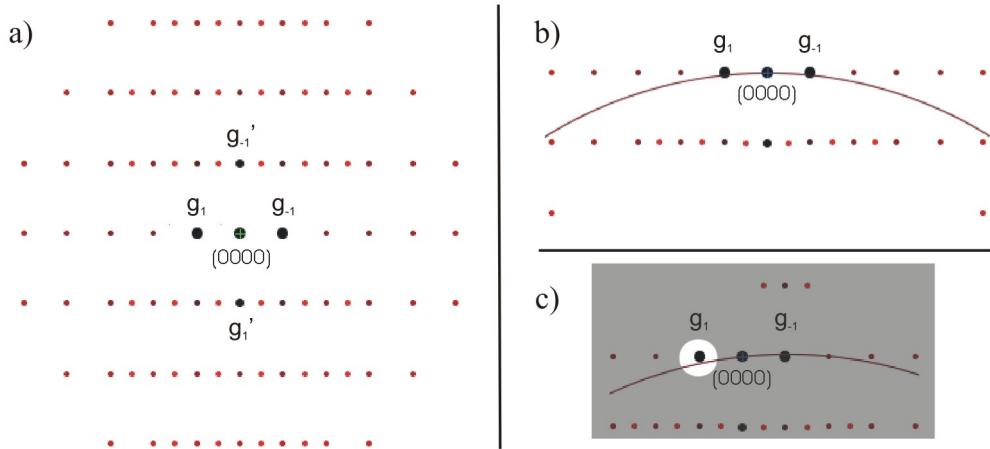


Abbildung 4.3: *Weak Beam Dark Field Abbildungsbedingungen, für den Fall der Abbildung von Versetzungen mit Schraubenkomponente (analog für die Abbildung von Versetzungen mit Stufenkomponente, allerdings ändert sich die Reihenfolge der Kipprichtungen und der mit der Blende ausgewählte Beugungsreflex von g_1 zu g'_1):*

- Beugungsbild der Probe in $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ -Richtung*
- Beugungsbild nach Verkippen um ca. 5° aus der Zonenachsenorientierung: Dreistrahlfall, g_1 , g_0 , g_{-1} sind die stark angeregten Reflexe, sie schneiden die Ewaldkugel, die durch den Kreisbogen angedeutet ist.*
- Beugungsbild nach leichtem Verkippen senkrecht zur vorherigen Kipprichtung: wieder entsteht ein Dreistrahlfall mit g_0 , g_{-1} , g_{-2} als stark angeregten Reflexen. g_1 ist nur noch schwach angeregt. Wird er mit der Objektivblende (angedeutet durch den grauen Bereich mit Öffnung) ausgewählt, können die verbogenen Ebenen im Bereich um Versetzungen sichtbar gemacht werden.*

Der große Vorteil der WBDF-Methode gegenüber konventioneller Hellfeldabbildung besteht neben der ausgezeichneten Auflösung in der Möglichkeit Versetzungen selektiv hinsichtlich ihres Burgers-Vektors und damit der Art der Versetzung abzubilden. Mit einer Versetzung ist eine Störung der Translationssymmetrie des Gitters im Kristall verbunden; dies wird im Allgemeinen durch einen Verschiebungsvektor \vec{R} beschrieben. In der wellenoptischen Beschreibung lässt sich das durch eine zusätzliche Phasenverschiebung $\Phi_{\vec{g}}$ der zur Abbildung verwendeten

\vec{b}	$\langle 0001 \rangle$		$\frac{1}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle$		$\frac{1}{3}\langle 1\bar{2}13 \rangle$	
\tilde{g}	$\tilde{g} \cdot \tilde{b}$	Kontrast	$\tilde{g} \cdot \tilde{b}$	Kontrast	$\tilde{g} \cdot \tilde{b}$	Kontrast
$\{0002\}$	2	stark	0	verschwindend	2	stark
$\{11\bar{2}0\}$	0	verschwindend	2	stark	- 1	stark

Tabelle 4.2: Kontraste von perfekten Versetzungen in Gruppe-III-Nitriden für WBDF-Abbildungen unter Berücksichtigung des $\tilde{g} \cdot \tilde{b} = 0$ - Auslöschungskriteriums.

Elektronenwelle $\Psi_{\vec{g}}$ berücksichtigen. Dabei gilt [Wil96]:

$$\Psi_{\vec{g}} \propto e^{2\pi i \vec{g} \cdot \vec{R}} \quad (4.3)$$

Der Kontrast einer Versetzung verschwindet also wenn \vec{g} senkrecht zu \vec{R} gewählt wird, da die zugehörigen Bragg-beugenden Netzebenen parallel zu \vec{R} verlaufen. Im Allgemeinen gilt $\vec{R} \parallel \vec{b}$, so dass unter Berücksichtigung der möglichen Versetzungen in der Kristallstruktur (s. Dreiecksdoppelpyramide, Abb. 4.2) durch Auswahl eines Beugungsreflexes \vec{g} den Versetzungen in den untersuchten Strukturen die zugehörigen Burgersvektoren \vec{b} zugeordnet werden können. Man nennt dies das $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ - Auslöschungskriterium.

Der Kontrast für WBDF-Abbildungen unter Berücksichtigung des $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ - Auslöschungskriteriums ist in Tabelle 4.2 zusammengefasst. In Abb. 4.4 ist exemplarisch eine Versetzungsanalyse an einem Querpräparat dargestellt. Üblicherweise wurden dazu von den untersuchten Probenstellen drei Bilder aufgenommen, eine Hellfeldabbildung, in der alle in der Probe auftretenden Versetzungen als dunkle Linien sichtbar sind (Abb. 4.4, Mitte), und, unter Ausnutzung des $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ - Auslöschungskriteriums, zwei WBDF Aufnahmen, in denen die Abbildungsparameter so gewählt wurden, dass in einem Bild Versetzungen mit einem Stufenanteil (Abb. 4.4, unten), im anderen Bild Versetzungen mit Schraubenanteil (Abb. 4.4, oben) als helle Linien zu erkennen sind. Durch Vergleich der 3 Bilder können die Typen der einzelnen im Hellfeldbild vorkommenden Versetzungen eindeutig bestimmt werden und durch Auswertung mehrerer Probenstellen eine quantitative Aussage zum Verhältnis der Versetzungstypen in der untersuchten Probe gebildet werden.

4.4.2 Versetzungsanalyse an Plan-View Präparaten

Die Minimierung der Versetzungsdichte spielt besonders bei heteroepitaktischem Wachstum eine wichtige Rolle bei der Verbesserung der Leistungsdaten von optoelektronischen Bauelementen. Um die Anzahl der Versetzungen bei Proben,

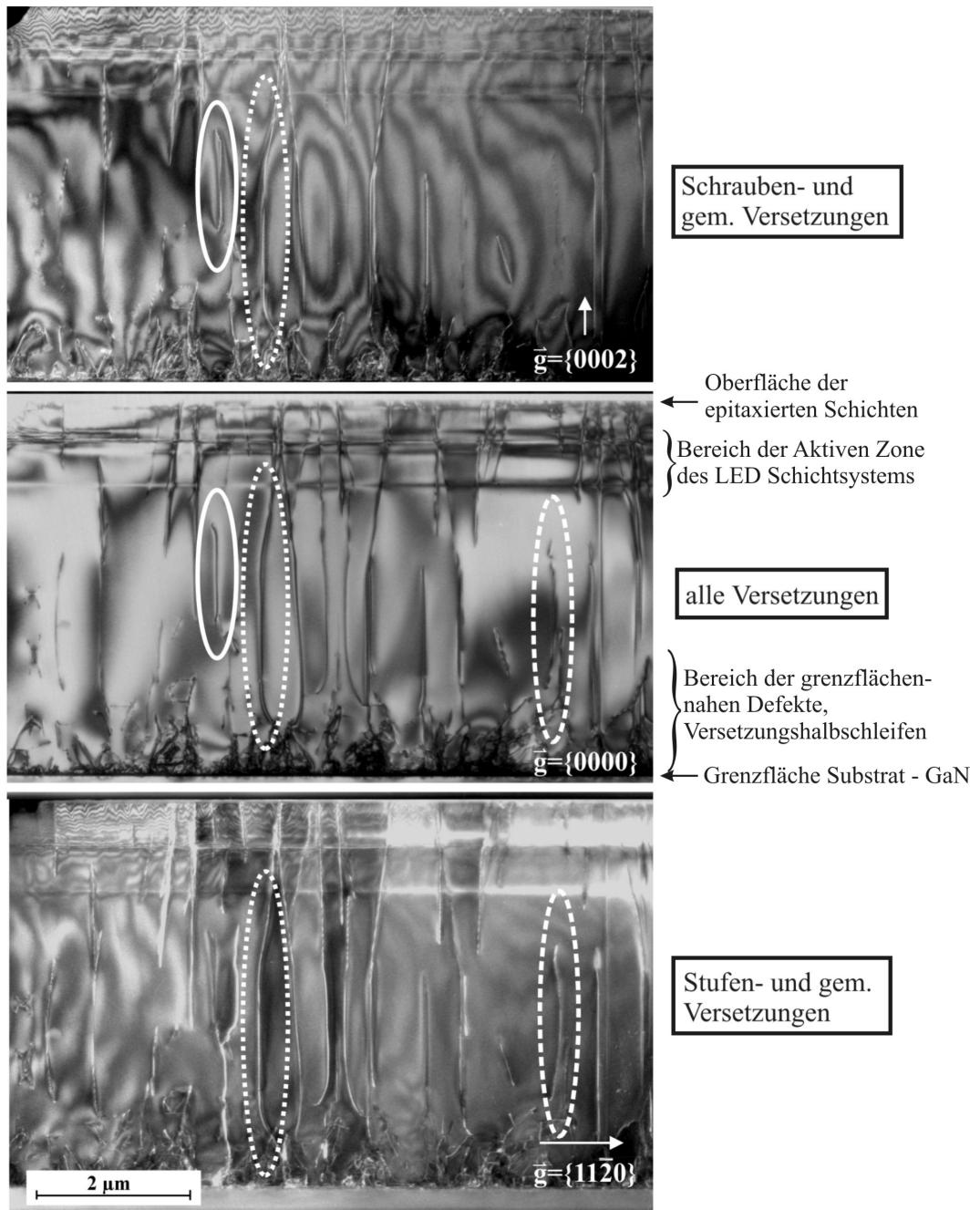


Abbildung 4.4: Hellfeld- und WBDF-Abbildungen zur Veranschaulichung der Versetzungsanalyse an Querschnittspräparaten: Ist eine Versetzung in allen drei Bildern sichtbar, handelt es sich um eine gemischte Versetzung (gepunktet eingezeichnet). Eine reine Stufenversetzung ist gestrichelt eine reine Schraubenversetzung durchgezogen eingezeichnet.

Im Hellfeld Bild (mittlere Abbildung) sind die wichtigsten Bereiche des LED Schichtsystems eingezeichnet. Man erkennt in den grenzflächennahen Bereichen die große Zahl von Versetzungen, die sich allerdings durch Bildung von Versetzungshalbschleifen teilweise gegenseitig auslöschen (Substratmaterial: Saphir). Im Bereich der aktiven Zone ist die Versetzungsdichte im Vergleich zum grenzflächennahen Bereich deutlich reduziert.

die mit verschiedenen Wachstumsbedingungen bzw. verschiedenem Schichtaufbau epitaxiert wurden, vergleichen zu können, ist eine exakte Bestimmung der Versetzungsdichte nötig. Eine geeignete Methode hierfür ist die TEM-Analyse von Plan-View-Präparaten (vgl. Abschnitt 2.5.2). Versetzungen werden in Plan-View-Präparaten entlang ihrer Ausbreitungsrichtung beobachtet. Da das Gitter im Bereich der Versetzungen verzerrt ist, ist auch in diesem Fall die Bragg-Bedingung lokal nicht erfüllt, die Versetzungslinien erscheinen punktförmig (bei nicht exakt senkrechttem Verlauf zur Probenoberfläche linienförmig). Durch Abzählen der Versetzungen pro Fläche wird eine Bestimmung der Versetzungsdichte pro Flächeneinheit (gewöhnlich $1/\text{cm}^2$) ermöglicht. In Abb. 4.5 ist exemplarisch eine

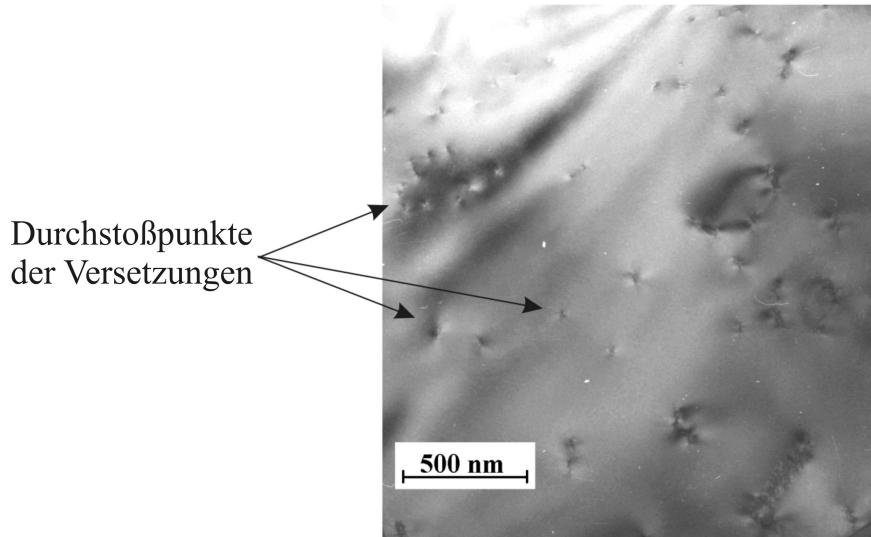


Abbildung 4.5: *Plan-View Aufnahme zur Veranschaulichung der Versetzungsanalyse: Die Punkte auf dem Bild entsprechen den Durchstoßpunkten der Versetzungen an der Schichtoberfläche. Durch Abzählen der Durchstoßpunkte in einem gewissen Bereich erhält man die Versetzungsdichte.*

PV TEM Aufnahme zu sehen. Es handelt sich hierbei um das selbe Schichtsystem wie in Abb. 4.4. Die Durchstoßpunkte der Versetzungen sind als dunkle Punkte zu erkennen. Der großflächige Hell-Dunkel-Kontrast wird durch Dickeinschwankungen des Präparats verursacht und hat auf die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Auswertungen keinen Einfluss.

4.5 Weitere Messmethoden zur Versetzungsanalyse

Verwendet man die beiden beschriebenen Analyse-Methoden im TEM, so kann man eine vollständige Charakterisierung der Versetzungen in einer Probe erreichen (Verlauf und Art der Versetzungen, Versetzungsichte, Burgers-Vektor-Bestimmung...). Das große Problem der beschriebenen Methoden ist der relativ hohe Zeitaufwand, v.a. bedingt durch die langwierige Probenpräparation. An vielen der untersuchten Proben wurden deshalb zunächst weniger zeitaufwendige Untersuchungsmethoden zur Versetzungsanalyse durchgeführt und durch TEM Untersuchungen ergänzt.

4.5.1 Etch Pit Density (EPD)

Zur einfachen und schnellen Bestimmung der Versetzungsichte haben sich die sogenannten Etch Pit Density Methoden etabliert (s. z.B. [Hin00] [Vis00] [Eng05]). Dabei werden die Oberflächen von Wafern mit Säuren wie HCl oder H₃PO₄ angeätzt. Die Säuren greifen die Oberfläche der Probe besonders an den Stellen stark an, an denen Versetzungen an der Oberfläche enden, versetzungsfreie Bereiche werden kaum angeätzt. Im Bereich um die Versetzungen entstehen Ätzkrater unterschiedlicher Form und Tiefe. Diese Ätzkrater können mit AFM (Atomic Force Microscopy) oder SEM (Scanning Electron Microscopy) sichtbar gemacht werden (s. Abb. 4.6 a)). Aus der Anzahl der Krater pro Flächeneinheit kann die Versetzungsichte der Probe abgeschätzt werden. Die unterschiedliche Form der Ätzkrater erlaubt grundsätzlich eine Unterscheidung zwischen Stufenversetzungen einerseits und Schrauben- und gemischten Versetzungen andererseits [Eng05], diese Unterscheidung wurde aber im Rahmen dieser Arbeit nicht verwendet, sondern nur die Gesamt-Versetzungsdichte bestimmt.

4.5.2 Röntgendiffraktometrie

Die hochauflöste Röntgendiffraktometrie (HRXRD⁶) ist eine klassische Methode zur Charakterisierung von Kristalleigenschaften; sie wird benutzt, um Gitterparameter von Kristallen und Kristallschichten zu bestimmen. Grundlage der Röntgenbeugung ist die Bragg Gleichung:

$$\lambda = 2d_{hkl} \cdot \sin(\theta_{hkl}) \quad (4.4)$$

Dabei ist λ die Wellenlänge der Röntgenstrahlung, d_{hkl} der Netzebenenabstand im Kristall und θ_{hkl} der Beugungswinkel für den Reflex (hkl).

⁶High Resolution X-Ray Diffraction

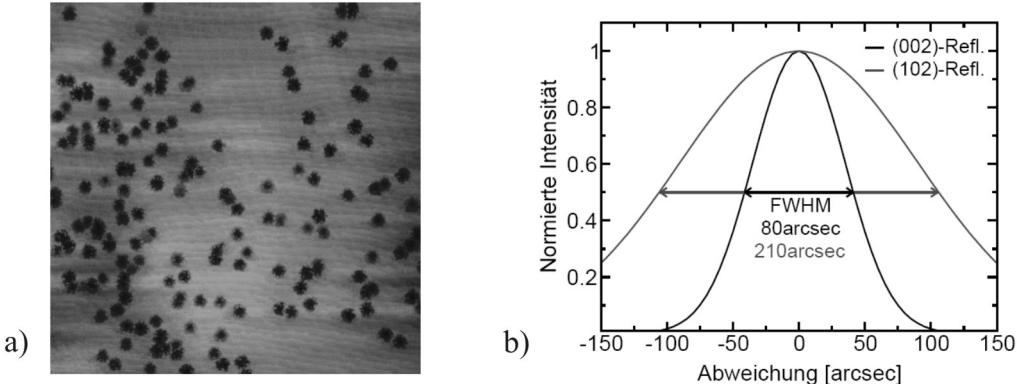


Abbildung 4.6: Zwei Methoden zur Analyse von Versetzungen, die als Vergleichsmessungen zu TEM-Resultaten herangezogen wurden:

- a) EPD-Methode (AFM-Bild): Durch Auszählen der Vertiefungen in der Probenoberfläche wird die Versetzungsdichte bestimmt.
- b) Röntgendiffraktometrie: Die Halbwertsbreiten der Röntgenpeaks sind ein Maß für die Versetzungsdichte, bei Auswertung verschiedener Reflexe auch Versetzungstyp-spezifisch.

Durch HRXRD kann man jedoch auch einen Anhaltspunkt über die Anzahl von Kristaldefekten erhalten. Die prinzipielle Annahme dabei ist, dass sich durch Streuung von Röntgenstrahlung an einem nicht idealen Kristallgitter die Halbwertsbreiten der Röntgenpeaks mit zunehmender Defektdichte erhöhen.

In der Praxis werden zur Bestimmung von Versetzungen mittels HRXRD ω -Scans (englisch: rocking curves) verwendet. Dabei wird der Einfallsinkel ω zwischen Röntgenquelle und Probe variiert, der Ausfallswinkel zum Detektor bleibt konstant. Die Halbwertsbreite des ω -Scans ist ein Maß für die Zahl der Bereiche mit gestörtem Kristallgitter und damit ein Maß für die Zahl der Versetzungen in der Probe.

Mit Röntgendiffraktometrie ist auch eine Unterscheidung zwischen Versetzungen mit Stufen- und Schraubenkomponente möglich: Man unterscheidet bei der Röntgendiffraktometrie zwischen symmetrischen und asymmetrischen Reflexen. Bei symmetrischen Reflexen werden Kristallebenen (hkl) mit $h, k = 0$ betrachtet, bei asymmetrischen solche mit $h \neq 0$ bzw. $k \neq 0$. Da Stufenversetzungen einen Burgersvektor $\vec{b}_{\text{Stufe}} = \langle 11\bar{2}0 \rangle$ besitzen, beeinflussen sie lediglich die Halbwertsbreiten der asymmetrischen Reflexe, Schraubenversetzungen mit $\vec{b}_{\text{Schraube}} = \langle 0001 \rangle$ die der symmetrischen Reflexe [Hey96]. Für die Beurteilung von Defektdichten werden üblicherweise der symmetrische (002)- und der asymmetrische (102)-Reflex verwendet (s. Abb. 4.6 b)).

Eine exakte Umrechnung der Halbwertsbreiten in konkrete Werte für die Anzahl der unterschiedlichen Defekttypen ist grundsätzlich möglich [Met98] [Lee05], die Messungen im Rahmen dieser Arbeit, die an der Universität Ulm durchgeführt wurden, sollten allerdings nur Tendenzen und relative Vergleichswerte für die TEM-Messungen liefern. Auf die Umrechnung zu exakten Werten für die Dichten von Schrauben- und Stufenversetzungen wurde verzichtet.

KAPITEL 5

Versetzungsanalyse

Wegen der geringen Verfügbarkeit und den daraus resultierenden hohen Preisen von GaN-Substraten werden GaN-basierte Diodenstrukturen bis zum jetzigen Zeitpunkt v.a. auf Fremdsubstraten abgeschieden. GaN-Substrate werden in Einzelfällen in der Fertigung, v.a. zur Herstellung von blauen Laserdioden, verwendet und sind ein wichtiges Thema in Forschung und Entwicklung, um Teststrukturen für Hochleistungsleuchtdioden mit einer geringen Versetzungsdichte herzustellen und Analysen zum Einfluss von Versetzungen auf die optischen und elektrischen Eigenschaften der Bauteile durchzuführen.

Für kommerzielle Anwendungen werden v.a. Saphir (Al_2O_3) und Siliziumkarbid (SiC) verwendet (s. Abschnitt 3.3). Der Unterschied der Gitterkonstanten von Substrat und GaN führt zu Verspannungen, die in Versetzungen abgebaut werden. Die Versetzungsdichten liegen üblicherweise, ohne explizite versetzungsrreduzierende Maßnahmen, im Bereich von $10^9 - 10^{10}\text{cm}^{-2}$. Es ist bekannt, dass durch Versetzungen die optischen und elektrischen Eigenschaften von GaN-basierten Bauteilen beeinflusst werden, da sie als Zentren nicht-strahlender Rekombination von Ladungsträgern wirken¹. Durch nicht-strahlende Rekombination wird einerseits die Quanteneffizienz des Bauteils erniedrigt², andererseits führt sie zu einer Erwärmung des Bauteils, und beschleunigt seine Degradation ([Ros97], [Sug98],

¹Dies kann z.B. durch Mikrophotolumineszenzanalysen nachgewiesen werden [Gme06].

²Es gibt zwei Definitionen für die Quanteneffizienz: Die interne Quanteneffizienz ist das Verhältnis von erzeugten Photonen zur Zahl der im Stromkreis fließenden Elektronen, die externe Quanteneffizienz beschreibt, wie viele der im Bauteil erzeugten Photonen an die Umgebung abgegeben werden.

[Che01], [Das01], [Tom01]). Eine Verringerung der Versetzungsichte (insbesondere in der aktiven Zone der LED bzw. LD) und damit einhergehend ein tieferes Verständnis des Verhaltens von Versetzungen im Schichtsystem sind weiterhin wichtige Punkte bei der Optimierung GaN basierter optoelektronischer Bauteile. In den folgenden Abschnitten wird zunächst die Entstehung, der Verlauf und die Dichte von Versetzungen bei Wachstum von GaN auf Saphir-, Siliziumkarbid- und Galliumnitrid-Substraten analysiert und verglichen. Anschließend wird eine Maßnahme zur Versetzungsreduktion, das Einbringen einer SiN-Zwischenschicht, bei Heteroepitaxie erklärt und anhand von TEM-Messungen ihre Auswirkungen auf die Versetzungsichte und den Verlauf der Versetzungen bei unterschiedlichen gewählten Wachstumsparametern gezeigt. Zum Abschluss des Kapitels wird der Entstehungsmechanismus einer besonderen Art von Defekt, der sogenannten V-Versetzung, analysiert und ihre Auswirkungen auf die optischen Eigenschaften von Bauelementen beschrieben.

Alle in diesem Kapitel untersuchten Schichtsysteme wurden in c-Richtung gewachsen, d.h. die Wachstumsoberfläche während der Epitaxie war die {0001}-Ebene. Die zur Versetzungsanalyse untersuchten Proben waren nicht in allen Fällen vollständig epitaxierte LED oder LD Heterostrukturen. Häufig wurde das Schichtwachstum, z.B. vor der Epitaxie der aktiven Zone, abgebrochen bzw. GaN Templates angefertigt, auf die die ersten Schichten der Heterostrukturen für optoelektronische Bauteile gewachsen wurden und das Wachstum unterbrochen wurde, bevor die eigentliche LED oder LD Struktur epitaxiert wurde. Auf die Analyse von Versetzungen hat dies, falls die gewachsene Schicht vollständig koalesziert war, keinen Einfluss: Durch die Fortsetzung der Epitaxie zu vollständigen Heterostrukturen entstehen, bei fachgerechter Durchführung, keine weiteren Versetzungen, sondern es breiten sich nur die schon vorhandenen Versetzungen in die zusätzlichen Schichten aus.

5.1 Versetzungsanalyse bei Epitaxie auf verschiedenen Substraten

Die folgenden Abschnitte fassen die Ergebnisse der Versetzungsanalyse bei Wachstum auf verschiedenen Substraten zusammen. Zunächst wird dabei die Heteroepitaxie von Galliumnitrid auf Siliziumkarbid und Saphir betrachtet, anschließend die Homoepitaxie auf GaN-Substraten.

5.1.1 Versetzungen bei Heteroepitaxie auf Saphir- und Siliziumkarbid-Substraten

Im Anfangsstadium des Wachstums auf einem Fremdsubstrat sind unterschiedliche Wachstumsmodi möglich. Der Wachstumsmodus hängt unter anderem vom Wert der Gitterfehlanpassung zwischen epitaxiertem Material und Substrat ab (s. Abb. 5.1). Bei einem großen Wert für die Gitterfehlanpassung ($> 10\%$) wird ab der ersten Monolage in 3D-Morphologie abgeschieden (Volmer-Weber-Wachstum), bei kleinen Werten für die Gitterfehlanpassung ist 2D Wachstum begünstigt (Frank-van der Merwe-Wachstum) [Kai00].

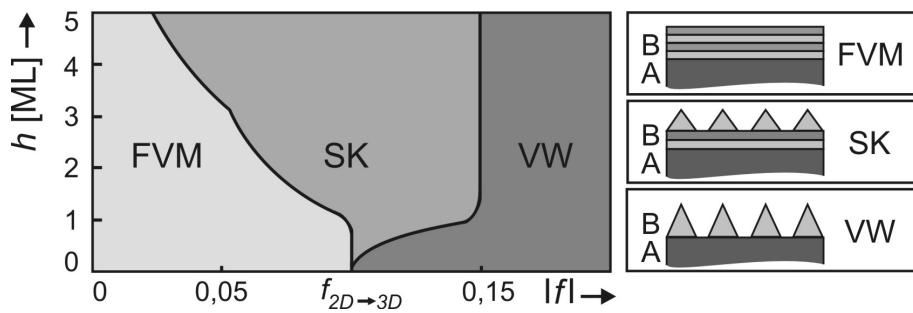


Abbildung 5.1: Mögliche Wachstumsmodi für die Heteroepitaxie von Material B auf Substrat A nach [Dar97]: Frank-van der Merwe (FVM), Stranski-Krastanow (SK) und Volmer-Weber (VW). Abhängig ist der Wachstumsmodus von der Bedeckung h und der Gitterfehlanpassung f .

Wachstum auf Saphir-Substraten

Für **Saphir** beträgt der Wert der Gitterfehlanpassung zu GaN $f = -13,9\%$, zu AlN $f = -11,8\%$ (s. Abschnitt 3.3); (Al)GaN³ wächst auf Al₂O₃ ab der ersten Monolage im 3D Modus. Eine vollständige Bedeckung des Substrats wird durch ein Zusammenwachsen der Inseln in der Koaleszenzphase erreicht, dabei findet auch der Übergang zum 2D Wachstum statt. Wegen des hohen Werts für die Gitterfehlanpassung ist auch die kritische Schichtdicke für die Nukleation von Versetzungen schon ab der ersten Monolage erreicht [Gra97].

Gewöhnlich wird zu Beginn des MOVPE-Wachstumsprozesses direkt auf das Substrat eine 10 nm bis 50 nm dicke AlN oder GaN Niedertemperatur Nukleationsschicht (Wachstumstemperatur 500°C bis 800°C) aufgebracht. Diese Nukleations-

³(Al)GaN steht in diesem Abschnitt als Abkürzung für die unterschiedlichen Möglichkeiten der Nukleationsschicht: AlN, GaN sowie die ternäre Verbindung AlGaN.

schicht ist aus mehreren Gründen entscheidend für das Wachstum hochwertiger GaN Schichten auf Saphir-Substraten [Kle11/1]:

- Im Gegensatz zu einem Anwachsprozess mit bei Standard-Wachstumstemperatur gewachsenem GaN wird der Niedrigtemperatur Nukleationsschicht Orientierung und Symmetrie der Substratoberfläche aufgezwungen. Das Wachstum erfolgt geordneter, die vorhandenen Missorientierungen der entstehenden (Al)GaN Inseln sind geringer als bei einem Hochtemperatur Anwachsprozess, was die durch den Anwachsprozess verursachte Zahl an Durchstoßversetzungen drastisch verringert.
- Durch die Oberflächenrauhigkeit der Nukleationsschicht erhöht sich der Haftungskoeffizient der Hochtemperatur GaN Schicht⁴. Sie bildet Kondensationskeime aus, die das Anwachsen der Hochtemperatur GaN Schicht erleichtern.
- Im Bereich der Nukleationsschicht entstehen Anpassungsversetzungen, die zum Verspannungsabbau dienen, an den Rändern der im 3D Modus gewachsenen Inseln, bevor die Oberfläche vollständig mit (Al)GaN bedeckt ist. Da die {0001}-Ebene die energetisch günstigste Gleitebene in diesem System ist [Kai00], gleiten die Versetzungen mit $\vec{b} = \langle 11\bar{2}0 \rangle$ parallel zur Grenzfläche unter die Inseln und breiten sich nicht weiter in die darüber gewachsenen Schichten aus. Durch diesen Versetzungseinschluss im Grenzflächenbereich wird ein großer Teil der durch die Gitterfehlanpassung verursachten Verspannungen relaxiert, es bleibt, bei Wachstum von GaN auf Al₂O₃, nur eine Restverspannung $\epsilon_r = -2,1\%$ [Kai00]. Diese verbleibende Restverspannung wird durch Versetzungen und Defekte abgebaut, die sich über die gesamte epitaxierte Schicht erstrecken und führt, wenn keine weiteren versetzungsreduzierenden Massnahmen angewendet werden, zu einer Versetzungsdichte in der Größenordnung von 10^9 cm^{-2} bis 10^{10} cm^{-2} .

Die Optimierung der Nukleationsschicht ist seit Jahren ein wichtiges Thema in der Entwicklung verbesserter Epitaxieprozesse für Gruppe-III-Nitride auf Saphir (s. z.B. [Rut03] [Ben10]). Es gibt unterschiedlichste Ansätze zur Wahl einer geeigneten Nukleationsschicht, die sich grob in zwei Gruppen einteilen lassen: 2D- und 3D-Nukleationsschichten. Bei 2D Nukleationsschichten ist nach der Deposition der Nukleationsschicht das Substrat vollständig mit (Al)GaN bedeckt. Die Oberfläche ist allerdings nicht komplett eben, sondern rau. Durch die raue Oberfläche

⁴Um einen klaren Unterschied zur Niedrigtemperatur Nukleationsschicht herzustellen, wird bei der GaN Anwachsschicht in der Literatur von einer Hochtemperatur GaN Schicht gesprochen. Die Wachstumstemperatur ist allerdings im Bereich der standardmäßig genutzten Werte von 1100°C bis 1150°C, vgl. Abschnitt 3.3.

wird die auf die Nukleationsschicht folgende GaN Abscheidung bei höheren Temperaturen verbessert. Bei der Verwendung von 3D Nukleationsschichten ist hingegen nach Abschluss der Deposition die Oberfläche des Substrats nicht vollständig mit (Al)GaN bedeckt: (Al)GaN-Inseln wechseln sich mit unbedeckter Substratoberfläche ab. Wird das Hochtemperatur GaN Wachstum nach der Nukleationsschicht aufgenommen, wächst GaN bei geeigneten Wachstumsparametern lateral an die Nukleations-Inseln an. Durch das laterale Überwachsen der Substratoberfläche wird eine Reduktion der Versetzungsichte erreicht, das Prinzip ähnelt einem ELO-Ansatz oder der Versetzungsreduktion durch SiN-Zwischenschichten (s. Abschnitt 5.2), jedoch ohne vorheriger Abscheidung einer GaN Pufferschicht. Für die in dieser Arbeit untersuchten Proben auf Al_2O_3 wurden ausschließlich 2D Nukleationsschichten verwendet.

Es bleibt anzumerken, dass die Wachstumsart der Hochtemperatur GaN Schicht auf die Nukleationsschicht nicht direkt vom 2D oder 3D Modus der Nukleationsschicht abhängt: Es ist durch die Wahl geeigneter Wachstumsparameter möglich, und in vielen Fällen gewünscht, auf die Nukleationsschicht eine inselförmige, dreidimensionale GaN Schicht zu wachsen, was unter anderem wichtig für die Interpretation der folgenden TEM Untersuchungen ist.

Wachstum auf Siliziumkarbid-Substraten

Für GaN auf **Siliziumkarbid** beträgt die Gitterfehlanpassung $f = -3,4\%$ (s. Abschnitt 3.3). Um den Wachstumsprozess zu vereinfachen wird das Wachstum oftmals mit einer AlGaN oder AlN Schicht begonnen; die Gitterfehlanpassung von reinem AlN auf SiC beträgt $f = -1\%$ [Kai00].

Wie man Abbildung 5.1 entnehmen kann, ist für diese Werte der Gitterfehlanpassung zunächst ein 2-dimensionales Lagenwachstum bevorzugt. Die kritische Schichtdicke für AlN auf SiC beträgt 4,6 nm [Kai00], bei dieser Schichtdicke liegt eine pseudomorph gewachsene, vollständig geschlossene, verspannte Schicht vor; wird das Wachstum fortgesetzt, erfolgt ein Übergang vom 2D zum 3D Prozess. Ähnlich wie bei Wachstum auf Al_2O_3 wird die Verspannung durch Anpassungsversetzungen abgebaut. Auf diese, meist einige 10 nm dicke AlN Schicht, die eine rauhe, inselförmige Oberfläche besitzt, wird die GaN Schicht epitaxiert. Durch die Gitterfehlanpassung von GaN zu AlN entstehen sowohl Anpassungsversetzungen wie auch Durchstoßversetzungen, die die Verspannungen in der GaN Schicht reduzieren. Man erreicht bei Epitaxie von GaN auf SiC Werte für die Versetzungsichte in der gleichen Größenordnung wie bei Wachstum auf Al_2O_3 .

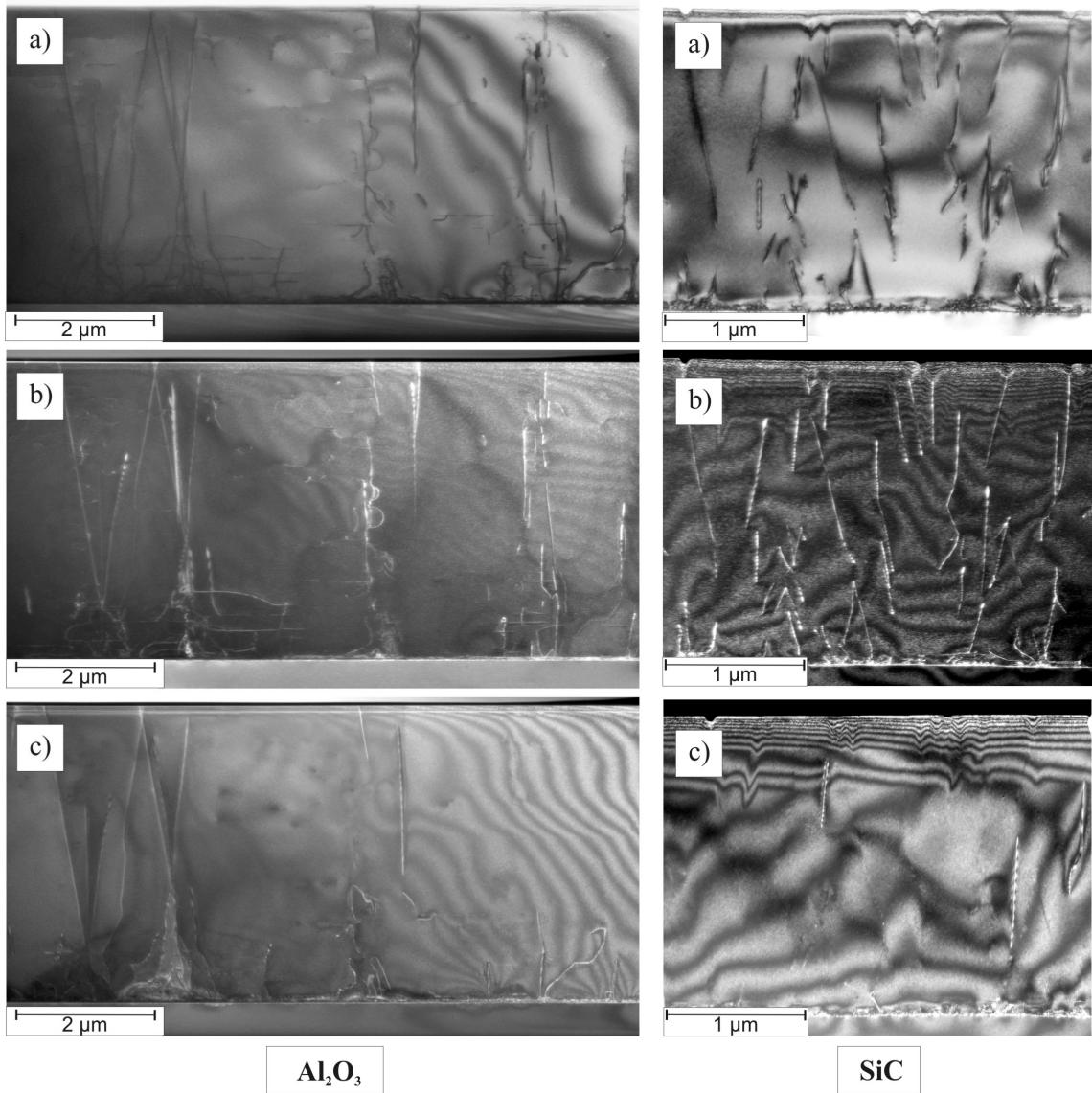


Abbildung 5.2: TEM-Aufnahmen von Proben mit typischer Versetzungsstruktur, links für Saphir, rechts für Siliziumkarbid. (Zu beachten ist die unterschiedliche Dicke der epitaxiierten Schichten.) Bilder a) sind Hellfeldaufnahmen und zeigen alle in der Probe vorhandenen Versetzungen, b) und c) sind WBDF Aufnahmen und zeigen jeweils die Versetzungen mit Stufenkomponente bzw. Schraubenkomponente. Deutlich zu erkennen ist der viel höhere Anteil an Versetzungen mit Schraubenkomponente in Saphir und der prinzipiell unterschiedliche Verlauf der Versetzungen für Wachstum auf den beiden Materialien, besonders in der Nähe der Grenzfläche zum Substrat.

Substrat	SiC	Al ₂ O ₃	2D-Al ₂ O ₃
Stufenversetzungen [%]	78	44	62
Schraubenversetzungen [%]	3	4	4
gemischte Versetzungen [%]	19	52	34
Versetzungsdichte [cm ⁻²]	$7 \pm 0,35 \cdot 10^8$	$1 \pm 0,05 \cdot 10^9$	$3 \pm 0,3 \cdot 10^9$

Tabelle 5.1: Verhältnis der unterschiedlichen Versetzungstypen bei nach Standardprozessen durchgeführter Heteroepitaxie auf Al₂O₃ und SiC. Die Werte entsprechen Mittelwerten von allen relevanten Proben die während der Zeit dieser Arbeit vermessen wurden. Klar zu sehen ist die Tendenz zu überwiegend reinen Stufenversetzungen in SiC und zu einem in etwa ausgewogenen Verhältnis von reinen Stufen- und gemischten Versetzungen in Al₂O₃. Dem gegenübergestellt sind die Werte für Wachstum auf Al₂O₃ bei Verwendung eines 2D Anwachsprozesses an die Nukleationsschicht (2D-Al₂O₃), die eine deutliche Erhöhung des Anteils an reinen Stufenversetzungen im Vergleich zum Standardwachstumsprozess auf Al₂O₃ zeigen. Zusätzlich sind Werte für die Versetzungsdichte angegeben, für die beiden Standardprozesse Mittelwerte aus PV Messungen der während der Arbeit vermessenen Proben, für 2D-Al₂O₃ eine Abschätzung aus Querschnittsbildern.

TEM Analysen zu Wachstum auf Saphir und Siliziumkarbid

In Abb. 5.2 sind Hellfeld- und WBDF-Aufnahmen von heteroepitaktisch gewachsenem GaN auf Al₂O₃ und SiC zu sehen. Es handelt sich um typische Beispiele für Epitaxie auf den beiden Substraten. In Tabelle 5.1 sind die Verhältnisse der unterschiedlichen Versetzungstypen für Proben, die mit Standard-Wachstumsparametern gewachsen wurden, dargestellt. Die in der Tabelle angegebenen Werte sind Mittelwerte über alle während der Promotion vermessenen, relevanten Proben mit typischen Wachstumsparametern auf dem jeweiligen Substrat. Ähnliche Werte für die Versetzungsverhältnisse sind aus der Literatur bekannt (z. B. [Bea01]) und typisch für Epitaxie auf dem jeweiligen Material. Als wesentliche Unterschiede für die Versetzungsstruktur bei Epitaxie auf den beiden Substraten ergeben sich folgende Punkte:

- Der Anteil an Versetzungen mit Schraubenanteil ist bei Wachstum auf Al₂O₃ deutlich höher als bei Wachstum auf SiC.
- Versetzungen bei Proben auf SiC verlaufen geradliniger zur Oberfläche als bei Proben auf Al₂O₃.
- In Proben auf SiC Substrat sind keine horizontalen Versetzungslinien in einer Entfernung von mehr als ca. 100 nm von der Grenzfläche zu erkennen.

Im Folgenden werden mögliche Erklärungen zu diesen Unterschieden gegeben: Die wesentliche Differenz zwischen Wachstum auf Al_2O_3 und SiC liegt in der Anwachsphase: Wie weiter oben beschrieben wird bei Epitaxie auf Al_2O_3 zunächst eine (Al)GaN Nukleationsschicht epitaxiert: Das Wachstum dieser Nukleationsschicht beginnt, aufgrund der hohen Gitterfehlانpassung zwischen (Al)GaN und Al_2O_3 dreidimensional, d.h es entstehen (Al)GaN Inseln. In den gewachsenen Inseln entstehen an der Grenzfläche zum Substrat Anpassungsversetzungen, die parallel zur Grenzfläche verlaufen. Durch diese Anpassungsversetzungen wird ein Großteil der durch die Gitterfehlانpassung erzeugten Verspannung bereits an der Grenzfläche Epitaxieschicht-Substrat abgebaut [Kai00]. Wachsen die einzelnen Inseln während der Koaleszenzphase zusammen, wird vermutet, dass auch ein Großteil der Anpassungsversetzungen unterhalb der Inseln zusammenwachsen, ohne die Ausbreitungsrichtung zu ändern und senkrecht zur Grenzfläche weiterzulaufen; es entsteht ein Netzwerk von Anpassungsversetzungen unterhalb der Nukleationsschicht. Die (Al)GaN Nukleationsschicht dient als Wachstumsschicht für die folgende GaN Schicht, die ebenfalls dreidimensional inselförmig zu wachsen beginnt und erst nach einer gewissen Schichtdicke, die durch die Epitaxieparameter festgelegt werden kann, koalesziert und danach das Wachstum in den 2D Modus übergeht. Durchstoßversetzungen entstehen v.a. durch zwei Effekte während der Koaleszenzphasen, sowohl der Nukleationsschicht, als auch der GaN Schicht: Durch Missorientierung der einzelnen Inseln und durch Reaktion von in den Inseln auftretenden Teilversetzungen (s. Abschnitt 4.3.2). Da die einzelnen Inseln sowohl verdreht als auch verkippt zueinander aufwachsen, entsteht ein großer Anteil an Versetzungen mit Schraubenanteil. Bis zum vollständigen Übergang zum 2D Lagenwachstum kann die Schichtdicke bis zu einigen μm betragen⁵, d.h. bis zu diesem Zeitpunkt können beim Zusammenwachsen der einzelnen Inseln, z.B. durch Versetzungsreaktion oder an den Rändern von an falschen Gitterplätzen epitaxierten Bereichen (Stapelfehlern), horizontal verlaufende Versetzungslinien entstehen. Ebenso können aber während des inselförmigen Wachstumsprozesses Versetzungen, wenn sie auf die seitliche Grenzfläche der Insel treffen, ihre Ausbreitungsrichtung ändern und laufen nicht von der Grenzfläche Epitaxieschicht-Substrat geradlinig bis zur Probenoberfläche sondern können mit anderen Versetzungen reagieren und sich, im besten Falle, auslöschen⁶. Der ausgedehnte dreidimensionale Wachstumschritt führt also zu einer Reduktion von Durchstoßversetzungen in der aktiven Zone der LED-Struktur und ist mittlerweile der Standardprozess für die Epitaxie auf Al_2O_3 -Substraten.

⁵Die Länge des dreidimensionalen Wachstumsschritts kann durch die Epitaxieparameter eingestellt werden.

⁶Dieser Effekt wird auch bei Versetzungsreduktion durch SiN-Zwischenschichten zur Reduktion von Versetzungen genutzt, s. Kapitel. 5.2.

Bei Epitaxie auf SiC wird oftmals eine Al(Ga)N Schicht für das Anwachsen auf das Substrat verwendet⁷. Diese wächst zunächst zweidimensional, pseudomorph verspannt auf das Substrat auf, bis die kritische Schichtdicke erreicht ist. Bei Erreichen der kritischen Schichtdicke geht das Wachstum in einen 3D Modus über, es entstehen Inseln auf der vollständig bedeckten Al(Ga)N Schicht (Stranski Krastanow Wachstum, s. Abb. 5.1) und die in der Schicht vorhandenen Verspannungen werden in Anpassungsversetzungen abgebaut. Allerdings ist durch die vollständige Bedeckung der Substratoberfläche ein Gleiten der Anpassungsversetzungen an die Grenzfläche zum Substrat nicht möglich. Es kann vermutet werden, dass bei Koaleszenz der Inseln viele der Anpassungsversetzungen in den Inseln sich nicht in die benachbarte Insel fortsetzen, sondern die Ausbreitungsrichtung in Wachstumsrichtung ändern⁸. Es entstehen somit Versetzungsschleifen, von horizontal verlaufenden Anpassungsversetzungen die von Durchstoßversetzungen begrenzt sind. Dies erklärt auch, dass zu einem Großteil reine Stufenversetzungen in Proben auf SiC-Substraten beobachtet werden: Die Anpassungsversetzungen und somit auch die sie begrenzenden Durchstoßversetzungen haben Stufencharakter. Dass trotzdem in den Schichten Versetzungen mit Schraubencharakter auftreten, kann mit der, im Vergleich zu Al_2O_3 -Substraten, oftmals qualitativ schlechteren Oberflächenqualität von SiC-Substraten begründet werden, die die Nukleation von Versetzungen, insbesondere von Schraubenversetzungen, bedingt [Pon95]. Eine geringe Rolle könnte auch die Missorientierung von einzelnen Inseln bei der Koaleszenz (ähnlich zu Wachstum auf Al_2O_3) spielen, es ist jedoch davon auszugehen dass die Missorientierung verglichen zu Wachstum auf Al_2O_3 viel geringer ist, da die Inseln nicht direkt auf das Fremdsubstrat, sondern auf der bereits vollständig bedeckten Oberfläche wachsen. Der gleichmässige Verlauf der Durchstoßversetzungen ohne Richtungsänderung kann mit der frühen vollständigen Koaleszenz der Inseln und dem damit verbundenen Übergang zu lagenförmigem 2D Wachstum im Standard Wachstumsprozess auf SiC-Substraten erklärt werden. Dies erklärt auch, dass nach einem Abstand von ca. 100 nm keine horizontal verlaufenden Versetzungen mehr in den gewachsenen GaN Schichten zu erkennen sind: Es entstehen ab dem Zeitpunkt des zweidimensionalen Lagenwachstums keine neuen Gitterdefekte, sondern es setzen sich nur bereits vorhandene, meist ohne Richtungsänderung, im weiteren Schichtwachstum fort.

⁷Oftmals wird diese Anwachsschicht auch Pufferschicht genannt.

⁸Begründet werden kann dies mit der viel geringeren Zahl an Anpassungsversetzungen bei Wachstum auf SiC verglichen mit Wachstum auf Al_2O_3 , verursacht durch den deutlich geringeren Wert der Gitterfehlanpassung. Dadurch ist das Zusammentreffen zweier Anpassungsversetzungen, die ineinander übergehen, bei Koaleszenz der Inseln unwahrscheinlich. Vielmehr kann man davon ausgehen, dass Anpassungsversetzungen, wenn sie mit einer nicht mit einer Anpassungsversetzung durchsetzten Insel zusammenwachsen, ihre Ausbreitungsrichtung von horizontal zu vertikal ändern.

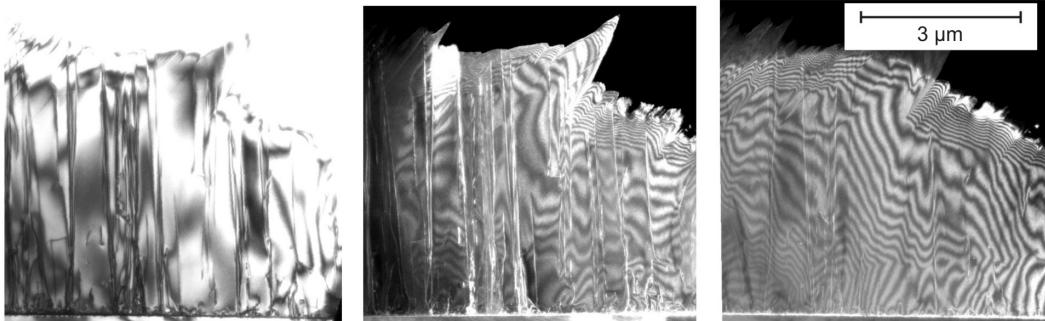


Abbildung 5.3: WBDF-Auswertung einer im 2D Modus auf Al_2O_3 gewachsenen GaN Schicht (links: Hellfeldaufnahme, alle Versetzungen, Mitte: WBDF-Aufnahme Versetzungen mit Stufenanteil, rechts: WBDF-Aufnahme Versetzungen mit Schraubenanteil. Die Zahl der reinen Stufenversetzungen und die Gesamtanzahl der Versetzungen ist im Vergleich zu gewöhnlichen, im 3D Modus gewachsenen GaN Schichten erhöht, die Ausbreitungsrichtung der Versetzungen ist geradliniger von der Grenzfläche zum Substrat zur Oberfläche.

Als Vergleich zu den ohne 3D Wachstumsschritt gewachsenen Schichten auf SiC wurde ein Schichtsystem auf Al_2O_3 -Substrat untersucht, bei der ebenso durch die Wachstumsbedingungen der Hochtemperatur GaN Schicht ein schneller Übergang zum 2D Lagenwachstum gefördert wurde. Welche Auswirkungen das Fehlen des ausgeprägten 3D Wachstumsschritts auf Verlauf und Zahl der Versetzungen bei Epitaxie auf Al_2O_3 -Substraten hat, wird deutlich, wenn man die TEM Aufnahmen in Abb. 5.3 betrachtet. Deutlich zu erkennen sind, wenn man die Bilder mit den Bildern der auf Saphir gewachsenen Schichten in Abb. 5.2 vergleicht, drei Merkmale:

- Die Versetzungsichte ist insgesamt deutlich erhöht.
- Der Anteil an reinen Stufenversetzungen ist erhöht (s. Tabelle 5.1).
- Es findet kein Abknicken von Versetzungen bzw. keine Reduktion von Versetzungen durch Reaktion von Versetzungen in nicht unmittelbarer Umgebung der Grenzfläche zum Substrat statt.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass der ausgeprägte 3D Wachstumsschritt nach Epitaxie der Nukleationsschicht auf Al_2O_3 zu einer deutlichen Versetzungsreduktion, insbesondere der Stufenversetzungen, führt. Inwieweit auch bei Wachstum auf SiC-Substraten die Durchführung eines 3D Wachstumsschritts die Versetzungsichte reduzieren könnte, konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht geklärt werden, da derart gewachsenen Schichten nicht zur Verfügung standen. Allerdings

sprechen zwei Gründe gegen die Anwendung eines ausgedehnten 3D Wachstumsschritts auf SiC:

- GaN Schichten auf SiC-Substraten tendieren ab einer Schichtdicke von 3 - 4 μm zur Rissbildung (s. Abschnitt 3.3). Das Bestreben geht dadurch bei Epitaxie auf SiC zu geringen Gesamtdicken der Heterostrukturen, was einem ausgedehnten 3D Wachstumsschritt widerspricht.
- Die Versetzungsichte bei Wachstum auf SiC ist bei 2D Wachstum verglichen mit 2D Wachstum auf Al_2O_3 deutlich (Faktor 3 für die betrachtete 2D- Al_2O_3 -Schicht, s. Tabelle 5.1) geringer. Versetzungsreduktion durch einen 3D Wachstumsschritt geschieht v.a. durch Reaktion bzw. Auslöschung von Versetzungen mit passenden Burgersvektoren. Die Wahrscheinlichkeit, dass zwei Versetzungen mit passendem Burgersvektor bei Wachstum auf SiC bei der Koaleszenz der Inseln aufeinandertreffen ist durch die geringere Zahl der Versetzungen deutlich reduziert, eine Versetzungsreduktion durch einen 3D Wachstumsschritt in dem Ausmaß wie bei Wachstum auf Al_2O_3 ist nicht zu erwarten.

Um eine detailliertere Studie über die Entstehung der Versetzungen bei Epitaxie auf Al_2O_3 und SiC erstellen zu können, müssten Proben untersucht werden deren Wachstum an unterschiedlichen Stellen des Schichtfolge unterbrochen wurde (z.B. direkt nach der Nukleationsschicht, nach kurzzeitigem GaN Wachstum auf der Nukleationsschicht). Diese Proben standen im Rahmen dieser Arbeit nicht zur Verfügung.

Die Qualität der Heterostrukturen, insbesondere die Versetzungsichte im Bereich der aktiven Zone, ist für Wachstum auf beiden Substratmaterialien, bei Verwendung eines 3D Wachstumsschritts auf Al_2O_3 , insgesamt vergleichbar. Welches Substratmaterial verwendet wird, hängt von den Anforderungen (thermisches Verhalten, ist eine rückseitige Kontaktierung gewünscht,...) und nicht zuletzt vom Substratpreis ab. Da Al_2O_3 -Substrate günstiger als SiC-Substrate erhältlich sind (ca. Faktor 10) ist Saphir bisher das präferierte Substratmaterial der meisten Hersteller von Gruppe-III-basierten LED Heterostrukturen.

5.1.2 Versetzungen bei Homoepitaxie auf GaN-Substraten

Obwohl es auch mit den hohen Versetzungsichten, wie sie auf Al_2O_3 und SiC zu erreichen sind, gelingt, Schichtsysteme für optoelektronische Bauteile herzustellen, die in vielen Bereichen wettbewerbsfähig sind, ist eine Verringerung der Versetzungsichte wünschenswert, um unter anderem die Bauteil-Degradation zu verlangsamen [Tom01] und die Effizienz zu erhöhen. Für einige Anwendungen,

Name	Hersteller	Typ	Versetzungsdichte [cm ⁻²]
A1	A	reines Substrat	-
A2	A	Substrat + epitax. GaN	8,3 ($\pm 0,4$) · 10 ⁹
B	B	Substrat + epitax. GaN	2,5($\pm 0,3$) · 10 ⁷
C	C	Substrat + epitax. GaN	$\leq 10^6$

Tabelle 5.2: Übersicht der untersuchten GaN-Substrate: Die Namen der Hersteller waren nicht bekannt. Für die Proben A2 und B wurde die Versetzungsdichte aus PV Messungen ermittelt, für Probe C aus Querschnittspräparaten abgeschätzt.

z.B. in Schichtsystemen für blaue und grüne Laserdioden, ist eine Versetzungsdichte in der Größenordnung 10⁹ cm⁻² nicht ausreichend, es müssen bei heteroepitaktischem Wachstum zusätzliche versetzungsreduzierende Wachstumsschritte durchgeführt werden, die die Versetzungsdichte auf eine Größenordnung von bis zu 10⁶ cm⁻² reduzieren, aber einige Nachteile mit sich bringen, die im folgenden Kapitel erklärt werden (s. Abschnitt 5.2 und Tabelle 5.4). Die theoretisch beste und einfachste Methode um eine geringe Versetzungsdichte⁹ zu erreichen ist Homoepitaxie auf (möglichst defektfreien) GaN-Substraten. In diesem Kapitel werden unterschiedliche GaN-Substrate (verschiedene Hersteller, unterschiedlicher Produktionszeitpunkt) untersucht, und es wird analysiert, wie sich die Versetzungssstruktur und -dichte bei homoepitaktischem Wachstum auf den verschiedenen GaN-Substraten, auch im Vergleich zu heteroepitaktischem Wachstum auf Al₂O₃ und SiC, verhält. Eine Auflistung der untersuchten Proben findet sich in Tabelle 5.2.

Herstellung von GaN-Substraten

Zur Herstellung von GaN-Substraten gibt es v.a. drei Möglichkeiten: HVPE Wachstum, Kristallwachstum aus der Schmelze bei hohem Druck und hoher Temperatur und ammonothermisches Wachstum. Bisher kommerziell genutzt wird nur die HVPE Methode.

HVPE Wachstum hat eine hohe Wachstumsrate von über 100 µm/h und ist, da die Methode etabliert ist, relativ kostengünstig. Allerdings müssen vor dem Wachstum von dickem HVPE-GaN auf Fremdsubstraten versetzungsreduzierende Maßnahmen, wie die in Anhang A beschriebenen, verwendet werden, um die Versetzungsdichte in den gewachsenen Kristallen zu reduzieren [Pas04]. Kristallwachstum aus der Schmelze ist nur bei sehr hohen Drücken (> 15 kbar) und

⁹im Optimalfall eine versetzungsfreie Probe

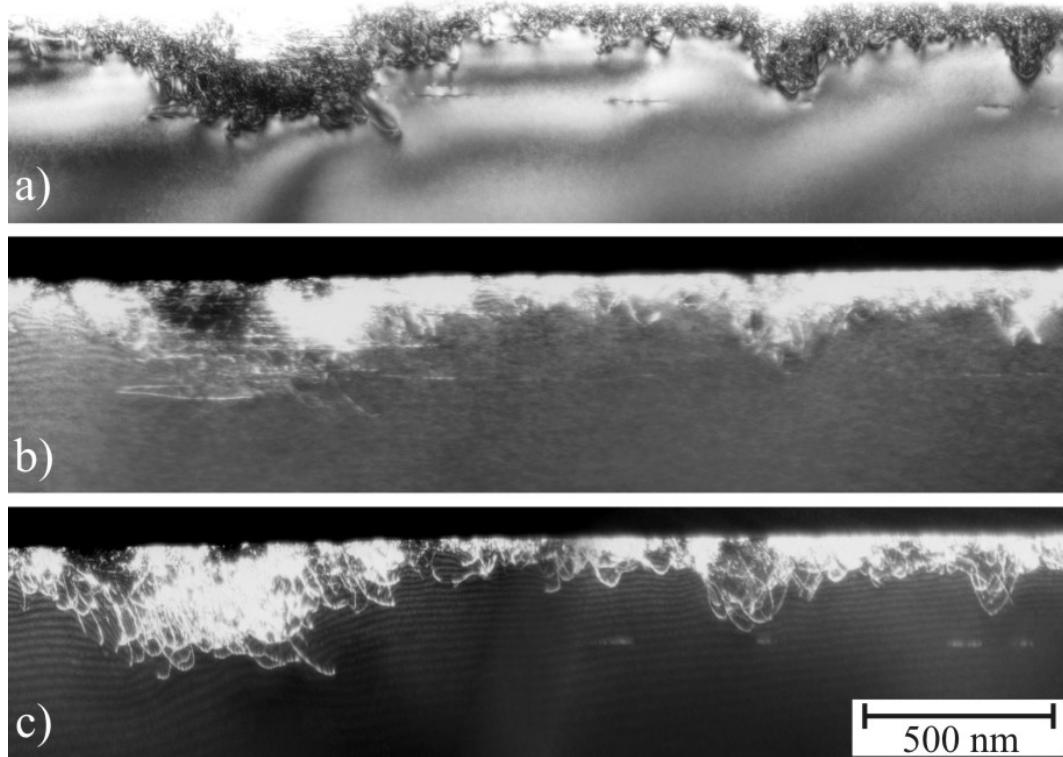


Abbildung 5.4: Versetzungsanalyse an einem GaN Substrat mit defektreicher Oberfläche (Probe A1):

- a) Hellfeld, alle Versetzungen
- b) WBDF, Stufen- und gemischte Versetzungen
- c) WBDF, Schrauben- und gemischte Versetzungen.

hohen Temperaturen ($> 1500^{\circ}\text{C}$) [Com10] möglich und wurde unter Laborbedingungen nachgewiesen. Ob mit dieser Methode eine großvolumige Fertigung möglich ist, ist neben der für Massenfertigung schwer zu kontrollierenden Wachstumsbedingungen, auch wegen der sehr geringen Wachstumsrate, insbesondere in c-Richtung [Rut03], zweifelhaft. Ammonothermisches Wachstum ist eine neuere Methode zur Herstellung von GaN-Substraten die u.a. von R. Dwilinski et al. Mitte der 1990er entwickelt wurde [Dwi02]. Diese Methode ist allerdings noch in der Entwicklungsphase, wenngleich bisher erzeugte GaN-Substrate mit einer geringen Versetzungsdichte überzeugen und die Möglichkeit zur großvolumigen Herstellung von GaN-Substraten in Zukunft nicht ausgeschlossen ist [Pas04]. In Tabelle 5.3 sind die Vor- und Nachteile der verschiedenen Methoden sowie der Wert der im Moment erreichbaren Versetzungsdichte dargestellt.

Da zum Zeitpunkt der Analysen die Homoepitaxie von GaN ein aktuellstes Forschungsthema mit hoher Geheimhaltungsstufe war, wurden Informationen zu Her-

Methode	Vorteile	Nachteile	[cm ⁻²]
HVPE	<ul style="list-style-type: none"> - hohe Wachstumsrate - HVPE Prozess etabliert - Prozess kostengünstig 	<ul style="list-style-type: none"> - extra Schritte zur Defektreduktion nötig 	$\sim 10^5$
Wachstum aus Schmelze	<ul style="list-style-type: none"> - beste strukturelle Qualität 	<ul style="list-style-type: none"> - benötigt hohe Drücke und Temperaturen - Kristallgröße limitiert - kommerzielle Anwendung fraglich 	$\sim 10^2$
Ammonio-thermisch	<ul style="list-style-type: none"> - geringe Versetzungsdichte - Perspektivmethode 	<ul style="list-style-type: none"> - geringe Wachstumsrate - Technologie in F&E Phase 	$\sim 10^3$

Tabelle 5.3: Vor- und Nachteile verschiedener Methoden zur Herstellung von GaN-Substraten und in der letzten Spalte die typischerweise erreichbare Versetzungsdichte [Pas04] [Dwi02] [Rut03].

steller und Herstellungsmethoden der Substrate von den Projektpartnern nicht zur Verfügung gestellt. Deswegen kann in den weiteren Analysen nicht im Speziellen auf Einflüsse des Herstellungsprozesses auf die jeweiligen Substratqualitäten eingegangen werden.

TEM Analysen an GaN-Substraten und homoepitaktischen Schichten

In Abb. 5.4 sind eine TEM-Querschnitts-Hellfeldaufnahme und WBDF-Aufnahmen der Oberfläche der Probe A1 gezeigt. Es handelt sich dabei um ein reines Substrat ohne epitaxierte Schichten. Man erkennt über den gesamten Bereich der Substratoberfläche eine hohe Zahl von Defekten. Den Defekten lässt sich, wie in den WBDF-Aufnahmen zu sehen ist, kein bevorzugter Burgers-Vektor zuordnen. Außerdem konnten weder auf den Bildern in Abb. 5.4, noch bei allen weiteren Untersuchungen an diesem Substrat, Defekte im Inneren des Substrats, in einer Entfernung $> 1\mu\text{m}$ von der Oberfläche, nachgewiesen werden. Daraus lässt sich folgern, dass die Defekte nicht während des Wachstums der GaN-Kristalle, sondern erst in einem der letzten Schritte der Produktion der Substrat-Wafer entstehen. Die wahrscheinlichste Erklärung ist, dass während des letzten Schritts der Waferproduktion, dem Polieren der Oberfläche¹⁰, falsche Parameter gewählt

¹⁰Arbeitsschritte bei der Herstellung von GaN-Substraten: Wachstum der Kristalle (nach unterschiedlichen Methoden) - Sägen der Kristalle in ca. 500 μm dicke Wafer - Schleifen und Polieren der Oberflächen

wurden und dabei entweder neue Defekte erzeugt, bzw. durch vorangegangene Schritte, z.B. dem Schneiden dickerer GaN Kristalle in ca. $500 \mu\text{m}$ Wafer, an der Oberfläche generierte Defekte nicht ausreichend entfernt wurden. In Abb. 5.5 sind TEM-Querschnittsaufnahmen (Hellfeld, WBDF) von Probe A2 zu sehen. Bei dieser Probe wurde auf einem zu A1 ähnlich defektreichen Substrat des gleichen Herstellers eine ca. $1,5 \mu\text{m}$ dicke GaN Schicht epitaxiert. Man erkennt, dass an den defektreichen Bereichen der Substratoberfläche beim Beginn des GaN-Wachstums Versetzungen entstehen, die sich in der gesamten epitaxierten Schicht fortsetzen. Aus WBDF Untersuchungen kann gezeigt werden, dass der größte Teil dieser Versetzungen gemischten Typs ist, also der Burgersvektor sowohl eine Schrauben- wie eine Stufenkomponente besitzt. Um die Versetzungsdichte zu bestimmen, wurden PV-Proben präpariert und im TEM vermessen (s. Abb. 5.5 e)). Es ergab sich eine durchschnittliche Versetzungsdichte von $8,3 (\pm 0,4) \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$. Dieser Wert stellt keine Verbesserung zu den in Kapitel 5.1.1 gezeigten Werten für Heteroepitaxie auf Al_2O_3 oder SiC dar, er ist im Gegenteil höher als alle im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Werte für heteroepitaktisches Wachstum.

In Abb. 5.6 (links) ist eine Querschnittsaufnahme einer Probe mit einem GaN-Substrat von Hersteller B und darauf epitaxierter LED-Schichtstruktur zu sehen. Die Grenzfläche ist als waagrechter, dunkler Kontrast ungefähr in einer Entfernung von $4,5 \mu\text{m}$ zur Probenoberfläche zu erkennen. Im Gegensatz zu den Proben A1 und A2 ist keine hohe Zahl von Defekten an der Oberfläche des Substrats bzw. an der Grenzfläche Substrat - epitaxierter Schicht sichtbar. Man kann jedoch einige Versetzungen erkennen, die über den gesamten, im Querschnittspräparat beobachtbaren Bereich (Substrat und Schichtsystem) verlaufen. Es entstehen keine neuen Versetzungen an der Grenzfläche, sondern es setzen sich nur die im Substrat schon vorhandenen im Schichtsystem fort, d.h die Versetzungsdichte im Substrat und im Schichtsystem ist identisch und wurde mit Hilfe von PV-Aufnahmen zu $2,5 (\pm 0,3) \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$ bestimmt (s. Abb. 5.6 (rechts)). Im Unterschied zu den Proben von Substrathersteller A liegt die Ursache für die für Homoepitaxie hohe Versetzungsdichte nicht an einer schlechten Kristallqualität der Substratoberfläche, sondern an einer hohen Zahl von Versetzungen im Substratkristall und damit direkt am Herstellungsprozess der GaN Kristalle. Nichtsdestotrotz liegt der Wert der Versetzungsdichte um ca. 2 Größenordnungen unter den mittels Heteroepitaxie ohne explizite versetzungsreduzierende Maßnahmen (s. Abschnitt 5.2) erreichbaren Werten. Ob ein Einsatz dieser Art von Substraten sinnvoll ist, hängt von der für die jeweilige Anwendung benötigten Versetzungsdichte und letztlich natürlich vom Preisvergleich mit Herstellern defektfreerer Substrate ab.

Im Gegensatz dazu wurden auch homoepitaktische Proben (C) mit, soweit durch TEM-Messungen an Querschnittspräparaten nachweisbar, defektfreien

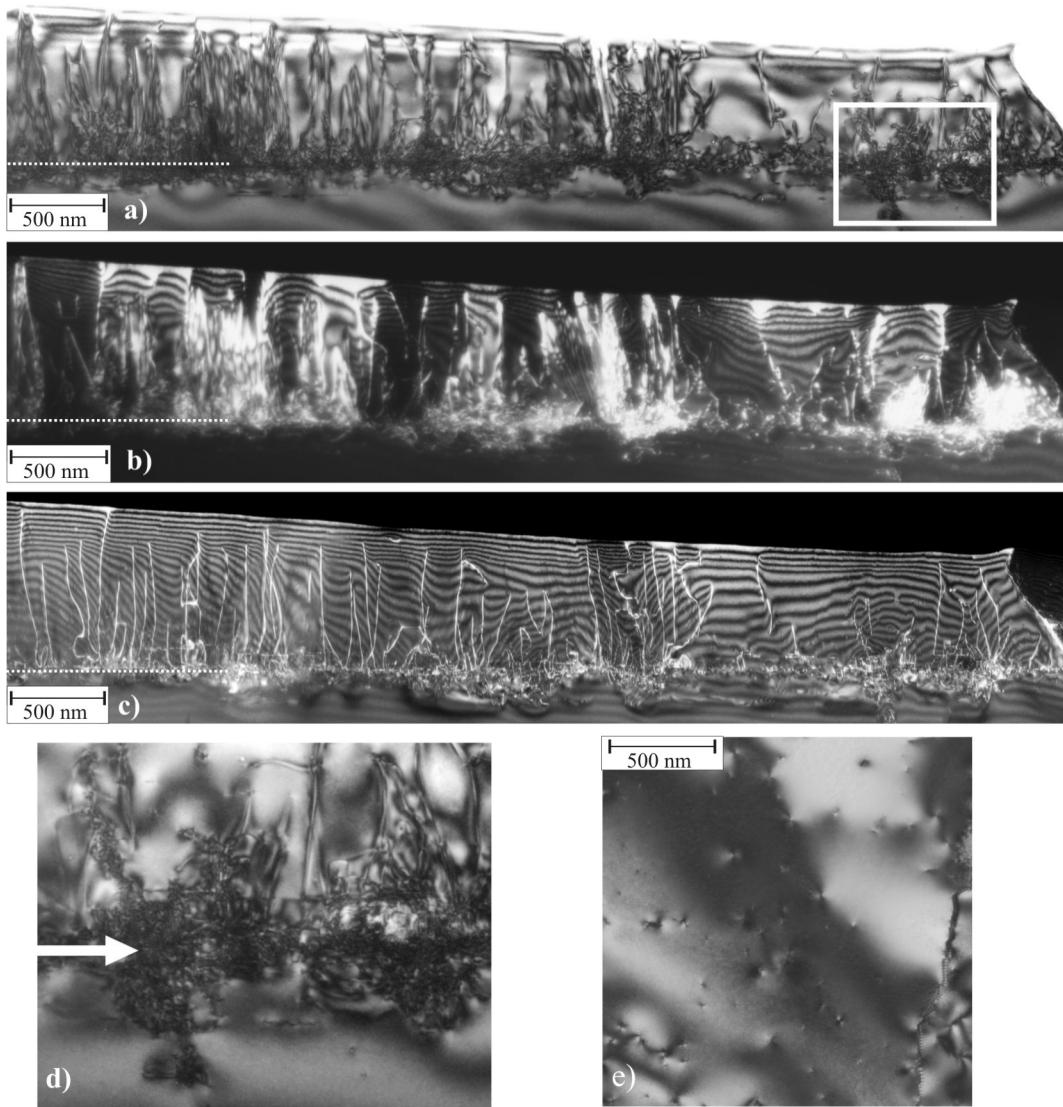


Abbildung 5.5: Versetzungsanalyse an einer homoepitaktisch gewachsenen GaN Schicht auf defektreichem Substrat (Probe A2). Die Grenzfläche zwischen Substrat und epitaxierter Schicht ist mit Punkten angedeutet:

- Hellfeld, alle Versetzungen
- WBDF, Stufen- und gemischte Versetzungen
- WBDF, Schrauben- und gemischte Versetzungen
- Vergrösserung des Rechtecks in a), Grenzfläche Substrat - epitaxierte Schicht
- PV-Aufnahme mit Durchstoßpunkten der Versetzungen

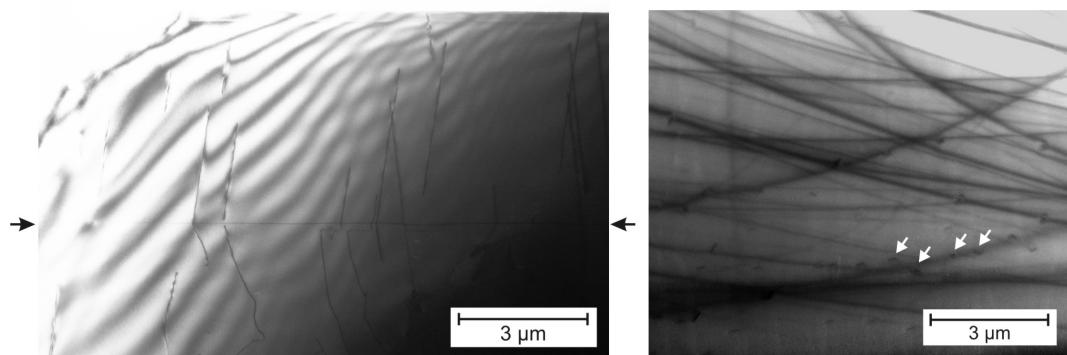


Abbildung 5.6: Probe B: $4,5 \mu\text{m}$ epitaxiertes GaN auf einem Substrat des Herstellers B:

links: Querschnittsaufnahme, die Grenzfläche zwischen Substrat und epitaxierter Schicht ist mit Pfeilen gekennzeichnet. Deutlich zu erkennen sind Versetzungen, die schon im Substrat vorhanden sind und sich im epitaxierten GaN fortsetzen.

rechts: PV-Aufnahme zur Bestimmung der Versetzungsdichte: Einige im Bild sichtbare Durchstoßpunkte von Versetzungen sind exemplarisch mit Pfeilen gekennzeichnet. Die dunklen Streifen auf der PV-Aufnahme der Probe entstehen durch Verspannungen im Präparat und sind für die Bestimmung der Versetzungsdichte nicht relevant. Über mehrere Probenstellen gemittelt ergab sich für die Versetzungsdichte der Wert $2,5(\pm 0,3) \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$.

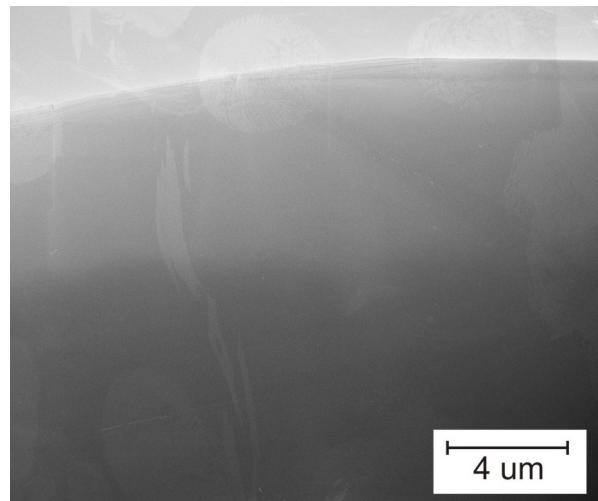


Abbildung 5.7: Homoepitaktisch gewachsenenes GaN auf einem Substrat sehr guter Qualität (Probe C): Die Grenzfläche zwischen Substrat und epitaxiertem GaN ist nicht sichtbar und es sind keine Defekte weder im Substrat noch im epitaxierten GaN zu erkennen.

GaN-Schichten untersucht. In Abb. 5.7 ist ein Bild einer homoepitaktischen GaN-Schicht gezeigt. Laut Angaben des Epitaktikers (IAF Freiburg) sollte die epitaxierte Schicht 3 μm dick sein. Eine Grenzfläche zwischen Substrat und epitaxierter Schicht ist jedoch im gesamten untersuchten Bereich nicht zu erkennen, zu sehen ist eine homogene GaN-Schicht. Ebenso sind auf dem gesamten untersuchten Bereich keine Kristalldefekte zu erkennen. Von dieser Probe stand kein PV-Präparat zur Verfügung, der Höchstwert für die Versetzungsdichte kann aber aus Querschnittspräparaten auf eine Größenordnung von etwa 10^6cm^{-2} abgeschätzt werden¹¹. Ein Wert in dieser Größenordnung entspricht auch in etwa den Angaben der meisten Hersteller zur Obergrenze der Versetzungsdichte ihrer Substrate. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Qualität der Substrate und damit der darauf epitaxierten Schichten stark vom Hersteller abhängt.

Die wichtigste Voraussetzung für homoepitaktische GaN Schichten geringer Versetzungsdichte ist die Herstellung versetzungsarmer GaN Kristalle. Während dies für die untersuchten Substrate von Hersteller A und C zutrifft, ist bei Hersteller B die Versetzungsdichte im Vergleich zu A und C deutlich erhöht. Diese Unterschiede in der Qualität der Substratkristalle ist abhängig vom Herstellungsprozess, zu dem aus oben genanntem Grund keine genaueren Analysen erfolgen können. Wie gezeigt wurde, setzen sich die im Substratmaterial vorhandenen Versetzungen in die darauf epitaxierten Schichten fort und führen zu einer Versetzungsdichte von $2,5(\pm 0,3) \cdot 10^7\text{cm}^{-2}$.

Eine zweite wichtige Voraussetzung für eine erfolgreiche Homoepitaxie ist ein Substrat mit defektfreier, glatter Oberfläche. Die Oberfläche von GaN-Substraten wird im letzten Schritt der Produktion vom Hersteller poliert, um Ablagerungen, Rauigkeiten und Bereiche mit kristallinen Störstellen, die während des Schneidens und Schleifens der Substrate an der Oberfläche entstehen, zu entfernen. Das Polieren kann mechanisch und/oder chemisch erfolgen. Die optimale Durchführung dieses Prozessschritts ist entscheidend für das Wachstum einer möglichst defektfreien, homoepitaktischen GaN-Schicht. Ist die Substratoberfläche von minderer Qualität, wie bei den untersuchten Substraten von Hersteller A, ist die darauf epitaxierte GaN Schicht sehr defektreich und es ergibt sich hinsichtlich der Versetzungsdichte keine Verbesserung zu heteroepitaktischem Wachstum.

Dass für die Versetzungsdichte Werte von $\leq 10^6\text{cm}^{-2}$ erreicht werden können, konnte anhand des Substratmaterials von Hersteller C gezeigt werden. In diesem Fall waren sowohl die Kristallqualität innerhalb des Substrats als auch die Oberflächenqualität sehr gut, in darauf epitaxierten GaN Schichten konnten in TEM Querschnittsaufnahmen keine Versetzungen nachgewiesen werden.

Für welchen Hersteller man sich für eine bestimmte Anwendung entscheidet,

¹¹Diesem Wert liegt die Annahme zugrunde, dass sich im gesamten untersuchten Bereich der Probe eine Versetzung befindet.

hängt neben der Qualität allerdings auch von der Verfügbarkeit und vom Preis des jeweiligen Substratmaterials ab. Man erhält auch bei Substraten von Hersteller B eine deutliche Verbesserung in der Versetzungsdichte im Vergleich zu heteroepitaktisch gewachsenen Schichten. Ob sich der Einsatz eines Substratmaterials dieser Qualität lohnt, muss deshalb von Fall zu Fall entschieden werden.

5.2 Versetzungsreduktion durch eine SiN - Zwischenschicht

Bei heteroepitaktisch auf SiC und Al₂O₃ gewachsenen GaN Schichten können ohne explizite versetzungsreduzierende Maßnahmen bestenfalls Versetzungsdichten im Bereich von niedrigem 10⁹cm⁻² erreicht werden. Um bei heteroepitaktischem Wachstum Versetzungsdichten zu erreichen, die im Bereich von bis zu zwei Größenordnungen unter diesem Wert liegen, können verschiedene Maßnahmen, wie die in Tabelle 5.4 skizzierten und in Anhang A ausführlich erklärten ELO¹²-, FACELO¹³-, PENDEO oder PSS¹⁴-Prozesse angewendet werden [Bea01], [Hir00], [Ish00]. In Tabelle 5.4 sind auch die mit den einzelnen Methoden erzielbaren Versetzungsdichten angegeben.

Jedoch bringt jeder der beschriebenen Prozesse Nachteile mit sich, die sich negativ auf das weitere Kristallwachstum auswirken:

- Die verbleibenden Versetzungen verteilen sich nicht gleichmäßig über die gesamte Schicht, sondern es wechseln sich versetzungsreduzierte Bereiche mit Bereichen unverändert hoher Versetzungsdichte ab. (gültig für ELO, PENDEO, PSS, in geringerem Umfang FACELO)
- Die Methode beeinhaltet einen ex-situ Schritt, d.h. die GaN-Epitaxie muss unterbrochen werden, die Wafer müssen aus der MOVPE Anlage ausgebaut und z.B. durch einen Ätzschritt strukturiert werden. Dadurch steigt sowohl der zeitliche Aufwand als auch die Gefahr der Zerstörung der Wafer. (gültig für ELO, FACELO, PENDEO)
- Die Schichtdicke bis zum Erzielen einer ebenen, vollständig koaleszierten Oberfläche ist, verglichen zu Standardepitaxieprozessen, durch stark ausgeprägte 3D Wachstumsschritte bedeutend erhöht. Durch die erhöhte Schichtdicke kann es zu Rissbildungen in der epitaxierten GaN Schicht kommen.

¹²epitaxial lateral overgrowth

¹³facet controlled epitaxial lateral overgrowth

¹⁴patterned sapphire substrate

KAPITEL 5. VERSETZUNGSANALYSE

88

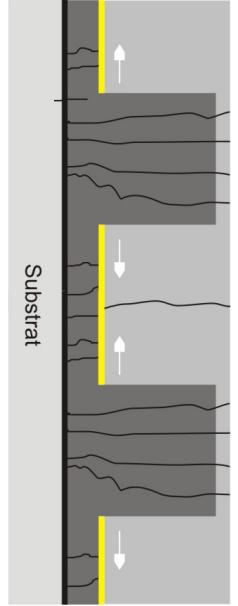
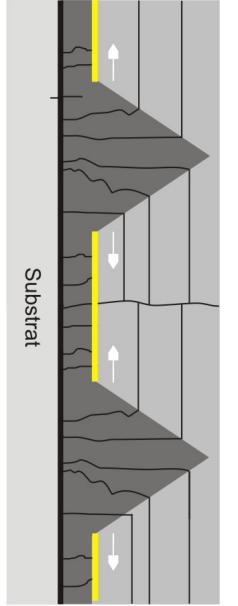
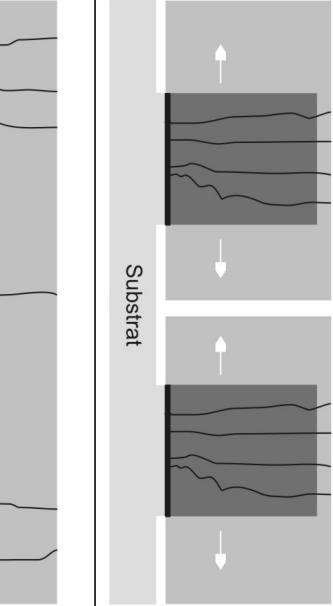
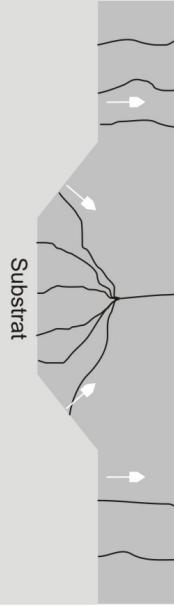
Bezeichnung	Erklärung	Schematische Darstellung des Prozesses	erreichbare Versetzungsichte
ELO 1-step-ELO	Versetzungsrückbildung erfolgt durch laterales Überwachsen eines mit amorphem SiO_2 - oder SiN maskierten Bereichs. Versetzungen unterhalb der Maskierung werden geblockt, Versetzungen in den nicht maskierten Bereichen laufen weiter.		$\sim 10^7 \text{ cm}^{-2}$
FACEL-O 2-step-ELO	Analog zu ELO. Zusätzlich wird durch die gewählten Wachstumsparameter eine weitere Versetzungsrückbildung durch Abknicken der Versetzungen in den nicht maskierten Bereichen herbeigeführt.		$\sim 10^6 \text{ cm}^{-2}$
PENDEO	Gewachsene GaN Schicht wird sternförmig bis aufs Substrat zurückgeätzt. Anschließendes Wachstum erfolgt lateral an den GaN Streifen, Versetzungen bleiben nur in den nicht geätzten GaN Streifen.		$\sim 10^7 \text{ cm}^{-2}$
PSS	Durch Wachstum von GaN auf strukturierten Substraten wird die Wachstumsrichtung und damit die Ausbreitungsrichtung von Versetzungen geändert. Versetzungsrückbildung erfolgt durch Reaktion der Versetzungen mit geänderter Ausbreitungsrichtung.		$\sim 10^7 \text{ cm}^{-2}$

Tabelle 5.4: Zusammenfassung verschiedener versetzungsrückbildender Maßnahmen bei der Heteroepitaxie von Gruppe-III-Nitriden incl. der typischerweise erreichbaren Versetzungsdichte [Ben10] [Rut03] [Shi09].

Zusätzlich ist durch die längere Epitaxiedauer der zeitliche Aufwand erhöht.
(gültig für ELO und FACELO, in geringerem Umfang PENDEO und PSS)

Eine einfache und schnelle Methode zur gleichmäßigen Reduktion von Versetzungen über die gesamte heteroepitaktisch gewachsene GaN Schicht stellt das Einbringen einer in-situ abgeschiedenen SiN-Zwischenschicht dar, durch die eine Reduktion von Versetzungen um mehr als eine Größenordnung erreicht werden kann. Dies macht das Abscheiden von in-situ SiN zu einem weltweit sehr beliebten Prozess in Forschung und Entwicklung, wie man auch anhand der zahlreichen Publikationen der letzten Jahre erkennen kann, z.B. [Tan00], [Fan04], [Pak04], [Eng06], [Hij06], [Kuw07].

Die in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden im Rahmen des BMBF¹⁵-Projekts „1000 Lumen Weiß“ an der Universität Ulm hergestellt. Es handelte sich dabei nicht um vollständig epitaxierte LED-Heterostrukturen: Die Schichtsysteme wurden bis zur n-GaN-Schicht prozessiert und die Epitaxie vor der aktiven Zone abgebrochen. Auf die Analyse der Versetzungen im Schichtsystem hat dieser nicht vollständige Wachstumsprozess keinen Einfluss, da davon ausgegangen werden kann, dass in den Proben verlaufende Versetzungen sich ebenso in der aktiven Zone und den p-GaN-Schichten fortsetzen würden. In den folgenden Abschnitten wird zunächst der Prozess des Einbringens einer SiN-Zwischenschicht und der Mechanismus der Versetzungsreduktion beschrieben. Anschließend werden anhand mehrerer Wachstumsserien die Einflüsse unterschiedlicher Wachstumsparameter und -bedingungen der SiN-Zwischenschicht mit dem TEM untersucht und die Ergebnisse mit vergleichenden, an der Universität Ulm durchgeföhrten, Messungen abgestimmt, um daraus die Parameter für die bestmögliche Versetzungsreduktion zu ermitteln.

5.2.1 Prozessbeschreibung

In Abb. 5.8 ist der prinzipielle Schichtaufbau der untersuchten Proben dargestellt, in Tabelle 5.5 findet sich eine Zusammenstellung der wichtigsten MOVPE Parameter. Als Substrat diente bei allen untersuchten Proben Saphir, auf dem eine ca. 15 nm dicke AlN Nukleationsschicht gewachsen wurde. Bei fast allen untersuchten Proben wurde darauf eine GaN Pufferschicht epitaxiert, auf der in-situ die SiN-Zwischenschicht abgeschieden wurde. Die Wachstumsparameter der Pufferschicht wurden so gewählt, dass es schnell zu einer vollständigen Koaleszenz der beim Anwachsen an die Nukleationsschicht entstehenden GaN Inseln kommt und auch für Pufferschichten geringer Dicke vor Aufbringen der SiN-Zwischenschicht

¹⁵Bundesministerium für Bildung und Forschung

Wachstumsparameter	Standard GaN	SiN Prozess	GaN Anwachsprozess (Standard-2D)
Temp [° C]	1120	variabel	1120
Druck [mbar]	100	1000	100
NH_3 [sccm]	2000	500	2000
TMGa [sccm]	21	-	5 bis 21
V/III-Verh.	1100	-	4600 bis 1100
Dauer [min]	variabel	variabel	5

Tabelle 5.5: Zusammenfassung der wichtigsten Epitaxieparameter für das Wachstum der GaN Schichten mit einer SiN-Zwischenschicht. Dauer und Temperatur der SiN-Abscheidung sind für die einzelnen untersuchten Proben im weiteren Text angegeben. Der Anwachsprozess nach der SiN-Zwischenschicht ist der standardmäßig verwendete Prozess, der, falls nicht anders angegeben, bei allen untersuchten Proben verwendet wurde.

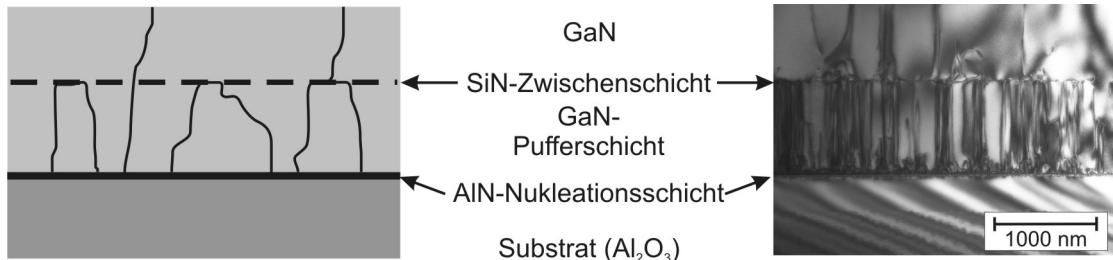


Abbildung 5.8: Prinzipieller Schichtaufbau der untersuchten Proben, schematisch (links) und anhand einer TEM-Aufnahme (rechts). In der TEM-Aufnahme ist deutlich die reduzierte Zahl der Versetzungen überhalb der SiN-Zwischenschicht zu erkennen.

eine homogene, glatte Wachstumsoberfläche vorliegt¹⁶. Nach Abscheiden der SiN-Zwischenschicht wurde das GaN Wachstum fortgesetzt. Abb. 5.8 rechts zeigt ein TEM-Bild, an dem gut die deutliche Reduktion der Versetzungen im Vergleich zwischen unter- und oberhalb der SiN Schicht zu erkennen ist.

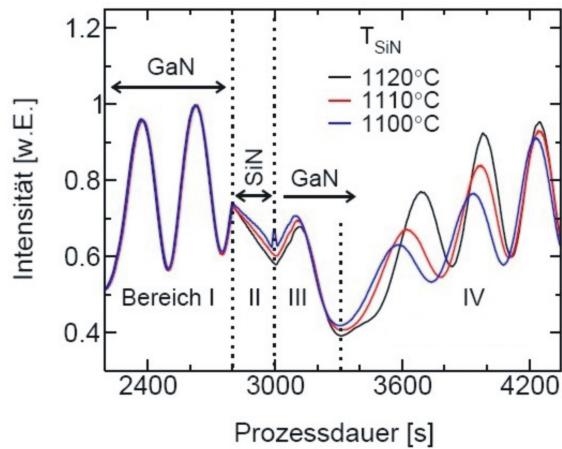


Abbildung 5.9: *In-situ Röntgenreflektometrie Messungen an Proben mit unterschiedlichen SiN-Abscheidetemperaturen für das Aufbringen der SiN-Zwischenschicht (Bereich II) nach 350 nm auf die Nukleationsschicht epitaxiertem GaN (Bereich I). Die während der SiN-Deposition auf GaN abfallende Kurve deutet auf eine Aufrauung der GaN Oberfläche hin, die durch REM-Messungen bestätigt wurde. Diese Aufrauung ist umso stärker, je höher die SiN Depositionstemperatur ist. In Bereich III erkennt man nach Wiederaufnahme des GaN Wachstums durch die Ausbildung von GaN Mikroinseln ein weiter abfallendes Signal. In Bereich IV koaleszieren die GaN Inseln zu einer geschlossenen Fläche, die beim ersten Maximalwert erreicht ist. Anschließend setzt sich das Wachstum schichtweise fort, erkennbar durch die typischen Oszillationen. Die Messungen wurden durchgeführt von J. Hertkorn, Universität Ulm [Her08/1].*

Wachstum

Bei der Abscheidung von SiN durch MOVPE dient Silan (SiH_4) als Silizium- und Ammoniak (NH_3) als Stickstoffquelle. Verschiedene Wachstumsparameter bei der Herstellung der versetzungsreduzierten Schichten wurden im Rahmen der in dieser Arbeit untersuchten Strukturen verändert, aber grundsätzlich so gewählt, dass es zu keiner vollständigen Bedeckung der Oberfläche mit SiN kommt¹⁷. Eine

¹⁶Durch dieses zweidimensionale Wachstum der Pufferschicht im Anschluss an die Nukleationsschicht kommt es allerdings zunächst zu einer Erhöhung der Zahl an reinen Stufenversetzungen und damit auch insgesamt zu einer Erhöhung der Gesamtversetzungsdichte (s. Abschnitt 5.1.1).

¹⁷Man spricht deshalb nicht von einer SiN-Schichtdicke sondern von der Höhe des SiN Bedeckungsgrades.

unvollständige Bedeckung ist zwingend notwendig, da SiN als anti-surfactant¹⁸ wirkt und eine vollständige Bedeckung des Wafers ein weiteres einkristallines GaN Wachstum praktisch verbieten würde. Bei der Abscheidung des SiN an der Oberfläche handelt es sich um einen stochastischen Prozess; Bereiche die von SiN bedeckt sind wechseln sich mit unbedeckten Bereichen ab. Es entsteht eine teilweise Maskierung der Oberfläche, ähnlich wie in ELO oder FACELO Prozessen, allerdings nicht auf μm - sondern auf nm-Größenskala.

Betrachtet man das In-situ Reflektometrie Signal eines Wachstumsprozesses mit SiN-Zwischenschicht, exemplarisch für dreiminütige SiN-Deposition nach 350 nm epitaxiertem GaN (s. Abb. 5.9), erkennt man während des SiN-Prozesses ein Abfallen der Kurve. Dieses Abfallen entspricht einer Aufrauung der GaN-Oberfläche im Nanometerbereich (Nano-Inseln), die durch REM- und AFM-Messungen bestätigt werden konnte¹⁹ (REM Aufnahme s. Abb 5.10, links). Nach der Wachs-

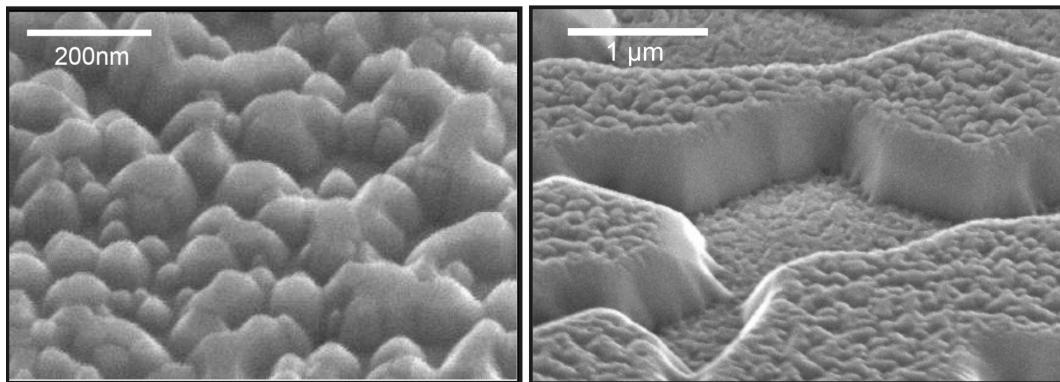


Abbildung 5.10: REM Aufnahmen, links der aufgerauten Oberfläche nach Deposition von SiN auf GaN (Nano-Inseln), rechts der Probenoberfläche nach kurzzeitigem GaN Wachstum nach der SiN Schicht mit gewachsenen GaN Bereichen und freien mit SiN bedeckten Bereichen (Makro-Inseln). Die Bilder wurden von Joachim Hertkorn, Universität Ulm, aufgenommen [Her08/1].

tumsunterbrechung und dem Aufbringen der SiN-Schicht wird der GaN Epitaxieprozess wieder aufgenommen. Beim Überwachsen der SiN-Maske durch GaN entstehen in unmaskierten Bereichen zunächst GaN-Mikro-Inseln²⁰ (s. Abb 5.10,

¹⁸sinngemäße Übersetzung ins deutsche: nicht benetzend

¹⁹Die Aufrauung skaliert mit der SiN Depositionstemperatur: Je höher die SiN Depositionstemperatur umso stärker die Aufrauung der Oberfläche nach SiN Abscheidung. Aus AFM Messungen erhält man für Proben dieser Art in einem Scanquadrat von $1\mu\text{m}^2$ eine maximale Höhenabweichung von typischerweise 20-30 nm [Her08/1].

²⁰Die hier gezeigte REM Aufnahme wurde an einer Struktur aufgenommen, an der nach Ausbildung der GaN Makroinseln ein weiterer SiN Depositionsschritt durchgeführt wurde. Deshalb erkennt man die aufgerauten Oberfläche durch die SiN Maskierung auch an der Oberseite der

rechts), ehe es durch das von den Inseln ausgehende laterale Überwachsen der SiN-Maske wieder zu einer geschlossenen Oberfläche kommt. Im Reflektometrie Signal erkennt man das Entstehen der GaN Mikro Inseln durch ein weiteres Abfallen des Signals (das kurzzeitige Ansteigen des Signals in Abb. 5.9, entsteht durch das teilweise Einebnen der Nano-Inseln). Beim Einsetzen des lateralen Wachstums steigt das Signal wieder an, bis eine geschlossene Oberfläche erreicht ist. Ab diesem Zeitpunkt erfolgt das Wachstum zweidimensional schichtweise, wie durch die regelmäßigen Oszillationen in den Reflektometrie Messungen zu erkennen ist.

Mechanismus der Versetzungsreduktion

Betrachtet man die TEM-Aufnahme in Abb. 5.11 oben, so scheint es, dass einige Versetzungen miteinander reagieren und sich so gegenseitig auslöschen (markiert mit Kreisen), andere einzeln an der SiN-Zwischenschicht enden (markiert mit Pfeilen). Es scheint also, als wäre die Reduktion der Versetzungen, ähnlich zum FACELO Prozess (wenngleich auf anderer Größenskala), ein Zusammenspiel zwischen an der Maske geblockten Versetzungen und abknickenden Versetzungen, die sich bei passenden Burgers-Vektoren gegenseitig annihilieren können.

Um einen anderen Blick auf den Verlauf der Versetzungen in der Umgebung der SiN-Zwischenschicht zu bekommen, wurde die Probe im TEM, wie in Abb. 5.11 angegeben, um ca. 40° aus der $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ Zonenachsenorientierung verkippt (s. Abb. 5.11 unten). Man erhält damit eine perspektivische Abbildung des Verlaufs der Versetzungen im Bereich der SiN-Schicht, im Gegensatz zur Zonenachsenorientierung, bei der die Probe parallel zur SiN-Schicht durchstrahlt wird. Es ist deutlich zu erkennen, dass keine Versetzungen an der Grenzfläche annihiliert werden, sondern vielmehr, dass um die SiN-Schicht ein komplexes Netzwerk von Versetzungen entsteht. Die Versetzungen reagieren in Höhe und überhalb der SiN-Zwischenschicht miteinander, bei passenden Burgersvektoren können sich zwei oder mehrere Versetzungen gegenseitig annihilieren, es können jedoch bei diesen Versetzungsreaktionen auch neue Versetzungen entstehen die sich überhalb der SiN-Schicht weiter ausbreiten (s. z.B. Kreis in Abb. 5.11 unten).

Eine Erklärung für das Entstehen des Versetzungsnetzwerks in direkter Umgebung der SiN-Zwischenschicht und der daraus resultierenden Defektreduktion ist in Abb. 5.13 beschrieben [Hij06]. GaN wächst zunächst an den nicht mit SiN bedeckten Stellen der Oberfläche (Bild 1, Abb. 5.13). Es entstehen GaN-Mikro-Inseln, deren vertikale Ausdehnung von den gewählten Wachstumsmodi und Epitaxie Parametern abhängt (s. Abschnitt 5.2.3). Nach und nach werden die maskierten Bereiche lateral von den GaN-Inseln überwachsen. Da SiN kristal-

GaN Inseln.

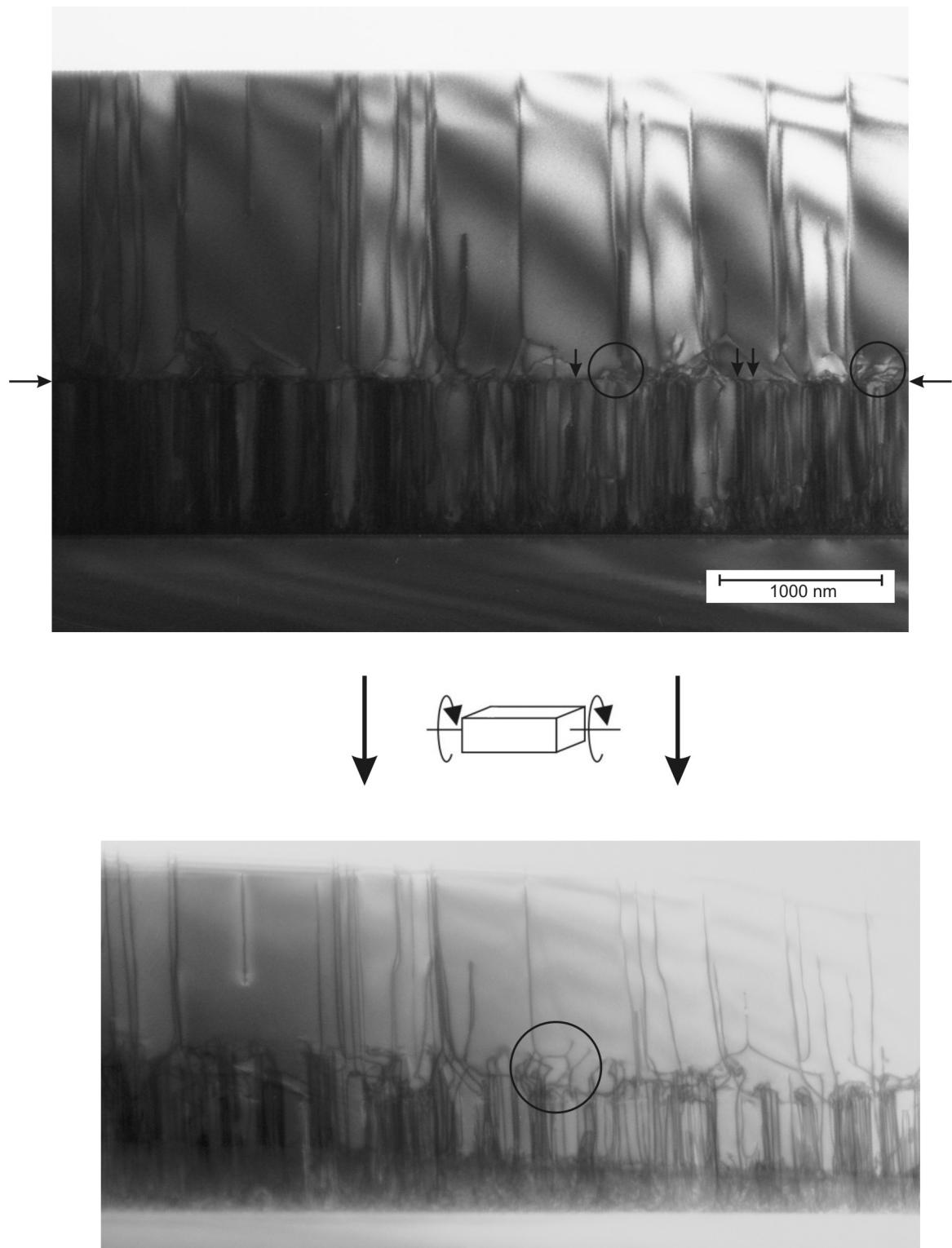


Abbildung 5.11: TEM Aufnahme derselben Probenstelle, einmal in $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ -Zonenachsenorientierung (die Lage der SiN Schicht ist mit Pfeilen gekennzeichnet), einmal um ca. 40° wie angegeben verkippt. Erst durch das Verkippen wird das komplexe Netzwerk von Versetzungen im Bereich der SiN-Zwischenschicht sichtbar.

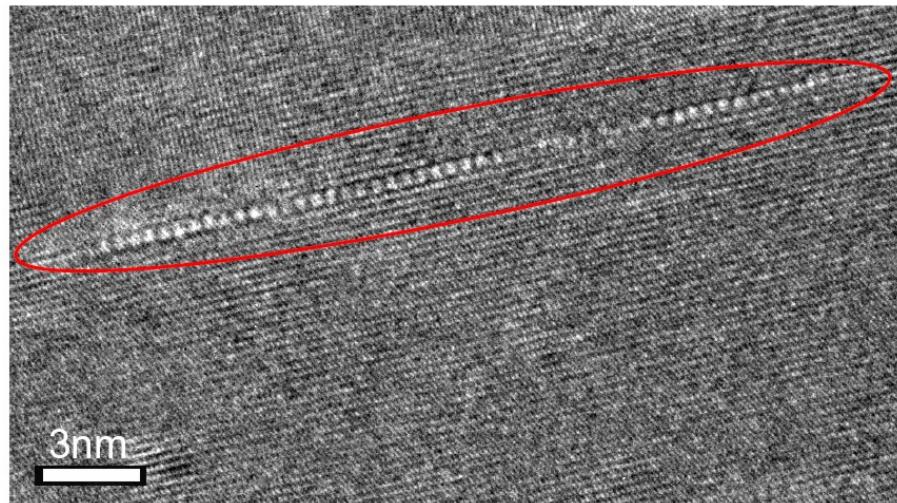


Abbildung 5.12: HRTEM-Aufnahme der SiN-Zwischenschicht: SiN wächst kristallin auf der Oberfläche auf. (TEM-Aufnahme: U. Kaiser, Universität Ulm [Her08/1]).

lin auf der GaN Oberfläche aufwächst (s. Abb. 5.12), werden Versetzungen an der SiN Schicht nicht direkt annihielt, wie in ELO Prozessen, bei denen eine amorphe Maskierung mit z.B. SiO_2 oder SiN aufgebracht wird und Versetzungen am Interface GaN-Maske enden, sondern knicken beim lateralen Überwachsen ab und laufen parallel zur SiN Schicht weiter (Bild 2, Abb. 5.13). Zwei oder mehrere Versetzungen löschen sich beim Zusammenwachsen benachbarter GaN-Inseln aus, wenn die Summe der an der Reaktion beteiligten Burgersvektoren Null ergibt. Ist dies nicht der Fall, entstehen bei der Koaleszenz Versetzungen, die weiter bis zur Oberfläche verlaufen (Bild 3, Abb. 5.13). Das Resultat ist eine geschlossene GaN Oberfläche und eine deutlich versetzungsrreduzierte, allerdings nicht versetzungsfreie Probe (Bild 4, Abb. 5.13).

In den untersuchten Proben spielt neben der eben beschriebenen Reduktion von Versetzungen, die mit SiN maskiert sind, ein weiterer Prozess eine Rolle: Während der Ausbildung der Mikroinseln nach Wiederaufnahme des GaN Wachstums verlaufen einige Versetzungen vom unmaskierten Bereich der Probe in die Seitenflächen der Inseln (s. Abb. 5.14), knicken, wegen der für sie geänderten Wachstumsrichtung, in die $\{0001\}$ -Ebene ab und verlaufen in dieser Richtung weiter. Für sie gilt ebenso, dass sich zwei oder mehrere Versetzungen, passende Burgersvektoren vorausgesetzt, während der Inselkoaleszenz auslöschen können. In TEM Proben kann man diese Art der abknickenden Versetzungen gut erkennen (s. Abb. 5.14 unten). Der Beitrag dieser Art zur Gesamtversetzungsrreduktion variiert sehr stark zwischen den einzelnen untersuchten Proben und hängt von den gewählten

Wachstumsparametern ab. Eine ausführliche Analyse dazu folgt in den Kapiteln 5.2.2 bis 5.2.5.

In den folgenden Abschnitten wird die Reduktion von mit SiN maskierten Versetzungen als Mechanismus I bezeichnet, Versetzungsreduktion durch an den Seitenflächen der Mikroinseln abknickende Versetzungen als Mechanismus II.

Um zu untersuchen, welchen Einfluss die SiN-Zwischenschicht auf die unterschiedlichen Versetzungstypen hat, wurden Querschnittspräparate mit der WBDF Methode (s. Kapitel 4.4.1) untersucht. Es zeigte sich, dass in allen für eine Auswertung relevanten Proben²¹ v.a. Stufenversetzungen, und nur in geringerem Ausmaß auch gemischte Versetzungen, reduziert werden (s. beispielhaft Abb. 5.15). Ursächlich ist dafür die höhere Zahl von Stufenversetzungen verglichen mit Versetzungen mit Schraubenanteil bei den verwendeten 2D Wachstumsbedingungen der Pufferschicht (s. Abschnitt 5.1.1). Dies ist auch in Abb. 5.15 zu erkennen, wenn man die Zahl der Versetzungen mit Schrauben- und Stufenanteil unterhalb der SiN Schicht miteinander vergleicht. Damit Versetzungen miteinander reagieren und sich auslöschen können, müssen sie entgegengesetzte Burgersvektoren aufweisen, was nur für Versetzungen gleichen Typs zutreffen kann. Da bei den gewählten Wachstumsbedingungen nur eine geringere Zahl von Versetzungen mit Schraubenanteil vorhanden ist, ist die Wahrscheinlichkeit, dass zwei oder mehrere davon während des Überwachsens der mit SiN maskierten Bereiche miteinander reagieren, geringer als für reine Stufenversetzungen.

In verschiedenen Versuchsreihen wurden die Wachstumsparameter der SiN Schicht sowie der darunterliegenden und der darauffolgenden GaN Schicht verändert, um die Parameter für die bestmögliche Defektreduktion zu ermitteln.

Auf diese Versuchsreihen wird im Folgenden genauer eingegangen. Eine Zusammenfassung der Versuchsreihen, ihrer Wachstumsparameter und Ergebnisse der durchgeföhrten Messungen finden sich in den Tabellen 5.10 und 5.11 in Abschnitt 5.2.5, der Diskussion der Ergebnisse.

5.2.2 Einfluss der SiN-Position

Um den Einfluss der z-Position der SiN-Zwischenschicht im GaN Schichtsystem auf eine effiziente Versetzungsreduktion zu analysieren, wurden Proben untersucht, bei denen das SiN nach dem Wachstum von 15, 50, 100, 350, 1000 nm undotiertem GaN aufgebracht wurde²². Die SiN-Abscheidetemperatur und die Ab-

²¹Für Proben mit SiN-Schicht direkt auf oder weniger als 50 nm überhalb der Pufferschicht ist ein Vergleich der Versetzungen oberhalb und unterhalb der SiN Schicht nicht durchführbar, da einzelne Versetzungen unterhalb der SiN Schicht nicht ausreichend gut voneinander unterschieden werden können.

²²Grundsätzlich geht das Bestreben dazu die Gesamtschichtdicke der Heterostrukturen für LEDs und LDs gering zu halten, d.h. das Einbringen der SiN-Zwischenschicht zu einem

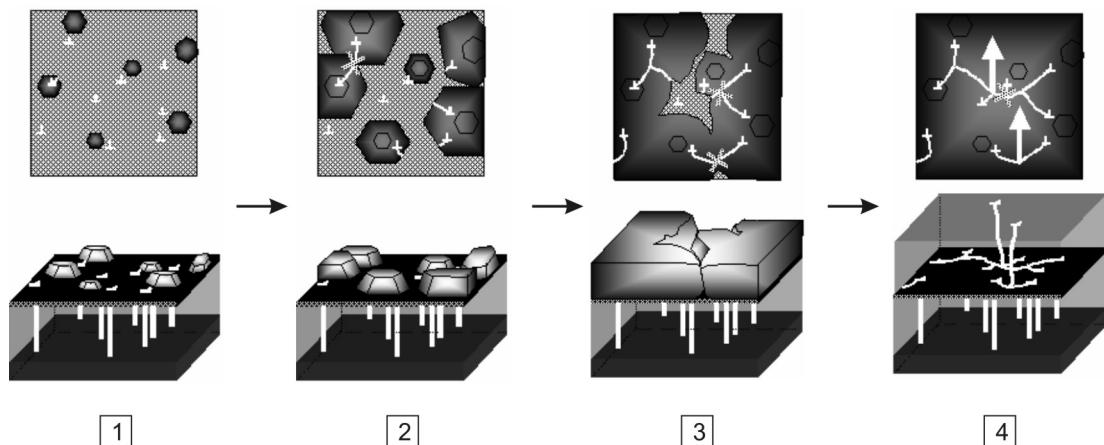


Abbildung 5.13: Schematisches Modell für den Mechanismus der Versetzungsreduktion von Versetzungen direkt an der SiN Schicht [Hij06]. Erklärung siehe Text.

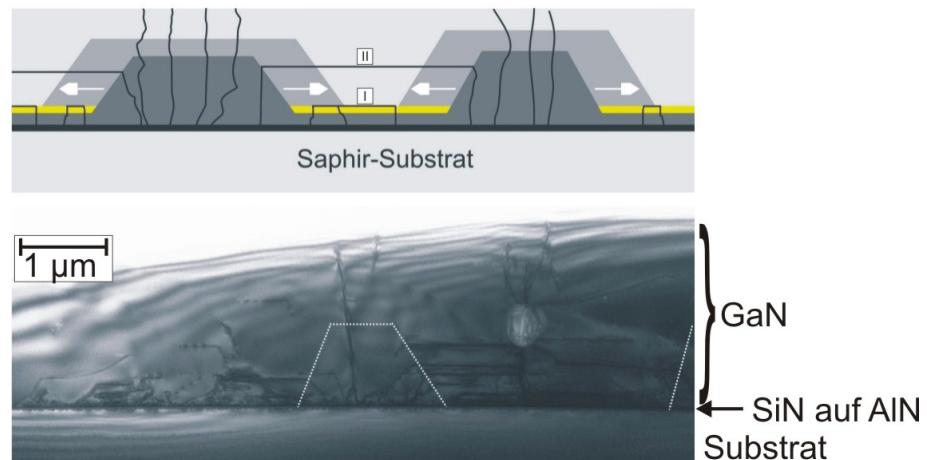


Abbildung 5.14: Schematische Darstellung der beiden Versetzungsreduktionsmechanismen (oben) und TEM Helffeldaufnahme zur Veranschaulichung der Versetzungsreduktion durch abknickende Versetzungen an den Seitenflächen der GaN-Mikroinseln (unten). In der schematischen Darstellung sind die beiden Mechanismen, die zur Versetzungsreduktion beitragen gekennzeichnet. Im TEM Bild ist zu erkennen, dass sich bei der Inselkoaleszenz, entweder durch Reaktion der horizontalen Versetzungen miteinander oder durch leicht unterschiedliche Gitterorientierung der Mikroinseln (Kleinwinkelkorngrenzen), vertikale Versetzungen ausbilden können. Die SiN Schicht befindet sich bei dieser Probe direkt auf der AlN Nukleationschicht, ihre Lage ist dadurch im TEM Bild nicht zu erkennen.

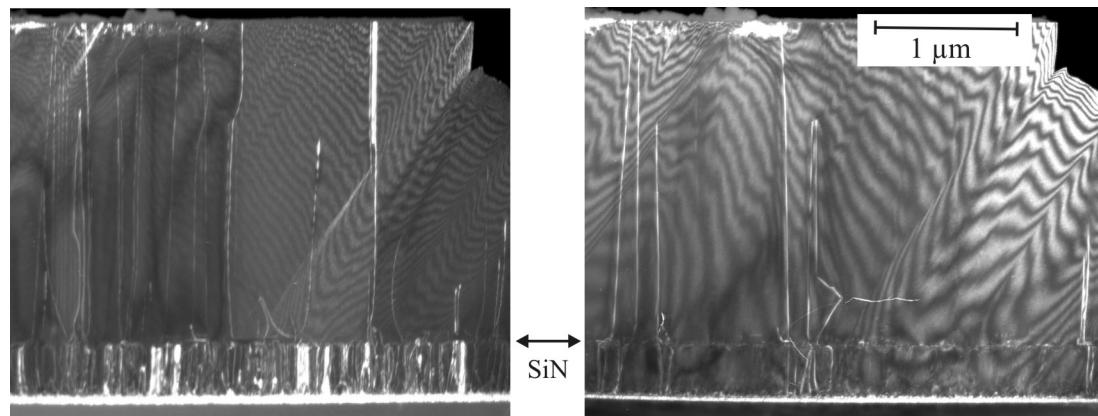


Abbildung 5.15: WBDF-TEM-Aufnahmen der selben Probenstelle, links sind Versetzungen mit Stufen-, rechts mit Schraubenkomponente zu sehen. Eine Reduzierung der Versetzungen erfolgt vorrangig für Versetzungen mit Stufenkomponente: Im linken Bild (Stufen- und gemischte Versetzungen) erkennt man eine Vielzahl von Versetzungen, die bis zur SiN Schicht verlaufen, sich aber nicht darüber ausbreiten, im rechten Bild (Schrauben- und gemischte Versetzungen) erkennt man eine weitaus schwächere Reduktion der Versetzungslinien durch die SiN Schicht.

scheidedaue wurde bei allen Proben konstant gehalten ($T_{\text{SiN}} = 1100^\circ\text{C}$, $t_{\text{SiN}} = 4 \text{ min}$), die GaN Anwachsbedingungen nach der SiN Deposition entsprachen dem 2D Standard-Anwachsprozess (s. Tabelle 5.5). Bei der Betrachtung der Ergebnisse der EPD-Messungen (s. Tabelle 5.6) fällt auf, dass unabhängig von der SiN Position Werte von $< 4 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ erzielt werden, die besten Resultate für die Versetzungsichte erhält man für die Proben mit SiN Position 15 nm, 100 nm und 350 nm überhalb der Nukleationsschicht. Diese Ergebnisse konnten durch TEM Querschnittsaufnahmen qualitativ bestätigt werden, wenn man in Abbildung 5.16 die Zahl der bis zur Probenoberfläche verlaufenden Versetzungen miteinander vergleicht.

Allerdings läuft, wie man anhand der TEM-Abbildungen erkennen kann, die Versetzungsreduktion bei Proben mit annähernd gleichen EPD Resultaten abhängig von der SiN Position deutlich unterschiedlich ab. Vergleicht man die TEM Bilder der Proben mit SiN Position 15 nm und 350 nm, sieht man in ersterer eine große Zahl an waagrechten Versetzungslinien, ein Teil der Versetzungreduktion geschieht über Mechanismus II, in zweiterer sind so gut wie keine abknickenden Versetzungen überhalb der SiN Schicht zu erkennen, die Versetzungsreduktion

möglichst frühen Zeitpunkt der GaN Epitaxie ist präferiert, allerdings nicht auf Kosten der Kristallqualität.

SiN-Position [nm]	HRXRD		EPD [10 ⁸ /cm ²]
	(102)-Refl. [arcsec]	(002)-Refl [arcsec]	
15	229	239	1,6 ± 0,32
50	234	64	3,4 ± 0,68
100	213	81	2,0 ± 0,40
350	247	75	1,7 ± 0,34
1000	281	73	4,0 ± 0,80

Tabelle 5.6: Einfluss der SiN-Position auf die Defektdichte (EPD) und die Röntgen-Halbwertsbreiten (HRXRD). Die Standardabweichung bei der Bestimmung der Versetzungsdichte kann zu ±20 % angenommen werden [Her08/1]

erfolgt fast ausschließlich nach Mechanismus I. In Abschnitt 5.2.5 folgt eine Analyse zu Ursachen der unterschiedlichen Mechanismen der Versetzungsreduktion in den untersuchten Proben sowie auch eine Erklärung zu einer weiteren Auffälligkeit: Waagrecht verlaufende Versetzungslinien, die in keiner Verbindung zu einer vertikalen Versetzung stehen, am deutlichsten zu erkennen in der Probe SiN-Pos-100nm.

5.2.3 Einfluss der Anwachsbedingungen

In einer weiteren Versuchsreihe wurden die GaN-Anwachsbedingungen im Anschluss an die SiN-Maskierung verändert. In der untersuchten Probenserie wurde ein Wachstumsprozess verwendet, dessen Wachstumsparameter in Tabelle 5.7 zusammengefasst sind und der im Folgenden als 3D-2D-Prozess bezeichnet wird. Das Ziel war dabei eine weitere Reduktion der Versetzungsdichte im Vergleich zu den in Abschnitt 5.2.2 erreichten Werten der im 2D Modus gewachsenen Proben, durch eine Steigerung der Versetzungsreduktion nach Mechanismus II, bei gleich bleibender Versetzungsreduktion nach Mechanismus I. Die Position der SiN-Zwischenschicht wurde nach den Ergebnissen in Abschnitt 5.2.2 auf 350 nm über der Nukleationsschicht festgelegt, die SiN Abscheidetemperatur betrug $T_{\text{SiN}} = 1120^\circ\text{C}$.

Zusammenfassung der beiden Wachstumsprozesse:

2D Prozess

Die Wachstumsbedingungen des 2D-Prozesses (der Standardprozess, der in Kapitel 5.2.1 eingeführt wurde - die Wachstumsparameter sind in Tabelle 5.7, linke Spalte, nochmals aufgelistet) unterscheiden sich kaum von den Standard-GaN-Bedingungen (s. Tabelle 5.7, rechte Spalte). Im Anschluss an die Deposition von

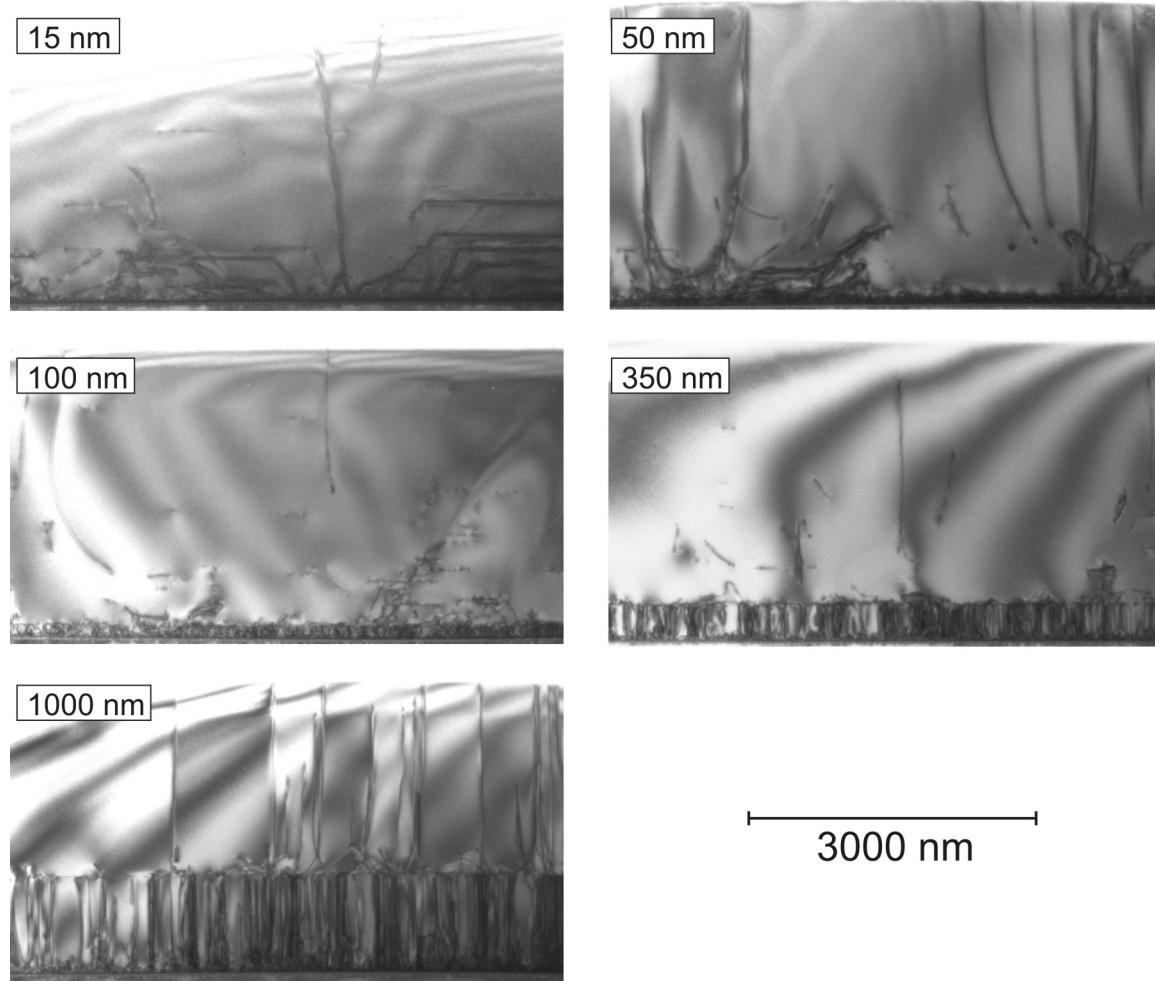


Abbildung 5.16: TEM Querschnittsaufnahmen (Hellfeld) zur Versetzungsanalyse: Die Position der SiN-Zwischenschicht (bzw. die Dicke der GaN-Schicht überhalb der AlN-Nukleationsschicht vor dem Abscheiden von SiN) bei der jeweiligen Probe ist in den Bildern angegeben. Die Versetzungsreduktion ist bei den Proben mit SiN-Zwischenschicht bei 100 nm und 350 nm am Besten. Auffällig ist die hohe Zahl an waagerechten Versetzungslinien in den Proben mit SiN Position 15 nm und 50 nm über der Nukleationsschicht.

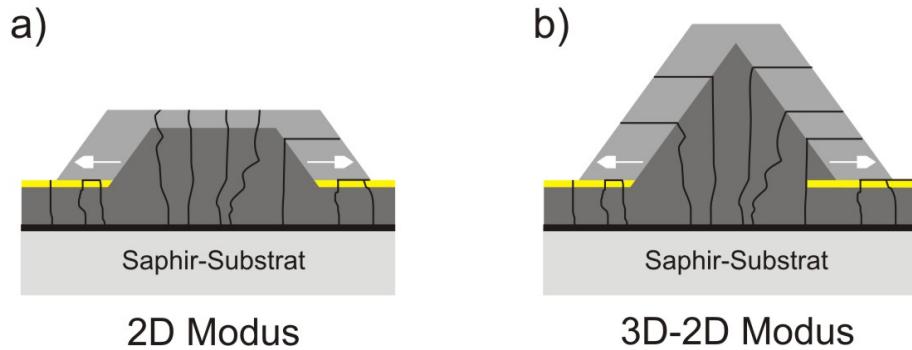


Abbildung 5.17: Schematische Darstellung der beiden unterschiedlichen Wachstumsprozesse:

(a) Im 2D Modus nukleiert GaN in den nicht mit SiN bedeckten Bereichen und breitet sich von dort rasch lateral über die maskierten Bereiche aus. Versetzungsreduktion erfolgt in diesem Fall fast ausschließlich beim Überwachsen von Versetzungen unterhalb der SiN Schicht, Versetzungen in den nicht maskierten Bereichen werden kaum beeinflusst.

(b) Im 3D-2D Modus wird durch die Wachstumsparameter während des 3D Prozesses vertikales Wachstum gefördert, im optimalen Fall bis zu Ausbildung von Mikro-Pyramiden. Anschließend wird durch Änderung der Wachstumsbedingungen ein stark laterales Wachstum forciert. Dadurch soll, durch Abknicken der Versetzungen während des lateralen Überwachsens der GaN Mikro Pyramiden, eine effiziente Reduktion der Versetzungsdichte auch in den nicht mit SiN maskierten Bereichen erreicht werden.

SiN erfolgt innerhalb von 30 s die Einstellung der in Tabelle 5.7 aufgelisteten Wachstumsparameter. Der TMGa-Fluss wird dabei sukzessive während der ersten 5 Minuten des 2D-Prozesses auf 21 sccm erhöht, wodurch ein gleitender Übergang zu den Standard-GaN-Wachstumsbedingungen erzielt wird.

Die gewählten GaN Anwachsbedingungen begünstigen ein stark laterales Wachstum, und bezwecken ein rasches Koaleszieren der sich in nicht maskierten Bereichen ausbildenden GaN-Mikro-Inseln.

3D-2D Prozess

Beim 3D-2D Prozess (s. Abb. 5.17 rechts) werden innerhalb der ersten Minute die Wachstumsparameter (s. Tabelle 5.7) für stark dreidimensionales GaN Wachstum eingestellt, mit dem Ziel, das Wachstum der GaN Inseln in vertikaler Richtung zu fördern. Durch das anschließende Umschalten auf die im Vergleich zum reinen

Wachstumsparameter	2D-Prozess	3D-2D-Prozess		Standard
	Standard	3D	2D	GaN
Temp [° C]	1120	1030	1160	1120
Druck [mbar]	100	200	100	100
NH_3 [sccm]	2000	500	2000	2000
TMGa [sccm]	5 bis 21	21	10	21
V/III-Verh.	4600 bis 1100	290	2200	1100
Dauer [min]	5	1	20	variabel

Tabelle 5.7: *GaN Epitaxiebedingungen im Anschluss an die SiN-Maskierung im Vergleich zu Standard GaN Wachstumsbedingungen: Unterschieden wurde zwischen dem einstufigen Standard 2D- und einem zweistufigen 3D-2D-Prozess. Im 2D-Prozess (der schon in Kapitel 5.2.1 eingeführt wurde) wird eine schnelle Koaleszenz der einzelnen Mikroinseln herbeigeführt, durch den 3D-2D-Prozess wird im ersten Schritt das vertikale Wachstum der Mirkoinseln, im zweiten Schritt ausgeprägtes laterales Wachstum begünstigt.*

2D Prozess zu noch ausgeprägterem lateralem Wachstum geänderten Parameter soll ein effizientes Abknicken, sowohl der Versetzungen unterhalb der SiN Schicht, als auch insbesondere der Versetzungen in nicht mit SiN maskierten Bereichen erreicht werden. Anders ausgedrückt, der Anteil der Versetzungsreduktion nach Mechanismus II soll dadurch deutlich erhöht werden und eine insgesamt effizientere Versetzungsreduktion erreicht werden.

Vergleich der beiden Anwachsprozesse

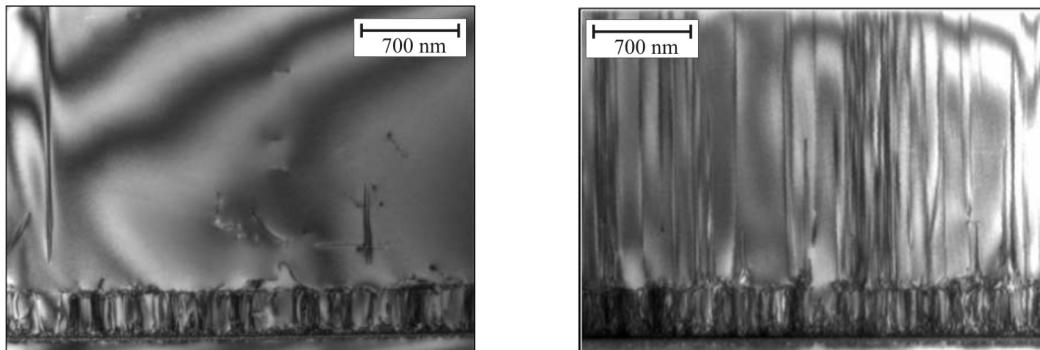


Abbildung 5.18: *Während nach dem Abscheiden der SiN-Schicht die Verwendung des 2D-Prozesses (links) eine effiziente Reduktion der Versetzungs-dichte ermöglicht, ist dies bei Verwendung des 3D-2D-Prozesses (rechts) nicht der Fall.*

Probe	rel. Versetzungsreduktion (TEM)	EPD [10^9cm^{-2}]
3 min	$55\% \pm 5, 5\%$	$3,00 \pm 0, 60$
5 min	$32\% \pm 3, 2\%$	$1,60 \pm 0, 32$
7 min	$4,5\% \pm 0, 9\%$	$0,29 \pm 0, 06$
Referenz	$4\% \pm 0, 8\%$	$0,17 \pm 0, 03$

Tabelle 5.8: Übersicht über die aus TEM-Querschnittspräparaten gewonnenen Werte für die relative Versetzungsreduktion ($\frac{\text{Anzahl der Versetzungen überhalb der SiN Schicht}}{\text{Anzahl der Versetzungen unterhalb der SiN Schicht}}$) und den Versetzungsdichten aus EPD Messungen für die im 3D-2D Modus gewachsenen Proben. Zusätzlich ist die Referenzprobe (4 min SiN, 2D-Modus) angegeben.

Vergleicht man TEM Querschnittsaufnahmen an Proben mit gleicher Position und ähnlicher Abscheidedauer der SiN-Zwischenschicht, die einmal mit dem 2D-Prozess (s. Abb. 5.18, links) und einmal mit dem 3D-2D Prozess überwachsen wurden (s. Abb. 5.18, rechts), so fällt die weitaus höhere Zahl von Versetzungen in der 3D-2D Probe auf²³. Es tritt auch beim 3D-2D Wachstum eine Reduktion der Anzahl der Versetzungen auf, die jedoch ca. um eine Größenordnung geringer ist als bei der Probe, die im 2D Prozess gewachsen wurde. EPD Messungen an den Proben, die an der Universität Ulm durchgeführt wurden, ergaben die gleiche Verhältnismäßigkeit (s. Tabelle 5.8).

Auffällig ist, dass in den TEM Aufnahmen der im 3D-2D-Modus gewachsenen Probe keine überhalb der SiN Schicht abknickenden Versetzungen zu erkennen sind, die man nach ausgeprägtem 3D Wachstum im ersten Epitaxieschritt mit anschließendem Umschalten auf stark laterales Wachstum erwarten würde; eine Steigerung der Versetzungsreduktion nach Mechanismus II findet nicht statt. Eine erste Vermutung für die Ursache unterschiedlich starker Versetzungsreduktion wäre, dass es durch die niedrigen Temperaturen im 3D-Prozess zu einem Nukleieren von GaN auf der SiN Maske kommt, und dadurch die Wirkung als anti-surfactant aufgehoben würde. Die unter der SiN-Maske liegenden Versetzungen könnten sich (zumindest teilweise, in den direkt überwachsenen Bereichen) ohne abzuknickeln in den darüberliegenden Schichten fortsetzen. Warum man dennoch eine, wenn auch geringere Versetzungsreduktion beobachten kann, könnte am teilweise direkten, teilweise auch lateraleren Überwachsen der SiN-Schicht lie-

²³Als Referenz wird die Probe SiN-Pos-350nm verwendet aus dem vorherigen Teilabschnitt verwendet, bei der die SiN-Abscheidedauer 4 min betrug. Der Unterschied in der SiN-Abscheidedauer ist nicht entscheidend für die geringere Versetzungsreduktion, was klar wird wenn man auch die Probe mit 3D-2D-Prozess und 5 min SiN Abscheidedauer in Abb. 5.20 mit berücksichtigt, die ebenfalls eine deutlich höhere Zahl von Versetzungen als die Referenz aufweist.

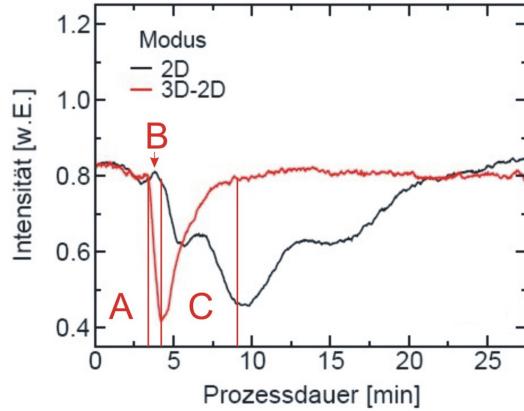


Abbildung 5.19: Darstellung der *In-situ* Reflektometrie Signale, bei Variation der GaN-Anwachsbedingungen. Der abrupte Anstieg des Signals (3D-2D-Prozess) in Bereich C deutet auf eine Desorption des SiN bei einer Temperatur von 1160°C hin. Messung durchgeführt von J. Hertkorn, Universität Ulm [Her08/1].

gen, wobei man in den lateral überwachsenen Bereichen eine Versetzungsreduktion vermuten kann. Das schnellere Überwachsen der SiN maskierten Bereiche im 3D-2D Modus verglichen mit dem 2D Modus kann durch In-situ Reflektometrie-Messungen bestätigt werden (s. Abb. 5.19). Die Kurve der Probe im 3D-2D Modus steigt im Bereich C rascher an und erreicht schneller den Ausgangswert als die Kurve der Probe im 2D Modus; es wird also, entgegen der Intention des 3D-2D Modus, nach kürzerer Zeit eine geschlossene Oberfläche erreicht. Allerdings kann aus dem starken Einbruch der Kurve der Probe im 3D-2D Modus während des 3D Wachstumsschritts (Bereich B) auch geschlossen werden, dass ein Wachstum von GaN-Mikro Inseln durch das 3D Wachstum, verglichen zum im üblichen Modus verwendeten 2D Wachstum, stark forcierter wird. Somit kann diese Vermutung ausgeschlossen werden, es findet sehr wohl ein forcierter selektives 3D Wachstum im ersten Wachstumsschritt statt, das Nukleieren von GaN auf der SiN Maske kann nicht die Ursache für die nur geringe Reduzierung der Versetzungsichte sein. Das schnelle Überwachsen der SiN-maskierten Bereiche und die schlechte Versetzungsreduktion muss demnach einen anderen Ursprung haben.

Betrachtet man das In-situ Reflektometrie Bild, so sieht man nach Einschalten der hohen Temperatur für laterales Wachstum (1160°C) einen abrupten Anstieg des Signals (s. Abb. 5.19, Übergang zwischen Bereich B und C). Man kann dies als Indiz dafür sehen, dass es durch die hohe Temperatur zu einer Desorption der dünnen SiN Schicht kommt [Wun06]. Als Folge der zumindest teilweise aufgehobenen Maskierung wäre das selektive laterale Wachstum stark eingeschränkt, es

käme zu einer schnelleren Einebnung der ursprünglich entstandenen GaN-Mikro-Inseln durch Wachstum auf den vorher maskierten Bereichen. Dadurch würden weniger Versetzungen lateral überwachsen und abknicken, die Versetzungsreduktion wäre insgesamt weniger effektiv.

Diese These konnte anhand von TEM-Messungen eindeutig gestützt werden. Betrachtet man TEM-Aufnahmen von Proben, die im 2D-3D Modus überwachsen wurden, bei denen statt 3 min SiN Abscheidedauer 5 min bzw. 7 min verwendet wurden (s. Abb. 5.20 links und Tab. 5.8), so sieht man deutlich eine verbesserte Versetzungsreduktion mit steigender SiN Abscheidedauer. Bei der Probe mit 7 min SiN Deposition erreicht man eine ähnlich starke Reduktion der nach der SiN Schicht weiter zur Oberfläche verlaufenden Versetzungen wie in der Referenzprobe. Dies geschieht, wie man in TEM Aufnahmen erkennen kann, auch durch abknickende und waagrecht weiter verlaufende Versetzungslinien, d.h. also auch wegen Versetzungsreduktion nach Mechanismus II. Es liegt die Vermutung nahe, dass zwar durch die hohe Temperatur während des lateralen Wachstums ein gewisser Anteil des aufgebrachten SiN desorbiert, jedoch bei der Probe mit 7 min SiN Abscheidedauer der SiN Bedeckungsgrad hoch genug bleibt, um zu gewährleisten dass eingewisser Bereich lateral überwachsen wird und damit eine starke Versetzungsreduktion zu ermöglichen.

Als Ergebnis kann festgehalten werden, dass mit dem verwendeten 3D-2D Modus, v.a. aufgrund des Ablösen der SiN Maskierung im 2D Schritt, keine Verbesserung zum Standardprozess auftritt. Ob grundsätzlich eine verbesserte Versetzungsreduktion durch Verwendung des 3D-2D Modus im Vergleich zum Standard Anwachsprozess möglich ist, könnte final anhand von 3D-2D Proben, die mit einer geringeren Temperatur, z.B. der des reinen 2D Prozesses lateral überwachsen werden, geklärt werden²⁴. Solche Proben standen nicht zur Verfügung.

5.2.4 Einfluss der SiN-Abscheidedauer

Der Einfluss der SiN-Abscheidedauer wurde an zwei Probenserien untersucht. Bei der ersten Serie wurde die SiN Schicht direkt auf die AlN-Pufferschicht aufgebracht, mit anschließendem Überwachsen im 2D Modus, bei der zweiten nach 350 nm epitaxiertem GaN, mit Überwachsen im 3D-2D-Modus²⁵. Es stand keine Probenserie mit der SiN-Schicht im epitaxiertem GaN zur Verfügung, bei der die SiN Schicht im Standard 2D-Modus überwachsen wurde. Bei beiden Serien wurden für T_{SiN} 3 min, 5 min, 7 min eingestellt. In Abb. 5.20 sind Hellfeld-

²⁴Allerdings erhöht sich durch den abgeschwächten 2D Prozess mit nicht so stark ausgeprägtem lateralem Wachstum die Schichtdicke bis zur Koaleszenz, was für Anwendung dieses Modus von Nachteil wäre.

²⁵Diese Probenserie wurde schon in Abschnitt 5.2.3 behandelt, dort allerdings vor allem wegen der unterschiedlichen Wachstumsprozesse, hier wegen der varierten SiN-Abscheidedauer.

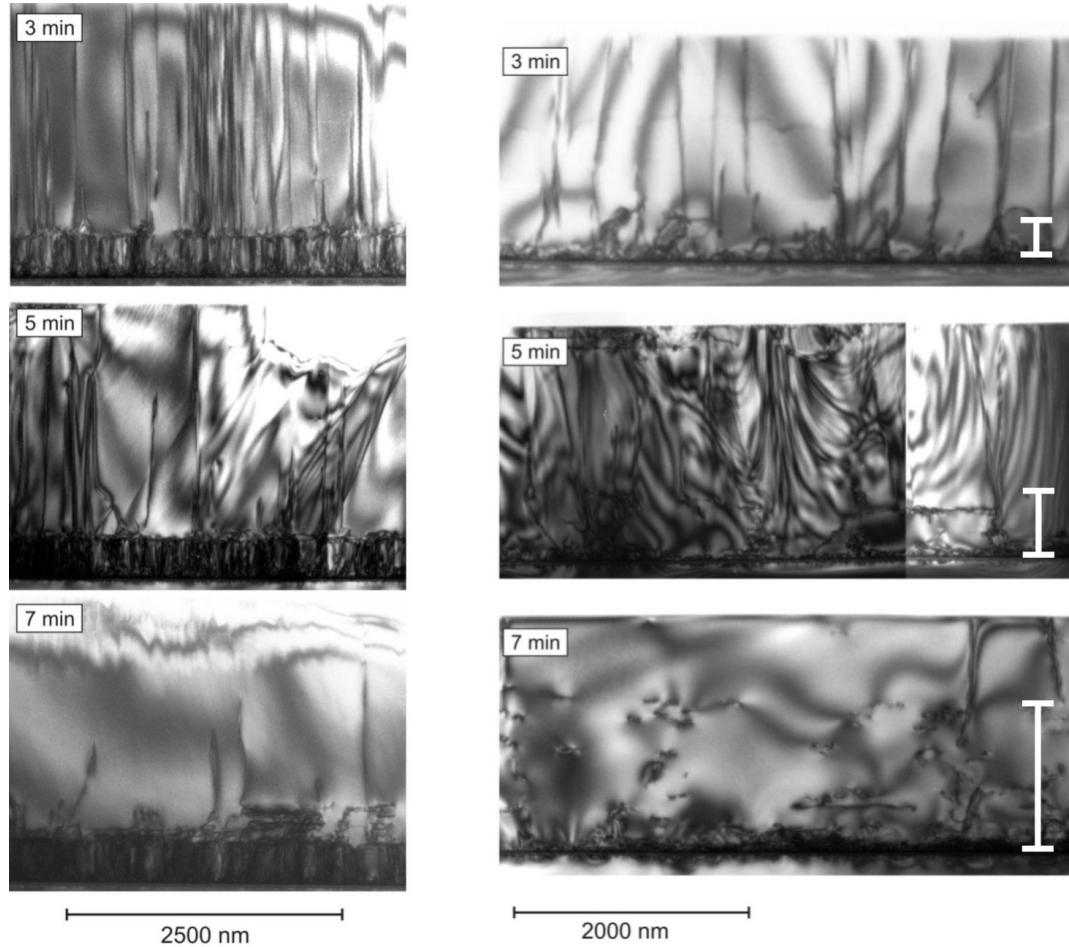


Abbildung 5.20: TEM Querschnittsaufnahmen zur Veranschaulichung des Einflusses der SiN Abscheidedauer, links für die SiN-Zwischenschicht nach 350 nm GaN (gewachsen im 3D-2D-Modus), rechts für die SiN-Zwischenschicht direkt auf der AlN Pufferschicht. Die Versetzungsreduktion steigt für beide Probenserien mit zunehmendem Bedeckungsgrad an. Auffällig ist die hohe Zahl von waagrechten Versetzungslinien in den Bildern mit hohem Bedeckungsgrad, insbesondere bei SiN Abscheidung auf der AlN Pufferschicht. Für diese Bilderserie ist mit einem Balken die maximale Ausdehnung der waagrechten Versetzungslinien ins Schichtsystem dargestellt: Für 3 Minuten SiN Abscheidedauer ergaben sich 300 nm, für 5 Minuten 550 nm und für 7 Minuten 1200 nm.

Probe	EPD [10^9 cm^{-2}]	HRXRD	
		(102)-Refl.	(002)-Refl.
<i>SiN nach 350 nm GaN 2D-3D-Modus</i>			
3 min	$3,00 \pm 0,60$	-	-
5 min	$1,60 \pm 0,32$	-	-
7 min	$0,29 \pm 0,06$	-	-
<i>SiN nach AlN NL 2D Modus</i>			
3 min	$0,90 \pm 0,18$	441	274
5 min	$0,50 \pm 0,10$	404	284
7 min	$0,24 \pm 0,05$	361	318
Referenz <i>SiN nach 350 nm GaN 2D Modus</i>			
4 min	$0,17 \pm 0,03$	136	247

Tabelle 5.9: Einfluss der SiN-Abscheidedauer auf die Versetzungsdichte (EPD) für die beiden untersuchten Probenserien (SiN-Zwischenschicht epitiert nach Wachstum von 350 nm GaN und SiN-Zwischenschicht direkt auf der AlN Pufferschicht) und die Röntgen-Halbwertsbreiten für die Proben mit der SiN-Zwischenschicht direkt auf der AlN Pufferschicht (Für die im 3D-2D Modus gewachsenen Proben wurden keine HRXRD Messungen durchgeführt.). Als Vergleich ist die beste bisher vermessene Probe als Referenzprobe angegeben: SiN nach 350 nm GaN, SiN-Abscheidedauer 4 min (s. Abschnitt 5.2.2). Trotz der relativ geringen Versetzungsdichte der Proben mit der SiN-Zwischenschicht direkt nach der AlN Pufferschicht sind die Halbwertsbreiten der HRXRD-Messungen auffällig hoch, insbesondere für den (102)-Reflex. Die Messungen wurden durchgeführt von J. Hertkorn, Universität Ulm [Her08/1].

TEM Bilder der beiden Probenserien dargestellt, links die Proben mit der SiN-Zwischenschicht nach 350 nm GaN (3D-2D-Modus), rechts die Proben mit der SiN-Zwischenschicht direkt auf der AlN-Nukleationsschicht (2D-Modus). In Tabelle 5.9 sind die EPD-und HRXRD-Daten für die beiden Probenserien zusammengefasst.

Bei beiden Probenserien ist sowohl aus den TEM-Bildern, als auch aus den EPD-Messungen ersichtlich, dass die Versetzungsreduktion mit zunehmendem SiN-Bedeckungsgrad ansteigt, bei 7 min Abscheidedauer erreicht sie für beide Serien die besten, fast gleichgroßen, Werte. Was jedoch nur in den TEM-Bildern zu er-

kennen ist, ist die sehr hohe Zahl von waagrecht verlaufenden Versetzungslinien in den Proben mit der SiN-Zwischenschicht direkt auf der AlN-Nukleationsschicht. Die Zahl der waagrechten Versetzungslinien mit Verbindung zu einer vertikalen Versetzung, und damit die Versetzungsreduktion nach Mechanismus II, steigt dabei mit zunehmender Abschiededauer stark an. Auffällig ist auch, dass sich die Ausbreitung der horizontalen Versetzungslinien in c-Richtung mit zunehmendem SiN Bedeckungsgrad ändert: Bei 3 min Abschiededauer reichen sie bis 300 nm, bei 5 min bis 550 nm und bei 7 min bis 1200 nm in das über die SiN Schicht epitaxierte GaN. Ein analoges Verhalten ist auch bei den Proben mit der SiN-Zwischenschicht nach 350 nm GaN zu erkennen, die Absolutwerte der Anzahl der waagrechten Versetzungslinien und ihrer Ausbreitung ins über die SiN Schicht epitaxierte GaN sind jedoch deutlich geringer.

Zusätzlich zu den an Mechanismus II beteiligten abknickenden Versetzungen sind auch in den Proben mit SiN Abscheidung auf der AlN Nukleationsschicht (wie schon bei der Probe mit SiN Position 15 nm überhalb der Nukleationsschicht, s. Abschnitt 5.2.2) eine relativ große Zahl waagrecht verlaufender Versetzungslinien, die in keiner Verbindung zu einer vertikalen Versetzung stehen zu erkennen. Eine Erklärung der Entstehung dieser Art von Versetzungslinien ist Teil der folgenden Diskussion der Ergebnisse.

5.2.5 Diskussion der Ergebnisse

Die Wachstumsparameter der untersuchten Proben und die Ergebnisse der TEM Analysen sowie der EPD und HRXRD Messungen sind in den Tabellen 5.10 und 5.11 zusammengefasst.

Ergebnisse der Versetzungsreduktion

Betrachtet man ausschließlich die Resultate der Versetzungsichte, wurde das beste Resultat für die SiN Schicht 15 nm überhalb der AlN Nukleationsschicht erzielt. Allerdings sieht man in dieser Probe auch eine hohe Zahl an horizontalen Versetzungslinien, die bis zu mind. 1350 nm in die gewachsene Schicht reichen. Daraus lässt sich schließen, dass eine vollständig geschlossene Oberfläche erst ab ca. 1,5 μm erreicht wird. Ähnlich gute Resultate der Versetzungsreduktion wurden für Proben mit der SiN Schicht 100 nm und 350 nm überhalb der AlN Nukleationsschicht erreicht, allerdings mit einer deutlich geringeren Schichtdicke bis zur vollständigen Koaleszenz, wie aus der vertikalen Ausdehnung von waagrechten Versetzungslinien abgeleitet werden kann. Insgesamt kann anhand der untersuchten Proben vermutet werden, dass auch die Temperatur während der SiN Deposition eine Rolle bei der Stärke der Versetzungsreduktion spielt. Auch wenn keine Probenserie mit expliziter Temperaturvariation zur Verfügung

Probenname	SiN Abscheide-dauer	SiN Abscheide-temperatur	Wachstumsprozess	Versetzungsdichte EPD [cm ⁻²]	(102)-Ref.	HRXRD (002)-Ref.
SiN-Pos-15nm	4 min	1100°C	2D	1,6 · 10 ⁸	239	229
SiN-Pos-50nm	4 min	1100°C	2D	3,4 · 10 ⁸	64	234
SiN-Pos-100nm	4 min	1100°C	2D	2,0 · 10 ⁸	81	213
SiN-Pos-350nm	4 min	1100°C	2D	1,7 · 10 ⁸	136	247
SiN-Pos-1000nm	4 min	1100°C	2D	4,0 · 10 ⁸	73	281
SiN-350nm-3min	3 min	1120°C	3D-2D	3,0 · 10 ⁹	-	-
SiN-350nm-5min	5 min	1120°C	3D-2D	1,6 · 10 ⁹	-	-
SiN-350nm-7min	7 min	1120°C	3D-2D	2,9 · 10 ⁸	-	-
SiN-NL-3min	3 min	1120°C	2D	9,0 · 10 ⁸	274	441
SiN-NL-5min	5 min	1120°C	2D	5,0 · 10 ⁸	284	404
SiN-NL-7min	7 min	1120°C	2D	2,4 · 10 ⁸	318	381

Tabelle 5.10: Wachstumsparameter und Ergebnisse zu Messungen bzgl. Versetzungen an der Universität Ulm.

Probenname	Versetzungsr eduktion auf	Höhe der waagr. Versetzungslinien	Kommentare
SiN-Pos-15nm	-	1350 nm	- Versetzungsdichte nahezu unabhängig von SiN Position
SiN-Pos-50nm	-	1000 nm	- Bei SiN-Pos-15nm großer Anteil an Versetzungsreduktion nach Mechanismus II
SiN-Pos-100nm	7% ± 1,4%	850 nm	- Bei Berücksichtigung aller Faktoren: SiN-Pos-350nm insgesamt beste Probe
SiN-Pos-350nm	4% ± 0,8%	850 nm	
SiN-Pos-1000nm	16% ± 1,6%	400 nm	
SiN-350nm-3min	55% ± 5,5%	50 nm	- keine Erhöhung des Anteils der Vers.-Red. nach Mech. II
SiN-350nm-5min	32% ± 3,2%	150 nm	- SiN desorbiert, Maskierung wird (teilweise) aufgehoben
SiN-350nm-7min	4,5% ± 0,9%	400 nm	- Versetzungsr eduktion steigt mit Bedeckungsgrad
SiN-NL-3min	-	300 nm	- Versetzungsr eduktion steigt mit Bedeckungsgrad
SiN-NL-5min	-	550 nm	- Bedeckungsgrad bei gleicher SiN-Abscheidezeit bei Wachstum auf NL höher als auf GaN
SiN-NL-7min	-	1200 nm	- Erhöhung des Anteils der Vers.-Red. nach Mech. II

Tabelle 5.11: Ergebnisse der TEM Messungen. Der Fehler für die Messung der Höhe der waagrechten Versetzungslien kann mit ±5% abgeschätzt werden.

stand, lässt sich sagen, dass die besten Werte für die Versetzungsreduktion für eine SiN-Depositionstemperatur von $T_{\text{SiN}} = 1100 \text{ }^{\circ}\text{C}$ erreicht wurden, die Ergebnisse für SiN Deposition bei $T_{\text{SiN}} = 1120 \text{ }^{\circ}\text{C}$ fallen im Vergleich dazu ab. Der wahrscheinliche Grund für dieses Verhalten liegt in der Stärke der Aufrauung der Oberfläche während der SiN Deposition und der davon abhängigen Höhe des SiN Bedeckungsgrads. Eine direkte Messung des Bedeckungsgrads ist im Allgemeinen nur schwer möglich, durch TEM Messungen ist sie nicht durchführbar. Allerdings wurde eine Temperaturabhängigkeit dieser Art von Joachim Hertkorn für eine Probenserie mit Variationen der SiN-Abscheidetemperatur beschrieben ([Her08/1] und [Her08/2]), so dass man davon ausgehen kann, dass sie auch für die untersuchten Proben zutrifft.

Waagrechte Versetzungslien - Stapelfehler

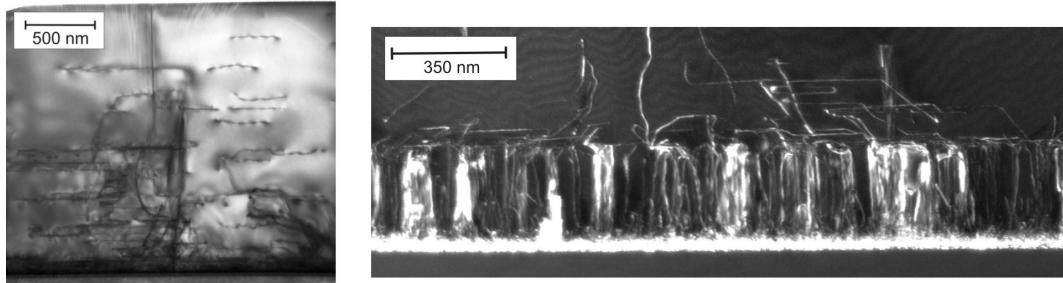


Abbildung 5.21: TEM Aufnahmen zweier unterschiedlicher Arten von horizontalen Versetzungslien: Links, horizontale Versetzungslien, die in keiner Verbindung zu einer vertikalen Versetzungslien stehen; rechts, nach Mechanismus II der Versetzungsreduktion abknickende Versetzungen, die horizontal weiterlaufen.

Prinzipiell muss man neben den direkt beim Überwachsen der SiN-Schicht abknickenden Versetzungen, die im weiteren Schichtsystem nicht mehr sichtbar sind (Versetzungsreduktion nach Mechanismus I), zwischen zwei unterschiedlichen Arten von horizontalen Versetzungslien unterscheiden:

- 1.) Versetzungen, die durch die Seitenflächen der GaN Mikroinseln verlaufen, dort bei lateralem Überwachsen abknicken und horizontal weiterlaufen. Diese abknickenden Versetzungen, können bei der Koaleszenz der GaN Mikroinseln mit einer anderen Versetzung entgegengesetzten Burgersvektors reagieren und sind verantwortlich für den in Abschnitt 3.3 besprochenen Mechanismus II der Versetzungsreduktion.
- 2.) waagrechte Versetzungslien, die in keiner Verbindung zu einer vertikalen Versetzungslien stehen und nicht direkt an der Versetzungsreduktion beteiligt

sind.

Während erstere natürlich erwünscht sind, weil sie helfen, die Versetzungsichte zu reduzieren, sind Ursprung und Auswirkung der zweiten Art unbekannt. Beide Arten von waagrechten Versetzungslinien werden im Folgenden genauer betrachtet.

Beim Überwachsen abknickende Versetzungen

Ein große Zahl an weit ins Schichtsystem reichenden, abknickenden Versetzungen tritt bei den betrachteten Proben auf, wenn:

- Hohe Werte für die SiN Abscheidedauer gewählt wurden.
- Die SiN-Zwischenschicht direkt auf die AlN Nukleationsschicht, oder in geringem Abstand dazu, abgeschieden wurde.

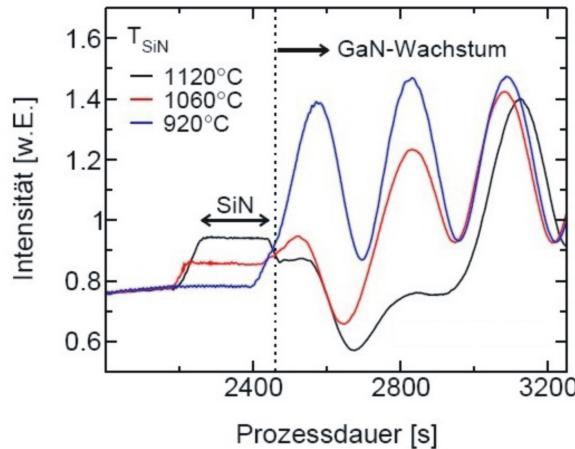


Abbildung 5.22: *In-situ Röntgenreflektometrie Messungen an Proben mit unterschiedlichen SiN-Abscheidetemperaturen für das Aufbringen der SiN-Zwischenschicht direkt auf die AlN-Pufferschicht (Für TEM Messungen stand ausschließlich die Probe mit SiN Abscheidetemperatur 1120° zur Verfügung). Man erkennt während der SiN Deposition auf der AlN Pufferschicht kein Abfallen der Kurve, d.h es kommt, im Gegensatz zur SiN Deposition nach 350 nm GaN (s. Abb. 5.9), zu keiner nachweisbaren Oberflächenaufrauung. Die Messungen wurden durchgeführt von J. Hertkorn, Universität Ulm [Her08/1].*

Bei In-situ-Reflektometrie-Messungen tritt bei SiN-Deposition auf die AlN-Pufferschicht (s. Abb. 5.22) kein Abfallen des Signals auf, entgegen dem Verhalten bei Deposition der SiN Schicht nach 350 nm GaN (vgl. Abb. 5.9). Daraus folgt,

dass bei SiN Wachstum direkt auf die AlN Pufferschicht keine Aufrauung der AlN-Oberfläche stattfindet. Die tatsächliche Probenoberfläche nach der SiN Abscheidung ist also geringer als bei SiN Wachstum in größerer Entfernung zur Nukleationsschicht. Daraus folgt, dass auch der SiN Bedeckungsgrad bei gleichgroßer Abscheidedauer höher ist als bei stärker Aufrauung der Oberfläche bei SiN Deposition in größerer Entfernung zur AlN Schicht. Das erklärt, dass auch für kleine Werte der SiN Abscheidedauer für die Zwischenschicht in tiefen Bereichen der Probe (direkt auf dem AlN Puffer bzw. in wenigen nm Entfernung) eine ähnlich hohe Zahl an abknickenden Versetzungslien auftritt wie bei längerer SiN Abscheidung in höheren Bereichen der Probe.

Die beiden Punkte lassen sich zusammenfassen: Eine hohe Zahl an waagrechten Versetzungslien tritt auf, wenn der SiN Bedeckungsgrad hohe Werte annimmt. Daraus folgt, dass (unter den für die untersuchten Proben gewählten Wachstumsbedingungen) der Grad der Versetzungsreduktion nach Mechanismus II mit steigendem Bedeckungsgrad ansteigt. Auch die Position der waagrechten Versetzungslien innerhalb der Probe ist abhängig vom SiN Bedeckungsgrad.

Zusammenfassend lässt sich sagen: Je höher der SiN Bedeckungsgrad ist, desto höher wachsen die GaN Mikroinseln vor der Koaleszenz, desto mehr Versetzungen laufen durch die Seitenfläche der Mikroinsel und knicken beim Überwachsen ab, desto stärker die Versetzungsreduktion nach Mechanismus II und umso höher reichen die abknickenden Versetzungen in c-Richtung in die Probe hinein. Die Höhe des Bereichs mit waagrechten Versetzungslien kann somit auch als eine ungefähre Abschätzung der Höhe der GaN Mikroinseln vor der Schichtkoaleszenz dienen.

Stapelfehler

In Abbildung 5.24 ist eine HRTEM Aufnahme einer waagrechten Versetzungslien ca. 300 nm überhalb der SiN-Zwischenschicht zu sehen, die ein typisches Beispiel für eine nicht mit einer vertikalen Versetzungslien verbundenen Versetzung darstellt²⁶. Deutlich zu erkennen ist die zusätzlich eingeschobene {0001}-Ebene und die Änderung der Stapelfolge ab ab abc bc bc ... (s. Abb. 5.24 2). Dieser Stapelfehlertyp ist ein gewachsener Defekt (im Gegensatz zu verspannungsinduzierten Defekten) [Mor08] und wird durch zwei Frank-Teilversetzungen Typ I (s. Kapitel 4.2) begrenzt. Eine Frank-Teilversetzung ist in Abb. 5.24 1) deutlich zu erkennen, die zweite liegt außerhalb der Aufnahme. Aus Veröffentlichungen weiß man,

²⁶Es handelt sich um ein Bild der Probe mit SiN-Zwischenschicht auf der AlN-Pufferschicht, SiN-Abscheidedauer 5 Minuten. Ähnliche Bilder existieren auch zu anderen Proben, so dass die Abbildung als typisch für diese Art von waagrechten Versetzungslien in Entfernung von der SiN-Zwischenschicht angesehen werden kann.

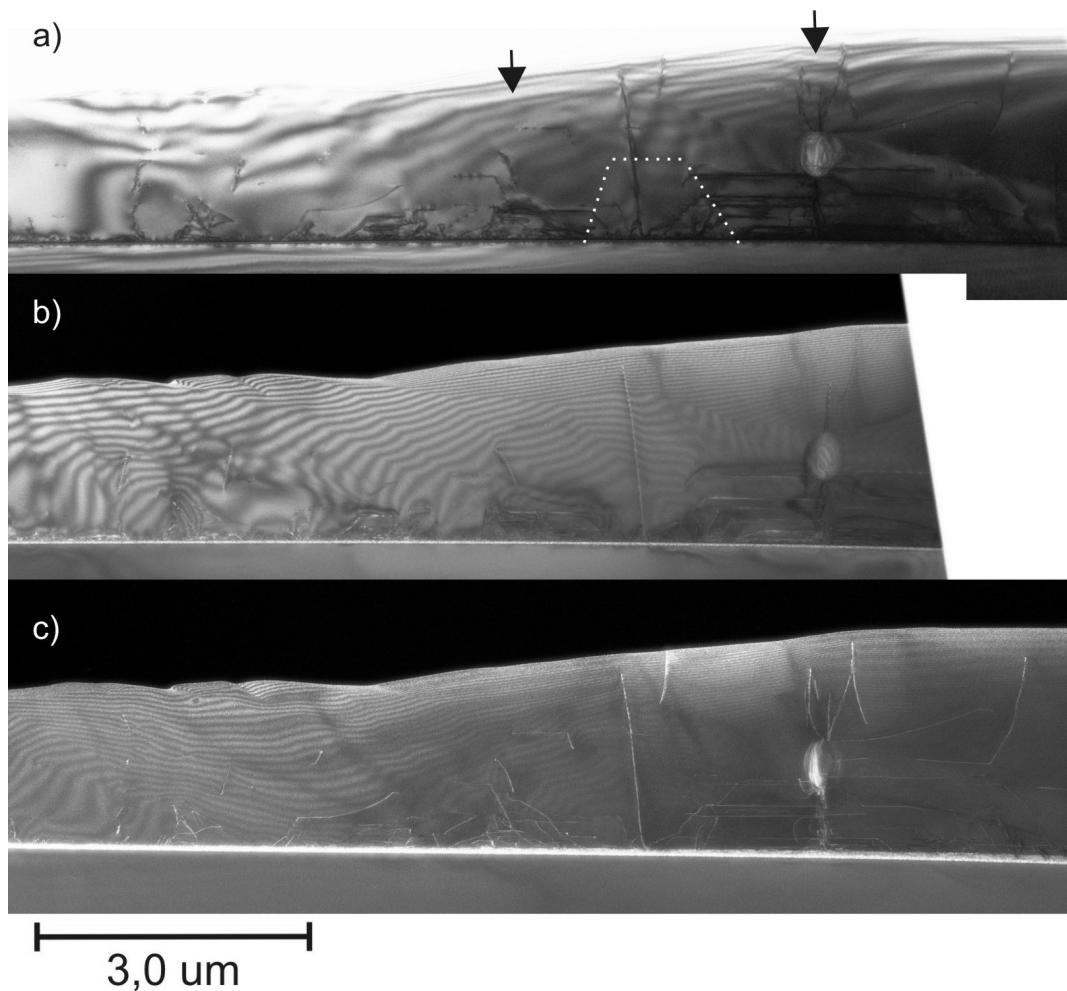


Abbildung 5.23: Hellfeld (a) und WBDF Aufnahmen (Schrauben- und gemischte Versetzungen (b), Stufen- und gemischte Versetzungen (c)) einer Probenstelle zur Veranschaulichung der Versetzungsreduktion durch Mechanismus II: Gepunktet eingezeichnet ist die Lage einer GaN-Mikroinsel mit abknickenden Versetzungen an den Seitenflächen, die nach Änderung der Wachstumsbedingungen zu lateralem Wachstum horizontal weiterlaufen. Mit Pfeilen markiert sind die Koaleszenzbereiche einzelner Mikroinseln: Während der Koaleszenz der einzelnen Inseln entstehen Stapelfehler (linker Pfeil) und zusätzliche Versetzungen (rechter Pfeil) entweder durch Reaktion der horizontalen Versetzungen und Änderung der Wachstumsrichtung oder durch leichte Verdrehung der einzelnen GaN Mikroinseln zueinander (Kleinwinkelkorngrenzen). Versetzungen, die nicht durch die Seitenflächen der Mikroinseln verlaufen erfahren keine Änderung der Ausbreitungsrichtung und setzen ihren Verlauf bis zur Probenoberfläche fort.

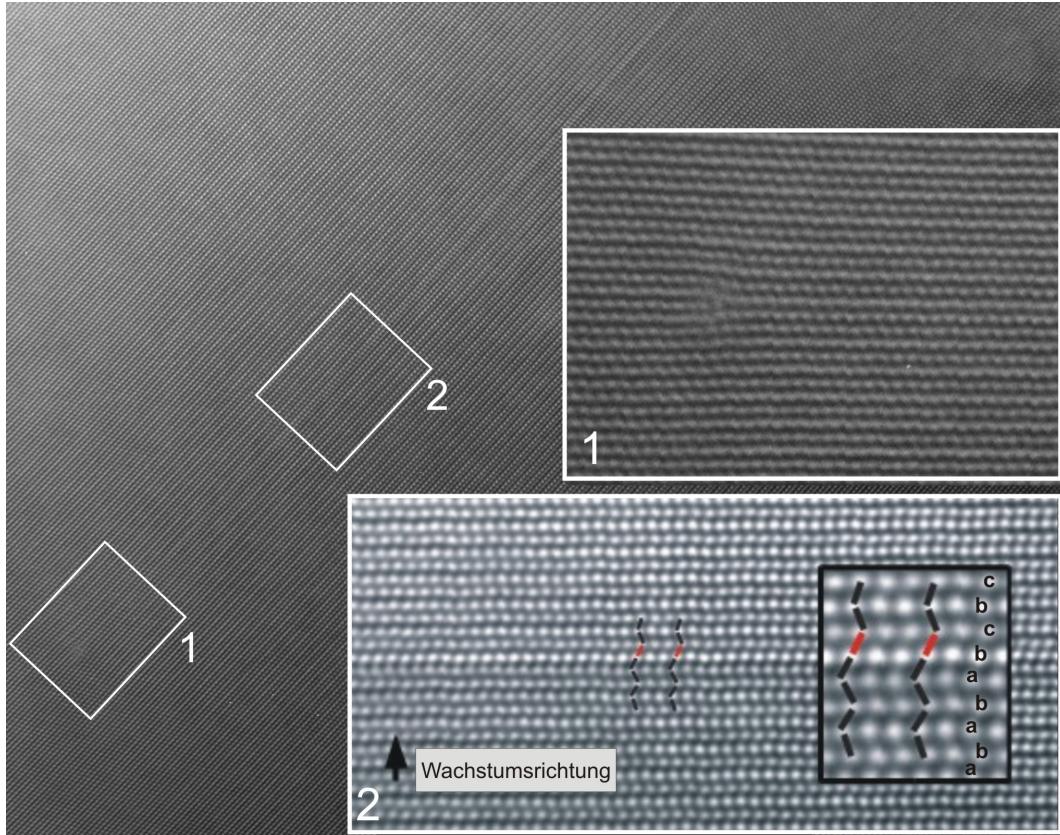


Abbildung 5.24: HRTEM Aufnahme im Bereich eines Stapelfehlers: Zu erkennen ist im vergrößerten Bild 1) eine Frankteilversetzung Typ I die den Stapelfehlerbereich begrenzt und im vergrößerten Bild 2) die Änderung der Stapelfolge ab ab abc bc bc

dass Stapelfehler dieses Typs während der Koaleszenz der GaN Inseln zu einer geschlossenen Fläche entstehen [Mor08] [Kle11/2].

Eine mögliche Erklärung, warum in Proben mit geringem SiN Bedeckungsgrad kaum Stapelfehler zu sehen sind, die Anzahl aber mit Erhöhung des SiN Bedeckungsgrads sprunghaft ansteigt, kann der Absolutwert des Bedeckungsgrads sein: Man kann vermuten, dass sich für 3 Minuten SiN Abscheidung effektiv keine GaN Inseln auf der SiN Schicht ausbilden, sondern eine mehr oder weniger verbundene GaN Schicht mit Unterbrechungen an den mit SiN maskierten Bereichen entsteht. Somit wachsen während der Koaleszenzphase keine einzelnen Inseln zusammen, sondern es werden vielmehr die Lücken in der nicht geschlossenen GaN Schicht aufgefüllt. Für 7 Minuten Abscheidezeit ist der Bedeckungsgrad deutlich höher, es bilden sich einzelne GaN Inseln aus, die erst in der Koaleszenzphase zusammenwachsen. Während des Zusammenwachsens der einzelnen, vorher autonomen, GaN Inseln entstehen die beschriebenen Stapelfehler.

HRXRD-Messungen

Das gehäufte Auftreten von waagrechten Versetzungslinien und Stapelfehlern, und die damit insgesamt verminderte Kristallqualität, erklärt auch die erhöhten Werte für die Halbwertsbreiten der XRD-Messungen (s. Tabelle 5.10). Allerdings sind dabei einige Faktoren zu berücksichtigen: Die Eindringtiefe der Röntgenstrahlung während der HRXRD Messungen liegt im Bereich von einigen μm . Dadurch werden immer sowohl die vertikalen, wie auch die horizontalen Versetzungslinien mitdetektiert, sofern sie gleichen Burgersvektor besitzen. Zusätzlich haben, natürlich abhängig vom Abstand der SiN-Zwischenschicht von der Grenzfläche zum Substrat, auch Versetzungen unterhalb der SiN Schicht einen Einfluss auf das Messergebnis, da auch sie in HRXRD Messungen mitdetektiert werden. Eine konkrete Aussage bezüglich der Versetzungsichte alleine durch HRXRD Messungen ist also schwierig, auffällige Resultate können und sollten vielmehr als Anstoß für eine genauere Analyse mit TEM dienen. Vergleicht man im konkreten Fall z.B. bei den Proben mit SiN-Zwischenschicht direkt auf der AlN-Nukleationsschicht die Werte der HRXRD Halbwertsbreiten für die Proben mit 3 min und 7 min Abscheidedauer miteinander, sieht man keinen dramatischen Unterschied in den XRD Halbwertsbreiten für beide untersuchten Reflexe. Zieht man jedoch zusätzlich den Wert der EPD Messungen in Betracht, wird klar, dass die Zahl der vertikalen Durchstoßversetzungen um einen Faktor 4 absinkt, sich dies jedoch nicht in den XRD Messungen widerspiegelt. Das deutet darauf hin, dass in der Schicht weitere Defekte vorhanden sind, die bei EPD Messungen nicht berücksichtigt werden, aber mit TEM nachgewiesen werden können: Betrachtet man zwei Proben mit in etwa gleichen EPD Resultaten, z.B. wieder die Probe mit 7 min SiN Abscheidedauer direkt auf der AlN-Nukleationsschicht mit der Referenz Probe mit SiN Position 350 nm nach der AlN-Nukleationsschicht, SiN Abscheidedauer 4 min, erkennt man eine auffällige Differenz in den XRD-Halbwertsbreiten, die durch den großen Unterschied in den in der Probe auftretenden waagrechten Versetzungslinien verursacht wird (vgl. Tabelle 5.11).

Auswirkungen waagrechter Versetzungslinien und Stapelfehler

Für waagrecht verlaufende Versetzungslinien und Stapelfehler sind keine direkten negativen Auswirkungen auf die Qualität der darüber gewachsenen Schichten und damit auf aus den Schichtsystemen gefertigten Bauteilen bekannt. Allerdings ist durch das starke dreidimensionale Wachstum bei hohem SiN Bedeckungsgrad die benötigte Schichtdicke, bis eine vollständig geschlossene und glatte Oberfläche erreicht wird, höher als bei geringem Bedeckungsgrad. Wird die Gesamtschicht-

dicke zu hoch, kommt es aufgrund von Verspannungen in der Probe zu Rissen. Der epitaxierte Wafer wird unbrauchbar. Das Bestreben geht dadurch zu einer möglichst starken Versetzungsreduktion bei angemessenem SiN-Bedeckungsgrad, um die Schichtdicke beim Eintreten vollständiger Koaleszenz möglichst gering zu halten.

5.2.6 Zusammenfassung SiN-Zwischenschicht

Anhand der untersuchten Probenserien lassen sich folgende Schlüsse für das Einbringen der SiN-Zwischenschicht ziehen :

- Der Bedeckungsgrad sinkt mit steigender Temperatur der SiN Deposition, durch eine stärker werdende Aufrauung der Oberfläche (GaN Nanoinseln) ab.
- Die Versetzungsreduktion steigt mit höher werdendem Bedeckungsgrad an. Dabei gibt es eine theoretische Grenze, die im nächsten Abschnitt beschrieben wird, jedoch in den untersuchten Proben nicht beobachtet wurde.
- Mit steigendem Bedeckungsgrad steigt auch die Schichtdicke bis zu vollständiger Koaleszenz an.
- Mit zunehmendem SiN Bedeckungsgrad steigt die Zahl der in der Probe auftretenden horizontalen Versetzungslien. Diese reichen dabei bei höherem SiN Bedeckungsgrad weiter in die Probe hinein, da sich im ersten Wachstumsschritt nach Überwachsen der SiN Maskierung höhere GaN Mikroinseln ausbilden. Dadurch sinkt insgesamt die kristalline Qualität der GaN Schicht.
- Der 3D-2D Anwachsprozess, wie er in den untersuchten Proben angewendet wurde, führte zu einer Verschlechterung der Ergebnisse der Versetzungsreduktion.

Zusammengefasst lässt sich sagen, dass die besten Ergebnisse der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben für im 2D Modus überwachsene Proben mit einer Position der SiN-Schicht 100 nm und 350 nm überhalb der AlN-Pufferschicht und eine Abscheidedauer von 4 Minuten bei $T_{SiN} = 1100 \text{ }^{\circ}\text{C}$ erzielt wurden. Für diese Werte sind Versetzungsreduktion und Kristallqualität am Besten, während die Schichtdicke bei vollständiger Koaleszenz im Rahmen bleibt.

Theoretische Grenze der Versetzungsreduktion

Betrachtet man die reine Versetzungsreduktion an der Probenoberfläche und lässt für die folgenden Überlegungen die Einflüsse von waagrechten Versetzungslien und höhere Koaleszenzdicke außen vor, gilt für die untersuchten Proben, dass die Versetzungsreduktion mit steigendem SiN Bedeckungsgrad ansteigt. Allerdings gibt es eine Grenze, ab der eine weitere Steigerung des Bedeckungsgrads keine Verbesserung mehr mit sich bringt bzw. sich die Ergebnisse wieder verschlechtern. Zwei Punkte sind für diese Überlegungen von entscheidender Bedeutung:

- Versetzungsreduktion erfolgt durch Reaktion horizontal verlaufender Versetzungen miteinander, d.h. verläuft eine Versetzung horizontal bis zum Koaleszenzbereich ohne auf eine weitere Versetzung zu treffen, ändert sich die Wachstumsrichtung im Koaleszenzbereich von horizontal wieder zu vertikal und sie läuft weiter bis zur Probenoberfläche.
- An den Koaleszenzbereichen entstehen, bei nicht exakt gleicher Orientierung der einzelnen GaN Mikroinseln neue Versetzungen, um die Gitterfehlstellung der einzelnen Inseln zueinander auszugleichen. Man spricht dabei von Kleinwinkelkorngrenzen, die Anzahl der entstehenden Versetzungen pro Flächeneinheit ist abhängig von der Größe der Verdrehung der GaN Mikroinseln.

Nimmt man diese beiden Punkte zusammen wird klar, dass es einen bestimmten Wert für den Bedeckungsgrad geben muss, ab dem keine Verbesserung der Versetzungsreduktion mehr auftritt, sondern die durch die Erhöhung des Bedeckungsgrads zusätzlich ausgelöschten Versetzungen durch die bei der Koaleszenz neu entstehenden aufgewogen werden. Erhöht man den Wert für den Bedeckungsgrad weiter, tritt eine Verschlechterung der Versetzungsreduktion ein.

Praktisch nachgewiesen könnte diese Grenze mit einer Probenserie mit variierender SiN-Depositionszeit über die für die untersuchten Proben verwendeten 7 min hinaus, bei ansonsten unveränderten Wachstumsbedingungen. Solche Strukturen standen für TEM Messungen nicht zur Verfügung.

5.3 V-Versetzung

Zum Abschluss des Kapitels über Versetzungen soll noch auf eine für Gruppe-III-Nitride typische Art von Defekt eingegangen werden, die V-Versetzung oder V-Defekt²⁷. V-Versetzungen entstehen unter bestimmten Wachstumsbedingungen

²⁷Der Name kommt von V-Versetzung (engl. v-groove) wird wegen der v-förmigen Erscheinung in TEM Querschnittsaufnahmen verwendet.

und Schichtzusammensetzungen im Bereich einer InGaN/GaN Heterostruktur. In diesem Abschnitt werden die Entstehung von V-Versetzen und ihre Auswirkungen auf die optoelektronischen Bauteile beschrieben und eigene Messergebnisse an Proben, die von Osram-OS zur Verfügung gestellt wurden, vorgestellt.

5.3.1 Definition und Entstehung von V-Versetzen

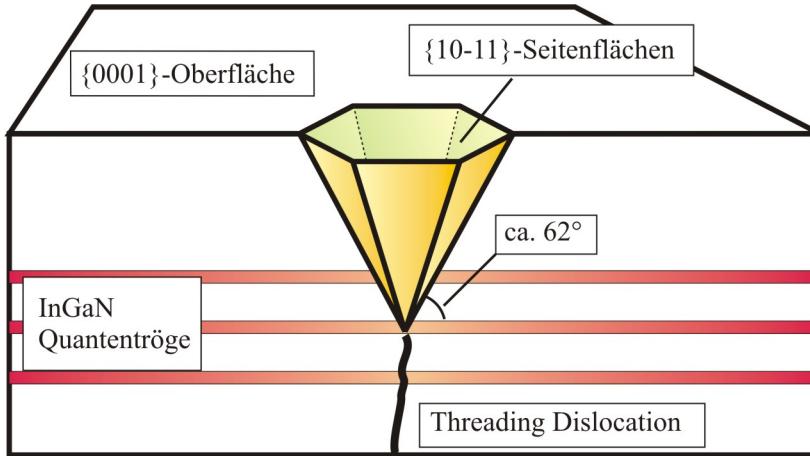


Abbildung 5.25: Darstellung der Struktur einer V-Versetzung: Die Seitenflächen der invertierten Pyramide entsprechen den $\{10\bar{1}1\}$ -Ebenen der Wurtzitstruktur, Wachstumsrichtung ist die $\langle 0001 \rangle$ -Richtung.

Eine V-Versetzung (V-Defekt, englisch: v-groove) besteht aus einer invertierten, hexagonalen Pyramide, die von den $\{10\bar{1}1\}$ -Ebenen begrenzt ist und mit einer Störung der Periodizität des Kristallgitters verbunden ist. In Abb. 5.25 ist die Struktur dieser Defektart dargestellt, wobei die Wachstumsrichtung in dieser schematischen Darstellung von unten nach oben verläuft.

Der Entstehungsmechanismus von V-Versetzen wird in der Literatur kontrovers diskutiert. Einige Faktoren werden jedoch in fast allen Veröffentlichungen angeführt:

Eine V-Versetzung entsteht immer an einer Störung des Kristallgitters, z.B. einer Versetzung, Teilversetzung oder einer starken Verspannung des Kristallgitters, wie sie z.B. in sehr Indium-reichen Bereichen von Quantentrögen auftritt. Entscheidend für das Auftreten von V-Versetzen an den eben genannten Stellen ist die Wachstumstemperatur. Um den Einbau von Indium in die Quantentröge zu bewerkstelligen, verwendet man, wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, geringere Temperaturen als beim Wachstum von GaN. Bei solchen Temperaturen tendieren Nitride, im Speziellen In(Ga)N, dazu, nicht ganzflächig zweidimensional zu wachsen, sondern bilden besonders in der Umgebung von gestörten Bereichen des

Kristallgitters Facettenwachstum aus [Kim98], [Han05]. Wird die niedrige Wachstumstemperatur über einen größeren Bereich des Schichtsystems (z.B. den gesamten MQW-Bereich) beibehalten, bilden sich an den Gitterstörstellen invertierte hexagonale Pyramiden aus, die erst bei einer Erhöhung der Wachstumstemperatur wieder geschlossen und überwachsen werden.

5.3.2 Auswirkungen von V-Versetzungen auf Leistungsdaten von optoelektronischen Bauteilen

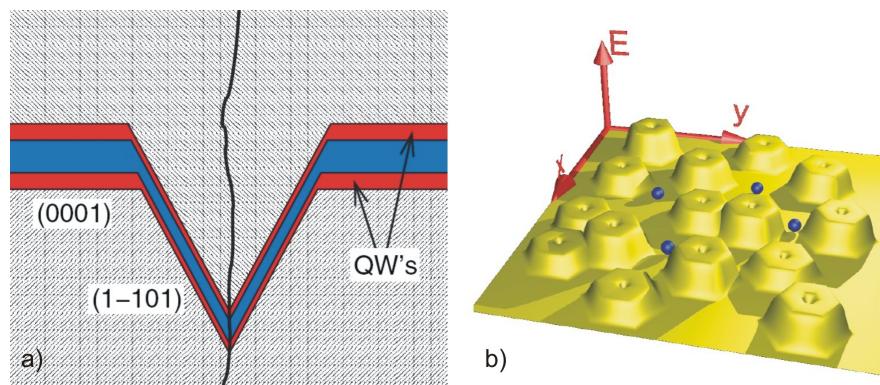


Abbildung 5.26: Auswirkung von V-Versetzen auf die Energielandschaft um Versetzungen: Durch die engere MQW-Struktur auf den Seitenfacetten (a), die zu einer höheren Energielücke in diesen Bereichen führt entsteht die in (b) skizzierte Energielandschaft. Abbildungen aus [Han05].

Genau wie über den Entstehungsmechanismus gibt es auch über die Auswirkungen von V-Versetzen auf die optischen und elektrischen Eigenschaften von Leucht- und Laserdioden in der Literatur keine eindeutige Aussage. Von Hangleiter et al. [Han05] wird ein positiver Effekt der V-Defekte auf die interne Quanteneffizienz beschrieben. An den Seitenfacetten der V-Versetzen entsteht die selbe MQW-Struktur wie auf der c-Facette, allerdings mit viel geringeren Quantentrog- und Barrierenbreiten (s. Abb. 5.26 a)). Durch Messungen und theoretische Herleitung wird gezeigt, dass die Bandlücke der Quantentröge an den Seitenfacetten größer als die der Quantentröge auf der c-Facette ist. Dadurch entsteht eine Energiebarriere um jede einzelne Versetzung und damit eine Abschirmung der Defekte; es findet keine nicht-strahlende Rekombination an Versetzungen statt, die interne Quanteneffizienz wird erhöht. Ein Bild der von Hangleiter et al. skizzierten Energielandschaft ist in Abb. 5.26 b) zu sehen. Im Gegensatz dazu wird z.B. von Wetzel et al. [Wet05] berichtet, dass sie die besten Ergebnisse an

LEDs mit möglichst wenigen V-Versetzungen und möglichst glatter Oberfläche erzielen. Das liege unter anderem daran, dass sich durch V-Versetzungen und die dadurch entstehenden $\{10\bar{1}1\}$ -Oberflächen die effektive (0001)-Oberfläche verringert, worunter die Effizienz der Bauteile leidet.

Endgültig geklärt werden kann und soll die Problematik um Vor- und Nachteile des Vorhandenseins von V-Versetzungen hier nicht. Es scheint aber, dass die Vorteile der Dekoration von Versetzungen und die damit verbundene Effizienzsteigerung von Bauteilen durch Verhindern nicht-strahlender Rekombination umso entscheidender ist, je geringer die emittierte Wellenlänge des Bauteils und damit je geringer die In-Konzentration in den Quantentrögen (s. z.B. auch [Wet04]). Hangleiter et al. behandeln LEDs im blauen Wellenlängenbereich, Wetzel et al. im grünen, d.h. die In-Konzentrationen in den Quantentrögen sind bei den von Wetzel untersuchten Proben deutlich höher. Dies deutet darauf hin, dass in diesem Zusammenhang ein anderer Effekt im Quantentrogwachstum eine wichtige Rolle spielt, der zu unterschiedlichen Interpretationen der Auswirkungen von V-Versetzungen führt: Die In-Verteilung in den Quantentrögen ist nicht gleichmäßig sondern unterliegt Schwankungen, sowohl im μm -, als auch im nm-Bereich. Gerade die Schwankungen im nm-Bereich, d.h. die Ausbildung von einigen nm großen Clustern mit erhöhter In-Konzentration führt zu einer Lokalisierung der Ladungsträger in diesen Bereichen. Die Lokalisierung ist umso größer, je größer der Unterschied zwischen der umgebenden In-Konzentration und der In-Konzentration im Cluster ist. Nach Messungen von [Eng05] wird dieser Unterschied mit steigender nomineller In-Konzentration höher. Diese Lokalisierung der Ladungsträger an In-reichen Clustern verringert die nichtstrahlende Rekombination an Versetzungen [Muk99] [Nak99], d.h. man erhält eine Abschirmung der Versetzungen, die mit steigender In-Konzentration ansteigt. Für den blauen Wellenlängenbereich scheint die Lokalisierung durch die geringen Unterschiede in der In-Konzentration zwischen In-reichen Clustern und InGaN-Hintergrund und den damit geringen Energiefüllungs-Ungleichheiten nicht stark genug, es findet weiterhin nicht-strahlende Rekombination an Versetzungen statt, die die Effizienz der Bauteile verringert. Für diese Schichtsysteme macht eine Dekoration der Versetzungen nach Hangleiter Sinn, es tritt durch das gezielte Wachstum von V-Defekten eine Effizienzsteigerung auf. Für Bauteile im grünen Wellenlängenbereich ist die Lokalisierung durch den großen Unterschied der In-Konzentrationen zwischen In-reichen Clustern und InGaN Hintergrund und den damit verbundenen hohen Unterschieden der Energiefüllungen groß genug, eine Maskierung der Versetzungen bringt keine Vorteile mehr mit sich. Im Gegenteil wird die Effizienz der Bauteile durch den geringeren nutzbaren Bereich der (0001)-Oberfläche sogar verschlechtert²⁸.

²⁸Gestützt wird diese Vermutung durch eine Messung von Engl [Eng05]. Er konnte nachweisen, dass eine Reduzierung der Versetzungsdichte in InGaN/GaN MQW Strukturen nur im

Für die im TEM untersuchten Proben stand die Entstehung und Ausbreitung von V-Versetzungen im Vordergrund, im nächsten Abschnitt wird der Einfluss der Wachstumstemperatur der GaN-Barrieren in der aktiven Zone auf die Entstehung und Ausbreitung von V-Versetzungen untersucht.

5.3.3 Auswirkung der Wachstumstemperatur der GaN Barrieren auf die Entstehung von V-Versetzungen

Zur Analyse der Auswirkungen der Wachstumstemperaturen standen zwei Teststrukturen²⁹ auf SiC Substrat (SiC-1 und SiC-2) zur Verfügung, die mit dem gleichen prinzipiellen Schichtaufbau gewachsen wurden (s. Abb. 5.27). Der einzige Unterschied lag in der Wachstumstemperatur der GaN Barrieren zwischen den InGaN QWs, die bei Probe SiC-2 im Vergleich zu SiC-1 erhöht wurde. Bei Probe SiC-1 wurde beim Wachstum der GaN-Barrieren die Wachstumstemperatur der InGaN QWs beibehalten (üblicherweise 800 °C bis 850 °C), bei SiC-2 wurde für das Wachstum der GaN-Barrieren die gewöhnliche, höhere Wachstumstemperatur von GaN verwendet (üblicherweise 1100 °C bis 1150 °C)³⁰. Betrachtet man

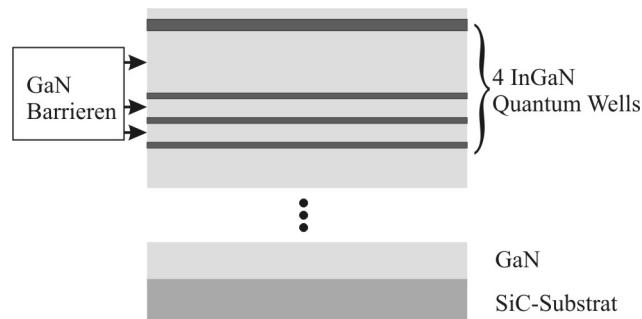


Abbildung 5.27: Prinzipieller Schichtaufbau der Proben SiC-1 und SiC-2. Der Unterschied zwischen beiden Proben liegt in der Wachstumstemperatur der GaN Barrieren.

zunächst PV-Aufnahmen der beiden Proben (s. Abb. 5.28), erkennt man bei Probe SiC-1 sechseckige Öffnungen in der Probenoberfläche. Bei Probe SiC-2 sieht

ultravioletten und blauen Bereich des Spektrums eine Verbesserung der Lichtaustrittsleistung mit sich bringt. D.h. Verluste durch nichtstrahlende Rekombination von Ladungsträgern spielen durch das dort schwache Confinement an In-reichen Clustern nur in diesen Wellenlängenbereichen eine Rolle.

²⁹Es handelt sich nicht um vollständig epitaxierte LED-Heterostrukturen, das Wachstum wurde nach der aktiven Zone abgebrochen, die p-dotierten Schichten wurden nicht epitaxiert.

³⁰Die tatsächlichen Wachstumstemperaturen wurden von Osram-OS aus Geheimhaltungsgründen nicht kommuniziert.

man die Durchstoßpunkte der Versetzungen durch die Probenoberfläche, allerdings keine weiteren besonderen Merkmale an der Probenoberfläche, kein Indiz für V-Versetzung. Zusätzliche Sicherheit über das Entstehen von V-Versetzung in SiC-1 und das Ausbleiben derselben in SiC-2 erhält man bei einem Blick auf Querschnittspräparate der beiden Schichten (s. Abb. 5.29). Während man bei SiC-1 klar die V-förmigen Öffnungen in der Oberfläche der Probe erkennen kann, die innerhalb der Probe an Versetzungen entstehen, besitzt SiC-2, auch im Bereich von Versetzungen, eine glatte Oberfläche ohne jegliche Art von Vertiefungen.

Betrachtet man die Öffnungen an der Oberfläche von PV-Präparaten von SiC-1

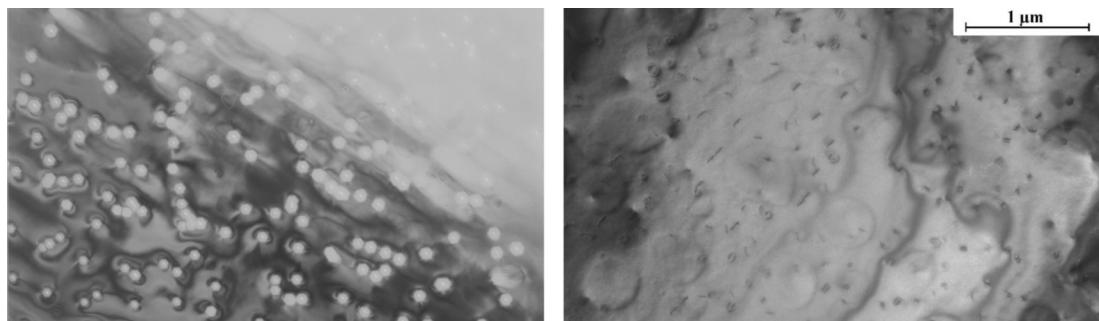


Abbildung 5.28: Plan-View Aufnahmen der beiden Proben SiC-1 (links) und SiC-2 (rechts): Bei SiC-1 sind im Gegensatz zu SiC-2 die hexagonalen Öffnungen an der Oberfläche des Präparats zu erkennen.

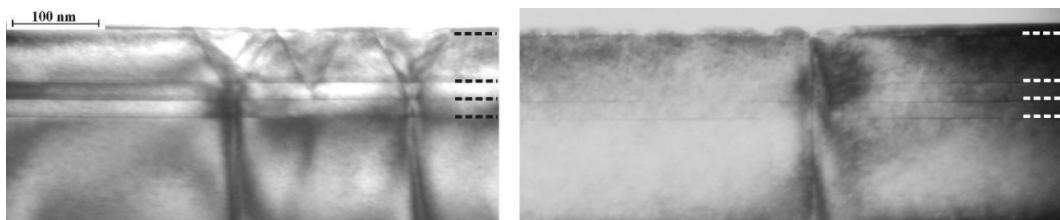


Abbildung 5.29: Querschnittsaufnahmen der beiden Proben SiC-1 (links) und SiC-2 (rechts): Deutlich sind bei SiC-1 im Gegensatz zu SiC-2 die V-förmigen Vertiefungen an der Oberfläche des Präparats zu erkennen, die an Versetzungen auf Höhe des zweiten Quantum-Wellen entstehen. Die Lage der Quantum-Wellen ist gestrichelt angedeutet.

genauer (s. Abb. 5.30), so kann man besonders in dickeren Bereichen des PV-Präparates sehr genau die hexagonale Pyramidenstruktur und die Durchstoßpunkte der darunter liegenden Versetzungen erkennen (s. Abb. 5.30 a), c1) und c2)). In dünneren Bereichen des Präparats ist die Pyramidenstruktur nicht mehr sichtbar, man erkennt lediglich eine sechseckige Öffnung in der Oberfläche der

Probe (s. Abb. 5.30 b) und c3)). Der in der Mitte des Hexagons liegende weiße Bereich entsteht, wenn die Probe an der beobachteten Stelle so dünn ist, dass die Spitze der Pyramide während des abschließenden Ionen-Ätzvorgangs bei der Probenpräparation bereits abgetragen wurde. Die Asymmetrie dieses Lochs lässt sich auf den asymmetrischen Ätzvorgang zurückführen (s. Kapitel 2.5.2). Da alle in den PV-Präparaten betrachteten Hexagone die gleiche räumliche Ausdehnung haben, liegt die Vermutung nahe, dass sie an der selben Stelle des Schichtsystems entstehen. Diese Vermutung konnte anhand von Querschnittspräparaten bestätigt werden. Alle in Querschnittsproben betrachteten V-Versetzungen entstehen am zweiten Quantentrog (s. Abb. 5.31 a)). Dass es sich bei den untersuchten Vertiefungen tatsächlich um die in der Literatur beschriebenen V-Versetzung handelt, konnte eindrucksvoll durch eine besondere Abbildungstechnik nachgewiesen werden. Verkippt man ein Querschnittspräparat im TEM senkrecht zur (0001)-Fläche, durchstrahlt der Elektronenstrahl sowohl die Ober- als auch die Seitenfläche des Querschnittspräparats. Man erhält einen dreidimensionalen Eindruck der Schichtbereiche um die V-Versetzung und kann deutlich die in die Oberfläche hineinweisende, invertierte hexagonale Pyramide erkennen (s. Abb. 5.31 b)).

Es konnte durch diese Messungen bestätigt werden, dass das Entstehen von V-Versetzungengen eng mit der Wachstumstemperatur verbunden ist. Während in Probe SiC-2 durch die Erhöhung der Wachstumstemperatur der Barrieren die Öffnungen der V-Defekte wieder eingebettet wurden, breiten sich in Probe SiC-1, bei niedrigerer Wachstumstemperatur der Barrieren, die V-Versetzung bis zur Oberfläche der Probe aus³¹.

5.3.4 Einfluss des Versetzungstyps auf die Entstehung von V-Versetzung

Im nächsten Schritt wurde betrachtet an welchen Gitterdefekten die V-Versetzung entstehen. Bei allen Präparaten, die von Probe SiC-1 angefertigt wurden, wurde keine V-Versetzung beobachtet, die ohne eine darunterliegende Versetzung entsteht. Der Grund dafür liegt in der relativ geringen In-Konzentration in den InGaN Quantentrögen, die nicht zu einer Bildung von Kristalldefekten (z.B. waagrech verlaufenden Anpassungsversetzungen) führt. Durch TEM-Aufnahmen im WBDF Modus (s. Abb. 5.32) wurde genauer untersucht, an welchen Versetzungstypen man die Entstehung von V-Versetzung beobachten kann. In der Literatur ist dazu keine allgemeine Meinung zu finden, oftmals wird jedoch berichtet,

³¹Die genauen Wachstumstemperaturen der MQW Strukturen wurden von Osram-OS nicht weitergegeben und können so hier nicht veröffentlicht werden.

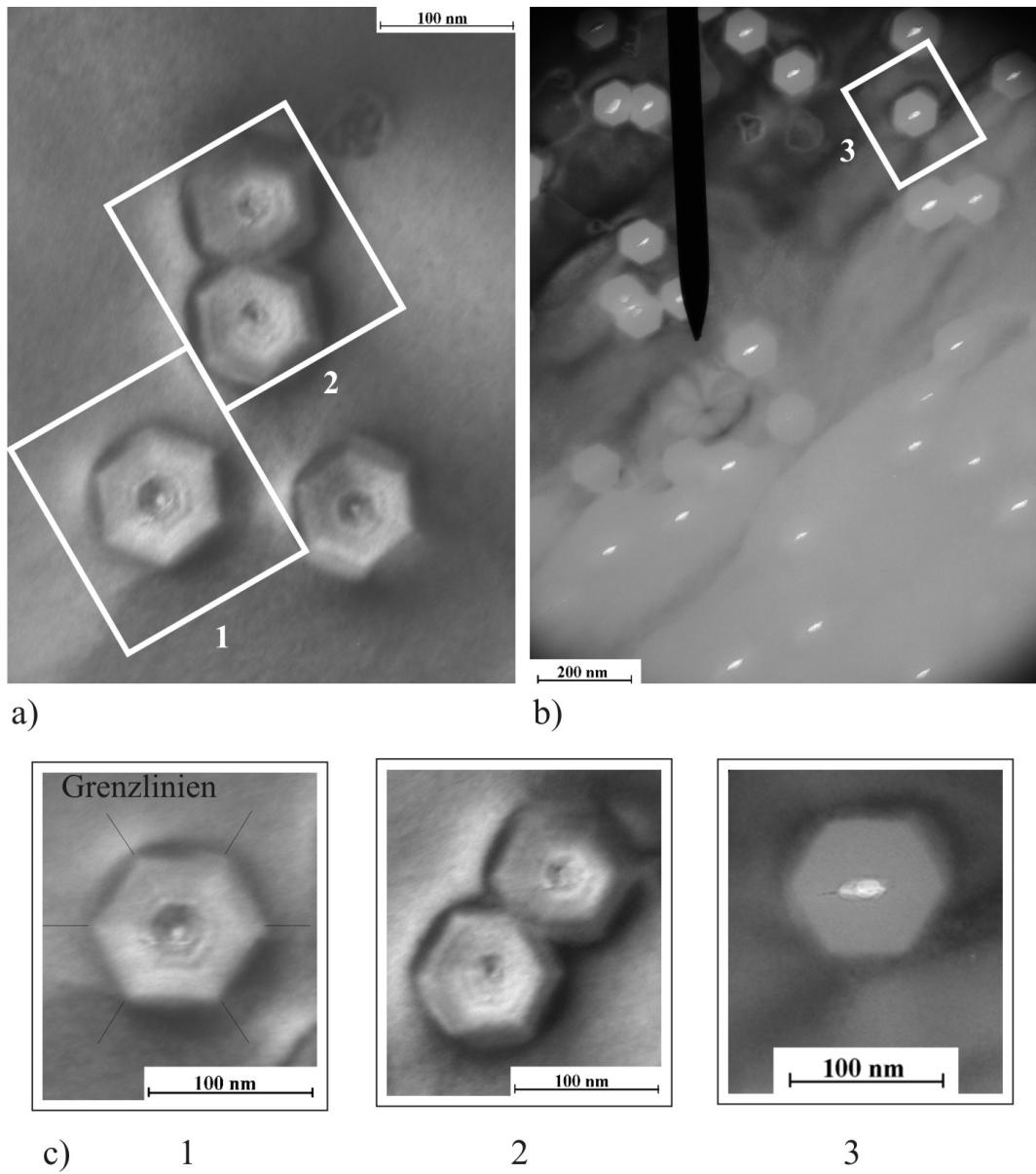


Abbildung 5.30: PV-Aufnahmen der Probe SiC-1: In dickeren Probenbereichen kann man die hexagonale Pyramidenstruktur sowie den unterhalb der V-Versetzung liegenden Durchstoßpunkt der Versetzung erkennen (a, c1, c2), in dünnen Bereichen sieht man unter der hexagonalen Öffnung das Loch der bei der Pabenpräparation abgetragenen Spitze der Pyramide. Diese Öffnung ist wegen der Asymmetrie des Ätzprozesses nicht rund, sondern schlitzförmig.

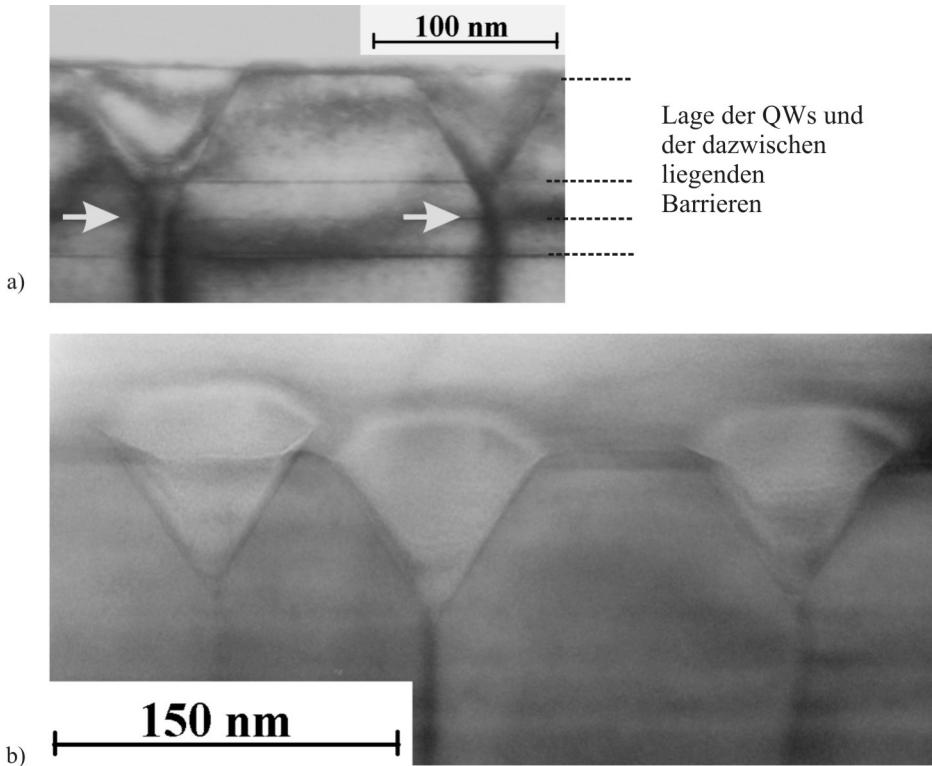


Abbildung 5.31: TEM-Aufnahmen an einem Querschnittspräparat des Schichtsystems SiC-1:

- a) normale Querschnittsaufnahme, der Entstehungspunkt für alle beobachteten V-Versetzungen liegt auf der Höhe des 2. Quantum-Wellen.
- b) Aufnahme mit senkrecht zur (0001)-Fläche verkippter Probe, man erhält einen dreidimensionalen Eindruck der invertierten, hexagonalen Vertiefungen an der Probenoberfläche.

dass V-Versetzungen vorrangig an Versetzungen mit Schraubenanteil entstehen [Che01] [Wu98]. Betrachtet man die Versetzungslinien in den Bildern in Abb. 5.32 genauer, erkennt man, dass V-Versetzungen sowohl an gemischten Versetzungen (rechter Pfeil) wie auch an reinen Stufenversetzungen (linker Pfeil) entstehen. Es konnte keine V-Versetzung beobachtet werden, die an einer reinen Schraubenversetzung entsteht, was aber wohl v.a. auf den sehr geringen Prozentsatz von reinen Schraubenversetzungen bei Wachstum von GaN auf SiC zurückzuführen ist. Es kann nicht mit Sicherheit ausgeschlossen werden, dass V-Versetzungen unter den verwendeten Bedingungen nicht an reinen Schraubenversetzungen entstehen, nach den zu diesem Thema veröffentlichten Artikeln ist es aber sehr unwahrscheinlich.

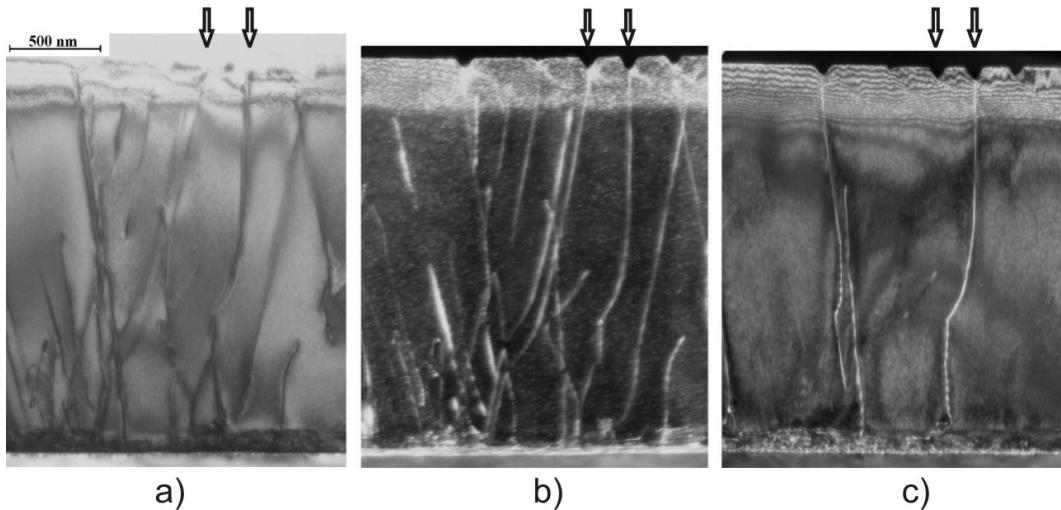


Abbildung 5.32: Querschnittsaufnahmen an derselben Stelle der Probe SiC-1:

- a) Hellfeld, alle Versetzungen
 - b) WBDF, Versetzungen mit Stufenkomponente
 - c) WBDF, Versetzungen mit Schraubenkomponente
- V-Versetzungen entstehen sowohl an gemischten Versetzungen (rechte Pfeile) wie auch an reinen Stufenversetzungen (linke Pfeile).

5.4 Zusammenfassung

Bisher werden, v.a. aus Kostengründen, fast alle kommerziell erhältlichen Gruppe-III-Nitrid basierten LEDs und LDs auf Fremdsubstraten abgeschieden. Die Gitterfehlanpassung zwischen den verwendeten Substratmaterialien führt aber zu einer hohen Versetzungsdichte in den gewachsenen Schichten. Es ist bekannt, dass durch Versetzungen die optischen und elektrischen Eigenschaften von GaN-basierten Bauteilen negativ beeinflusst werden, da sie u.a. als Zentren nichtstrahlender Rekombination von Ladungsträgern wirken. Um diese Beeinträchtigung abzuschwächen wird durch verschiedene Methoden versucht, die Versetzungsdichte zu reduzieren.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Vielzahl an Messungen zur Versetzungsanalyse durchgeführt, angefangen von der Kontrolle etablierter Prozesse durch Querschnittspräparate, über Verbesserungsmethoden bestehender Maßnahmen zur Versetzungsrückbildung bis hin zur Analyse neuer Methoden zur Abscheidung versetzungsrückgebauter Schichten.

Versetzungsanalyse an Proben mit verschiedenen Substraten

Zum Vergleich der Auswirkungen verschiedener Substrate wurden Proben untersucht, die heteroepitaktisch auf Saphir- (Al_2O_3) und Siliziumkarbid- (SiC) Substraten, sowie solche, die homoepitaktisch auf GaN gewachsen wurden. Für Wachstum auf Saphir und Siliziumkarbid wurden zunächst die Verhältnisse der verschiedenen Versetzungstypen bestimmt und der Verlauf der Versetzungen im Schichtsystem betrachtet. Die Ergebnisse der Versetzungstypanalyse sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst und entsprechen den aus der Literatur bekannten Werten. Ursächlich für die Unterschiede im Verhältnis der Versetzungstypen und den unterschiedlichen Verlauf der Versetzungen sind die verschiedenen Wachstumsmodi für Epitaxie auf Al_2O_3 (3D Inselwachstum in den ersten Wachstumsschritten) und SiC (vorrangig 2D Wachstum).

Die Qualität homoepitaktischen Wachstums auf GaN-Substraten hängt vorrangig von der Güte der zur Verfügung stehenden Substrate ab. Ist die Versetzungsdichte in den Substraten zu hoch oder ist die Oberfläche der Substrate durch fehlerhafte Behandlung beschädigt, ist die Versetzungsdichte auch in den epitaxierten Schichten sehr hoch, im schlechtesten Fall höher als bei Heteroepitaxie. Ist die Substratqualität gut, sind Schichten mit einer Versetzungsdichte $< 10^6$ möglich. Leider war über die Hersteller und die Fertigungsmethoden der verschiedenen GaN-Substrate keine Information vorhanden, so dass eine genauere Analyse dazu nicht möglich ist.

Versetzungsreduktion durch eine SiN - Zwischenschicht

Eine einfache und schnelle Methode zur Reduzierung der Versetzungsdichte in heteroepitaktisch gewachsenem GaN stellt das Einbringen einer in-situ abgeschiedenen SiN-Zwischenschicht dar. Die Dicke der abgeschiedenen SiN Schicht entspricht dabei weniger als einer Monolage, es wird ein Teil der Oberfläche mit SiN maskiert, ein Teil bleibt frei. Das auf die SiN Schicht folgende GaN Wachstum ist dem Wachstum während des ELO-Prozesses ähnlich: GaN wächst zunächst inselförmig auf den nicht maskierten Bereichen auf, bis nach Änderung der Epitaxiebedingungen zu stärkerem lateralem Wachstum eine Koaleszenz der einzelnen Inseln herbeigeführt wird. Die Versetzungsrückbildung erfolgt dabei durch zwei Mechanismen, die, abhängig von den gewählten Wachstumsbedingungen in unterschiedlichem Umfang zur Versetzungsrückbildung beitragen: Durch beim lateralen Überwachsen der SiN-maskierten Bereiche in Höhe der SiN Schicht abknickende Versetzungen (Mechanismus I) und durch Versetzungen, die an den Seitenflächen der beim Überwachsen der SiN Schicht entstehenden GaN Mikroinseln ihre Ausbreitungsrichtung von vertikal zu horizontal ändern (Mechanismus II). Die Versetzungsrückbildung erfolgt durch Reaktion der abgeknickten Versetzun-

gen miteinander: Treffen Versetzungen aufeinander, reagieren sie miteinander, löschen sich bestenfalls bei passendem Burgersvektoren aus oder setzen sich als eine Versetzung fort. Dabei entsteht in der Nähe der SiN Schicht ein komplexes Versetzungsnetzwerk.

In verschiedenen Versuchsreihen wurden die Wachstumsparameter und die Lage der SiN-Schicht sowie die Epitaxiebedingungen des auf die SiN Schicht folgenden GaN Wachstums verändert:

In einer ersten Versuchsreihe wurde analysiert, welchen Einfluss die SiN Position auf die Reduktion der Versetzungen hat. Dazu wurden Proben untersucht, bei denen das SiN (Abscheidedauer 4 Minuten) nach dem Wachstum von 15, 50, 100, 350, 1000 nm undotiertem GaN auf der AlN Pufferschicht aufgebracht wurde. Während für die Versetzungsdichte, die durch EPD Messungen bestimmt wurde, für alle Proben, unabhängig von der SiN Position, Werte von $< 4 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ erreicht wurden, wurde durch TEM Messungen nachgewiesen, dass zwar die Reduktion der vertikal verlaufenden Versetzungen in den Proben annähernd gleich stark ist, aber in der Probe mit SiN-Schicht nah an der Nukleationsschicht eine auffällig große Zahl an vertikal verlaufenden Versetzungslien sichtbar ist.

In einem weiteren Experiment wurden die GaN Anwachsbedingungen im Anschluss an die SiN Maskierung verändert. Dabei wurden zwei Prozesse miteinander verglichen: Erstens, als Referenz, der 2D-Standard-Prozess, zweitens, als Versuch effizienteres Abknicken der Versetzungen herbeizuführen und die Versetzungsdichte weiter zu senken, ein 3D-2D-Prozess. Der Unterschied zwischen den beiden Prozessen liegt in der Ausprägung des dreidimensionalen Inselwachstums vor Änderung der Epitaxiebedingungen zu lateralem Wachstum (3D Schritt) und einem forcierten lateralnen Wachstumsschritt nach Ausbildung der 3D Inseln mit Herbeiführung der Inselkoaleszenz (2D Schritt). Anhand von TEM Aufnahmen konnte gezeigt werden, dass die Versetzungsreduktion bei gleicher SiN Abscheidedauer beim 3D-2D-Prozess geringer als beim Standardprozess ist. Eine Versetzungsreduzierung ähnlich der beim Standardprozess mit 3 min Abscheidedauer wurde erst bei einer SiN Abscheidedauer von 7 min erreicht. Begründet werden kann das folgendermaßen: Durch die veränderten Wachstumsparameter im 2D Schritt, genauer durch die erhöhte Wachstumstemperatur in der MOVPE Anlage, wird eine teilweise Desorption der SiN Schicht verursacht. Der mit SiN maskierte Bereich wird dadurch drastisch reduziert, ein großer Teil der Versetzungen setzt sich ohne Abzuknicken in die darüber gewachsenen Schichten fort. Diese Begründung wird gestützt durch In-situ Reflektometrie Messungen während des Epitaxieprozesses.

Bei den letzten vermessenen Probenserien wurde die Abscheidedauer der SiN Zwischenschicht zwischen 3 min, 5 min und 7 Minuten variiert. Die SiN-Zwischenschicht wurde dabei bei der ersten Serie direkt auf die AlN-Pufferschicht epitaxiert, bei

der zweiten war die Position der SiN Schicht nach 350 nm auf die AlN Pufferschicht epitaxiertem GaN. Für diese Serie wurde der oben beschriebene 3D-2D-Prozess verwendet. Für beide Probenserien wurde festgestellt, dass die Versetzungsreduktion mit zunehmendem SiN Bedeckungsgrad ansteigt. Jedoch ist aus TEM Bildern auch klar ersichtlich, dass mit zunehmendem Bedeckungsgrad, insbesondere bei SiN Abscheidung auf der AlN Pufferschicht, die Zahl der vertikal verlaufenden Versetzungslinien drastisch ansteigt.

Diese horizontalen Versetzungslinien wurden im letzten Abschnitt ausführlicher untersucht. Man muss im Allgemeinen zwei verschiedene Arten unterscheiden: Waagrechte Versetzungslinien, die durch abknickende Versetzungen entstehen und horizontal weiterlaufen, bis sie mit anderen Versetzungen reagieren und sich bei passendem Burgersvektor auslöschen (s.o.), sowie horizontale Versetzungslinien, die in keiner Verbindung zu einer vertikalen Versetzungslinie stehen, nicht direkt an der Versetzungsreduktion beteiligt sind und deren Ursprung zunächst unbekannt ist. Durch HRTEM Abbildungen konnte nachgewiesen werden, dass diese zweite Art der waagrechten Versetzungslinien mit einer Änderung der Stapelfolge ab ab abc bc bc ... einhergehen und durch Frank-Teilversetzungen Typ III begrenzt sind. Es ist bekannt, dass diese Art von Stapelfehler gewachsene Defekte (im Gegensatz zu verspannungsinduzierten Defekten) sind und während der Koaleszenz der GaN Inseln zu einer geschlossenen Fläche entstehen. Anhand der untersuchten Proben konnte gezeigt werden, dass eine hohe Zahl dieser Stapelfehler dann auftritt, wenn der SiN Bedeckungsgrad hohe Werte annimmt. Die Stapelfehler entstehen, wenn vorher nicht miteinander verbundene einzelne Inseln während der Koaleszenzphase zusammenwachsen. Damit ist auch zu begründen warum in Proben mit geringem SiN Bedeckungsgrad kaum Stapelfehler zu sehen sind: Das Entstehen von Stapelfehlern ist abhängig vom Absolutbetrag der SiN Bedeckung, für geringen SiN Bedeckungsgrad bilden sich effektiv keine GaN Inseln auf der SiN Schicht aus, sondern eine mehr oder weniger verbundene GaN Schicht mit Unterbrechungen an den mit SiN maskierten Bereichen. Werden die Lücken in der GaN Schicht während der Koaleszenzphase aufgefüllt, entstehen keine Stapelfehler. Zusätzlich konnte gezeigt werden, dass die Position der Stapelfehler innerhalb der Probe abhängig vom SiN Bedeckungsgrad ist. Umso höher die Inseln vor der Koaleszenz wachsen, umso höher reichen die Stapelfehler in die Probe hinein. Die Höhe des Bereichs mit Stapelfehlern kann somit auch als eine ungefähre Abschätzung der Höhe der GaN Mikroinseln vor der Schichtkoaleszenz dienen.

Wenn man die Ergebnisse zusammenfasst, erzielt man bei den untersuchten Proben die besten Resultate für die Proben SiN-Pos-100nm und SiN-Pos-350nm. Für sie sind Versetzungsreduktion und Kristallqualität am besten, während die Schichtdicke, bei vollständiger Koaleszenz, im Rahmen bleibt.

V-Versetzungen

Zuletzt wurde auf eine besondere Art von Defekt eingegangen, der nur in Gruppe-III-Nitriden auftritt, die V-Versetzung oder V-Defekt. Eine V-Versetzung ist eine invertierte, hexagonalen Pyramide, die von den $\{10\bar{1}1\}$ -Ebenen begrenzt ist und deren Entstehung mit einer Störung der Periodizität des Kristallgitters verbunden ist. In der Literatur wird kontrovers diskutiert, ob die Existenz von V-Versetzungen auf Schichtsysteme für optoelektronische Bauteile positive oder negative Auswirkungen hat.

Im Rahmen dieser Arbeit sollten v.a. strukturelle Untersuchungen durchgeführt werden. Zunächst konnte ein Einfluss der Epitaxietemperatur der GaN Barrieren zwischen den InGaN QWs in der aktiven Zone nachgewiesen werden. Durch gleichbleibend niedrige Wachstumstemperatur für QWs und Barrieren wird das Entstehen von V-Versetzungen begünstigt. In den untersuchten Proben öffnete sich an jeder durch die aktive Zone verlaufenden Versetzung ein V-Defekt. Erhöhte man, bei sonst analogen Epitaxiebedingungen, die Wachstumstemperatur der Barrieren, ist im gesamten im TEM untersuchten Bereich keine V-Versetzung zu erkennen. Durch die höheren Wachstumstemperaturen wird also ein selektives Wachstum in der aktiven Zone verhindert, es entstehen keine invertierten Pyramiden an Versetzungen, das Schichtwachstum erfolgt über die ganze Fläche regelmäßig und zweidimensional. Zusätzlich konnte, entgegen der Aussagen vieler Veröffentlichungen, anhand von WBDF-TEM-Abbildungen zweifelsfrei nachgewiesen werden, dass sich V-Defekte auch an reinen Stufenversetzungen öffnen können.

KAPITEL 6

Wachstumsanalyse von GaN und InGaN auf semipolaren Seitenfacetten mittels selektiver Epitaxie hergestellter GaN-Streifen

Standardmäßig wird das Schichtsystem von GaN-basierten LEDs bei Heteroepitaxie in c-Richtung gewachsen, d.h. die Oberfläche des Schichtsystems ist die c-Fläche der Wurtzitstruktur. Dies wirkt sich aus verschiedenen Gründen nachteilig auf die strahlende Rekombination der Ladungsträger in den optisch aktiven Schichten der LED Struktur aus (s. Kapitel 6.1). Theoretische Berechnungen zeigen, dass das Wachstum der Schichten entlang anderer Kristallrichtungen günstiger wäre [Tak97], [Tak99]. Um dies zu verwirklichen wurden z.B. die Schichtsysteme auf anderen als der standardmäßig genutzten Ebene des Saphirkristalls (s. Kapitel 3.3) epitaxiert [Che03], [Chi04], [Cha05/1], sowie in der GaN Epitaxie neuartige Substratmaterialien wie LiAlO_2 [Wal00] oder MgAl_2O_4 [Cha05/2] verwendet. Die Kristallqualität des Standardverfahrens konnte jedoch nicht erreicht werden.

Ein neuer Ansatz, insbesondere die für die Lichterzeugung bedeutenden Schichten der aktiven Zone in andere Kristallrichtungen als $\langle 0001 \rangle$ zu epitaxieren, besteht

darin, auf ein Standard Saphir-Substrat mit einer FACELO-Technik GaN-Streifen mit semi-polaren Facetten zu wachsen, und diese wiederum als Substrat für die Epitaxie einer LED-Struktur zu benutzen. Strukturen solcher Art wurden von Barbara Neubert an der Universität Ulm hergestellt und im Rahmen dieser Arbeit untersucht.

6.1 Piezofelder und Verspannungen in QW-Strukturen

Wegen der Kristallsymmetrie der Gruppe-III-Nitride ($P6_3mc$) und der starken Elektronegativität des Stickstoffs fallen der positive und der negative Ladungsschwerpunkt der Bindungen im Wurtzitkristall nicht zusammen. Sie sind in c-Richtung gegeneinander verschoben; es kommt zu spontaner innerer Polarisation. In der aktiven Zone von LED-Strukturen wachsen die InGaN-Schichten durch die im Vergleich zu GaN höhere Gitterkonstante bei pseudomorphem Wachstum verspannt auf. Die Ladungsschwerpunkte werden weiter voneinander getrennt, es entsteht zusätzlich eine piezoelektrisch Polarisation¹. Diese piezoelektrische Polarisation induziert ein piezoelektrisches Feld entlang der z-Achse in der Größenordnung (MV/cm) [Fen06].

Das Piezofeld führt zu einem Verkippen der Potentialtöpfe der Quantentroge (s. Abb. 6.1). Die Maxima der Elektronen- und Löcherwellenfunktionen werden zu den Ecken hin verschoben. Diese Verkippung führt einerseits durch den geringen Überlapp der Wellenfunktionen zu einer Absenkung der internen Quanteneffizienz der optischen Übergänge des Systems, andererseits verkleinert sich die Bandlücke, d.h. die emittierte Strahlung wird rotverschoben. Dieser Effekt wird in der Literatur als „Quantum Confined Stark Effect“ (QCSE) bezeichnet. Theoretische Berechnungen haben gezeigt, dass Stärke und Vorzeichen der Piezofelder bei Gruppe-III-Nitriden von der Ausrichtung der QWs im Kristall abhängen. Sie werden bestimmt durch den Winkel θ zwischen der z-Richtung des Quantentrogs und der c-Richtung des Kristalls [Tak97], [Tak99]. Abb. 6.2 zeigt beispielhaft das piezoelektrische Feld in einem 3 nm breiten $In_{0,1}Ga_{0,9}N/GaN$ Quantentrog in Abhängigkeit vom Winkel θ . Die Nulldurchgänge des Piezofeldes liegen bei 39° und 90° . In Abb. 6.3 sieht man, dass für diese Winkel die berechneten Übergangswahrscheinlichkeiten am Höchsten sind und die emittierte Strahlung keine Rotverschiebung erfährt. In den Bildern sind die den Nulldurchgängen des Piezofeldes nächsten wichtigen Kristallebenen eingetragen (Abbildungen aus [Tak99]).

¹Eine detaillierte Erklärung zur Polarisation von Gruppe-III-Nitriden und eine Herleitung der Piezofelder findet sich in [Neu08].

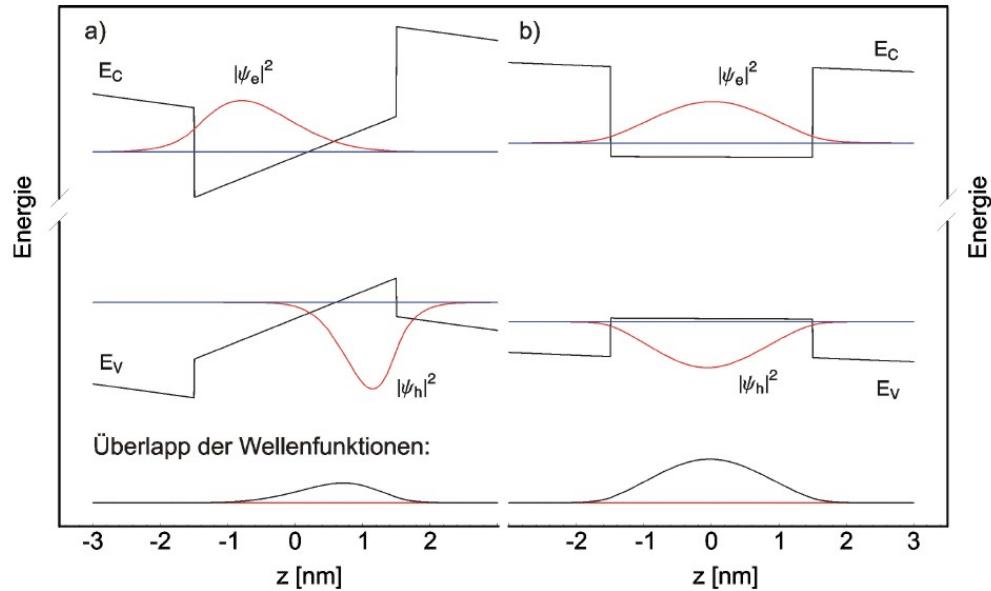


Abbildung 6.1: Auswirkung des internen Piezofeldes auf die Elektron- und die Lochwellenfunktion im QW: ohne das Feld sind die Wellenfunktionen symmetrisch, ihr Überlapp groß (rechts, b). Mit eingeschaltetem Feld verschieben sich die Maxima der Wellenfunktionen in die Ecken des verkippten Potentials, der Überlapp wird erheblich geringer (links, a). Zudem verringert sich die Bandlücke. Abbildung aus [Bra05].

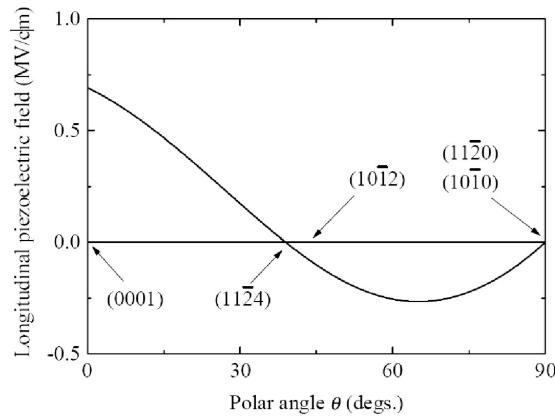


Abbildung 6.2: Das Piezoelektrische Feld eines 3 nm breiten $In_{0.1}Ga_{0.9}N/GaN$ QWs in Abhängigkeit vom Winkel θ zwischen z-Richtung des QWs und c-Richtung des Kristalls. Nahe den Nulldurchgängen der Kurve sind die wichtigsten Kristallebenen eingetragen. Abbildung aus [Tak99].

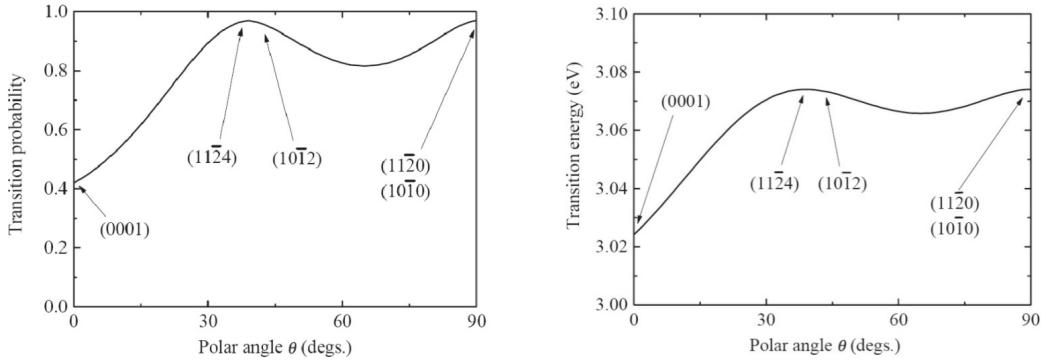


Abbildung 6.3: Berechnete Übergangswahrscheinlichkeit (links) und berechnete Übergangsenergien (rechts) des QWs aus Abb. 6.2 als Funktion von θ [Tak99].

6.2 Wachstum von InGaN QWs auf semipolaren Seiten-Facetten selektiv gewachsener GaN Streifen

6.2.1 Probendesign

Die untersuchten Proben wurden nach dem Prinzip des in Anhang A beschriebenen ELO- bzw. FACELO Prozesses hergestellt, jedoch mit dem Unterschied, dass nicht die Reduzierung von Versetzungen im Vordergrund stand, sondern das Wachstum der aktiven Zone für eine LED auf den seitlichen Facetten niedrigerer Polarität. Der Epitaxieprozess wurde also nicht wie bei der FACELO-Technik bis zur Koaleszenz der GaN-Streifen weitergeführt, sondern nach Ausbildung von Facettenstrukturen unterbrochen und anschließend mit dem Wachstum der aktiven Zone auf die entstandenen Facetten weitergeführt.

Der prinzipielle Aufbau der untersuchten Proben ist in Abb. 6.4 dargestellt: Auf ein c-plane orientiertes Saphir Substrat wurde eine ca. $1,5\ \mu\text{m}$ dicke c-plane GaN-Schicht gewachsen. Darauf folgte eine $200\ \text{nm}$ dicke Maske aus SiO_2 , die mittels Photolithographie und reaktivem Ionenätzen strukturiert wurde. Es wurden Proben mit Maskenöffnung sowohl in $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ - als auch in $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -Richtung strukturiert. Die Öffnung der Masken betrug nominell konstant $6\ \mu\text{m}$, es wurde lediglich die Maskenbreite auf den Wafers in $2\ \mu\text{m}$ -Schritten von $2\ \mu\text{m}$ bis $20\ \mu\text{m}$ variiert. Alle diese Strukturen wurden für eine Maskenorientierung (und eine Wachstums temperatur der aktiven Zone, s.u.) auf einem 2“ Saphirsubstratwafer epitaxiert,

d.h. alle Strukturen wurden im selben Epitaxievorgang gewachsen². Für die TEM Messungen standen Proben mit nominellen Maskenbreiten von $6\ \mu\text{m}$ und $16\ \mu\text{m}$ zur Verfügung. Die wirklichen Maskenbreiten (wie auch die realen Maskenöffnungen) wichen davon allerdings etwas ab, die gemessenen Werte sind in Tabelle 6.1 angegeben. Als Maß für das Verhältnis Maskenöffnung zu Maskenperiode wird der Füllfaktor definiert: Füllfaktor = $\frac{\text{Maskenöffnung}}{\text{Maskenperiode}}$, wobei Maskenperiode die Summe aus Breite der Maske und Breite der Öffnung ist (s. Abb. 6.4).

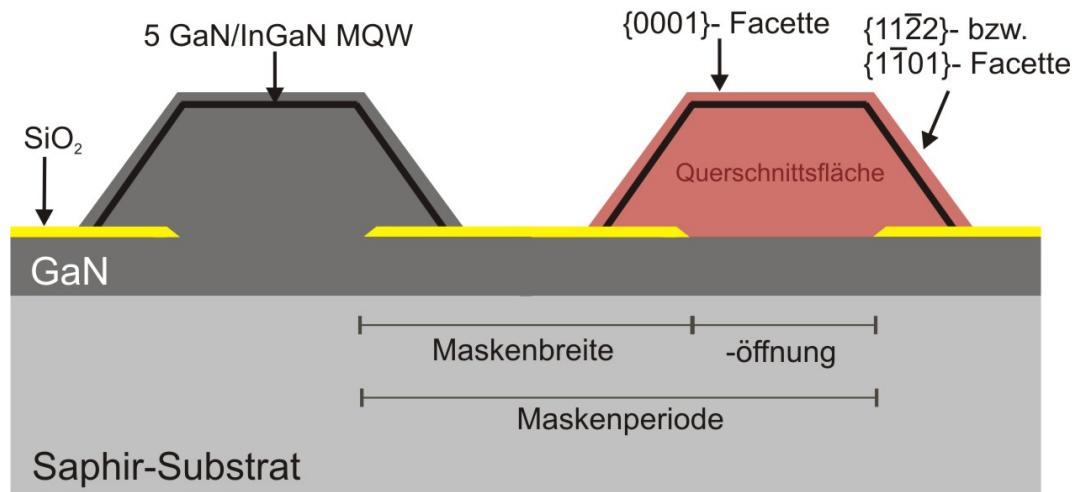


Abbildung 6.4: Aufbau der untersuchten Proben: Auf ein *c*-plane orientiertes Saphir Substrat und einer ca. $1,5\ \mu\text{m}$ dicken *c*-plane GaN-Schicht wurde eine $200\ \text{nm}$ dicke Maske aus SiO_2 aufgebracht, die mittels Photolithografie und reaktivem Ionenätzen strukturiert wurde. Die Strukturierung erfolgte für unterschiedliche Proben sowohl in $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ - als auch in $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -Richtung. Die anschließenden Wachstumsparameter wurden so gewählt, dass sich für die beiden Orientierungen seitlich an den gewachsenen Streifen $\{11\bar{2}2\}$ - bzw. $\{1\bar{1}01\}$ -Facetten ausbildeten. Maskenbreite, -öffnung und -periode sowie die Querschnittsfläche eines gewachsenen Streifens werden für die weitere Behandlung wie im Bild dargestellt definiert.

Bei der anschließenden Epitaxie wurden die Wachstumsparameter so eingestellt [Neu08] [Bru04], dass sich an den $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -orientierten Streifen die um 58° zur *c*-Ebene geneigten $\{11\bar{2}2\}$ -Facetten ausbilden sollten (*r*-plane), an den $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -orientierten, die um 62° geneigten $\{1\bar{1}01\}$ -Facetten. Bei beiden Orientierungen

²Insgesamt wurden für die im Rahmen dieser Arbeit vermessenen Strukturen vier Wafer epitaxiert, jeweils zwei pro Maskenorientierung und für die unterschiedlichen Wachstumstemperaturen der aktiven Zone.

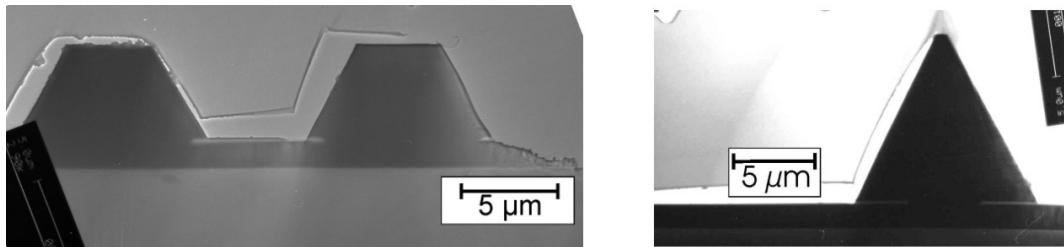


Abbildung 6.5: Abhängig von der Größe des Füllfaktors bilden sich prinzipiell bei den vermessenen Proben bei großem Füllfaktor Streifen mit trapezförmigem Querschnitt (links) und bei kleinem Füllfaktor Streifen mit dreiecksförmigem Querschnitt (rechts) aus.

20 nm GaN	$[Mg] > 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$	p-GaN mit zunehmender Dotierung
200 nm GaN	$[Mg] = 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$	
5 nm AlGaN		Aktive Zone, 5-fach QW-Struktur und Elektronenbarriere
7 nm GaN		
5 x 7 nm GaN		
3 nm InGaN		
1000 nm GaN	$[Si] = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$	n-GaN mit zunehmender Dotierung
120 nm GaN	$[Si] = 10^{17} - 10^{18} \text{ cm}^{-3}$	
250 nm GaN	$[Si] = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$	
250 nm GaN		GaN Pufferschicht
AlN Puffer		
430 nm Al_2O_3		

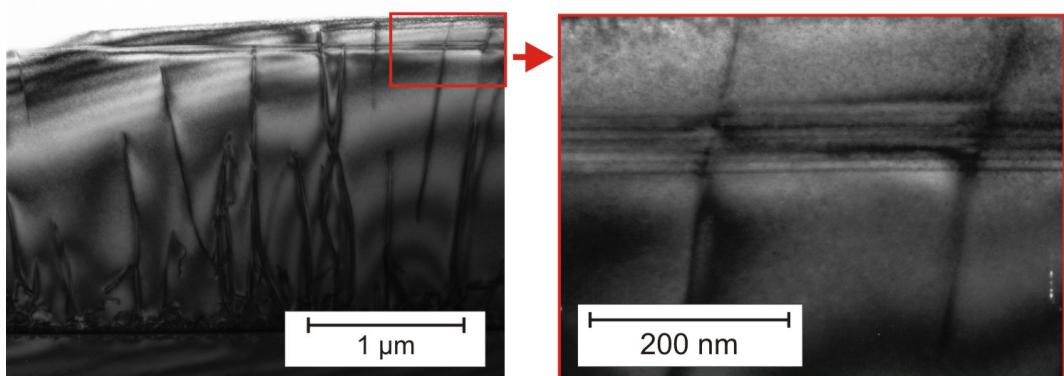


Abbildung 6.6: Nominell beim MOVPE-Wachstum eingestellte Schichtdicken (oben), Übersichts-TEM-Aufnahme (unten links) und aktive Zone (unten rechts) der Referenzprobe. Die Wachstumsparameter für die strukturierten Proben entsprachen ab dem Wachstum der aktiven Zone den zu diesen Schichtdicken gehörigen Einstellungen, nur die Wachstumstemperatur der aktiven Zone wurde in zwei Probenserien variiert (810°C und 830°C).

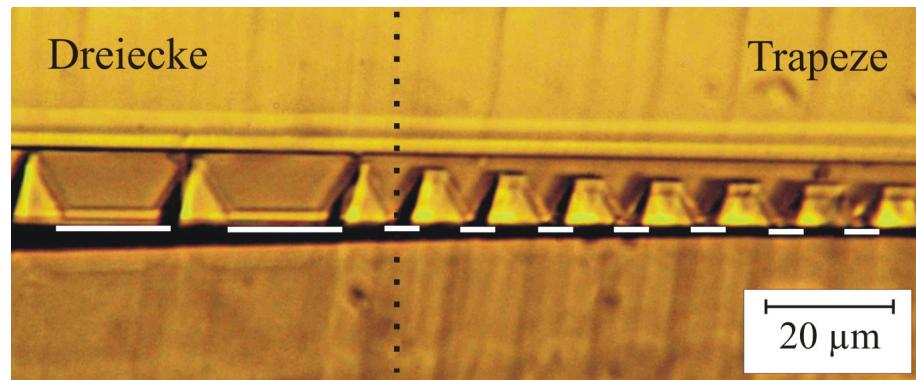


Abbildung 6.7: Lichtmikroskop Aufnahme eines Bereichs mit abrupter Änderung des Füllfaktors. Es findet ein schleichender Übergang von dreieckigem Querschnitt zu trapezförmigem Querschnitt in der Nähe der Grenze statt. Die weißen Linien kennzeichnen die Positionen der SiO_2 Maskierung.

beginnt das Wachstum trapezförmig (s. Anhang A), ob die Facettengeometrie vor dem Wachstum der aktiven Zone zu dreiecksförmigem Querschnitt übergegangen ist, hängt v.a. vom Füllfaktor ab. Eine genauere Betrachtung dazu findet sich in Abschnitt 6.2.2.

Auf die trapezförmigen und dreieckigen Streifen wurde eine aktive Zone mit 5 QWs, 4 Barrieren und einer darüberliegenden AlGaN-Elektronenbarriere epitaxiert. Um den Einbau von Indium zu begünstigen, wurden die InGaN Quantenträger (wie auch die dazwischenliegenden Barrieren) mit einer reduzierten Wachstumstemperatur von 810°C bzw. 830°C gewachsen, während alle anderen Schichten mit der Standard GaN-Wachstumstemperatur von 1020°C epitaxiert wurden. Zusätzlich zu den beschriebenen Proben wurde eine Referenzprobe mit c-plane QWs hergestellt, die Wachstumstemperatur der aktiven Zone betrug dabei 830°C. Die für die Referenzprobe bzw. planares Wachstum eingestellten nominellen Schichtdicken sind in Abbildung 6.6 angegeben. Die zu diesen nominellen Schichtdicken gehörenden Wachstumsparameter wurden für das Wachstum der aktiven Zone und aller im Schichtsystem oberhalb davon liegenden Schichten auch für die strukturierten Proben verwendet. Von den Proben wurden TEM Querschnittsaufnahmen gefertigt und untersucht. An TEM Querschnittsaufnahmen wurden geometrische Untersuchungen zu den einzelnen Proben durchgeführt, die in den Tabellen 6.1 und 6.2 zusammengefasst sind. Tabelle 6.1 zeigt die Maskenparameter, die teilweise deutlich von den nominellen Parametern (Maskenöffnung 6 μm, Maskenbreite 6 μm bzw. 16 μm) abweichen. In Tabelle 6.2 werden die Ergebnisse der geometrischen Messungen an den Facettenstrukturen angegeben. Eine Diskussion der Ergebnisse erfolgt im folgenden Abschnitt.

Probe	Maske/ μm	$\ddot{\text{O}}\text{ffnung}/\mu\text{m}$	FF
830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6	$4,7 \pm 0,1$	$6,6 \pm 0,1$	$0,58 \pm 0,01$
830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16	$15,6 \pm 0,3$	$5,8 \pm 0,2$	$0,27 \pm 0,01$
830- $\langle \bar{1}\bar{1}00 \rangle$ -6	$5,0 \pm 0,1$	$6,2 \pm 0,1$	$0,55 \pm 0,01$
830- $\langle \bar{1}\bar{1}00 \rangle$ -16	$15,7 \pm 0,2$	$7,0 \pm 0,2$	$0,31 \pm 0,01$
810- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6	$5,5 \pm 0,1$	$5,8 \pm 0,1$	$0,51 \pm 0,01$
810- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16	$15,1 \pm 0,4$	$6,5 \pm 0,1$	$0,30 \pm 0,01$
810- $\langle \bar{1}\bar{1}00 \rangle$ -6	-	-	-
810- $\langle \bar{1}\bar{1}00 \rangle$ -16	$15,5 \pm 0,1$	$6,6 \pm 0,1$	$0,30 \pm 0,01$

Tabelle 6.1: Breite der Masken und Maskenöffnungen der untersuchten Proben mit zugehörigem Füllfaktor (FF).

6.2.2 Wachstumsrate und Facettengeometrie

Für die verschiedenen untersuchten Proben bildeten sich vor der Epitaxie der aktiven Zone unterschiedliche Facettengeometrien aus. Diese waren v.a vom Füllfaktor aber auch, wie sich in den Messungen zeigte, von der Probenserie (810 oder 830) abhängig. Eine Abhängigkeit von der Orientierung der Maskierung konnte in den untersuchten Proben nicht beobachtet werden. Im Folgenden werden die Ursachen dafür beschrieben.

Füllfaktor

Während der Epitaxie besteht der Unterschied zwischen Bereichen mit hohem und niedrigem Füllfaktor in der Menge des in der MOVPE-Anlage lokal verfügbaren Quellmaterials. Durch den größeren maskierten Bereich, auf dem kein Wachstum stattfindet, steht bei kleinerem Füllfaktor in den Öffnungen eine größere Menge an Quellmaterial zur Verfügung, so dass hier die lokale Wachstumsrate höher sein soll als bei hohem Füllfaktor. Dies konnte durch die TEM Messungen bestätigt werden: Die lokale Wachstumsrate bei kleinerem Füllfaktor ist größer, wie man deutlich erkennen kann, wenn man in Tabelle 6.2 die Querschnittsfläche der Facettenstruktur (wie in Abb. 6.4 definiert) betrachtet. Sie ist für Proben mit höherer Maskenbreite deutlich größer als für Proben mit niedrigerer Maskenbreite. Betrachtet man die normierte Wachstumsrate, das Produkt aus Füllfaktor und Querschnittsfläche, erkennt man aber auch, dass die Gesamtmenge an abgeschiedenem Material (im Rahmen der Messgenauigkeit) konstant bleibt, unabhängig vom Füllfaktor der Maskierung.

Welche Streifengeometrie, Dreieck oder Trapez, sich ausbildet ist direkt abhängig von der Menge des lokal, pro Maskenöffnung, abgeschiedenen Materials. Bei den gewählten Epitaxiebedingungen erfolgt das Wachstum im FACELO Prozess zu-

Probe	FF	c-Facette/ μm	s-Facette/ μm	$F/\mu\text{m}^2$	WR/ μm^2
830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6	0,58	$3,3 \pm 0,2$	$5,5 \pm 0,1$	28,6	16,7
830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16	0,27	$0,23 \pm 0,03$	$12,1 \pm 0,1$	63,1	17,1
830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6	0,55	$1,86 \pm 0,05$	$6,7 \pm 0,1$	30,2	16,7
830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -16	0,31	Spitze	$12,6 \pm 0,2$	65,8	20,3
810- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6	0,51	Spitze	$9,3 \pm 0,2$	30,0	15,4
810- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16	0,30	Spitze	$12,0 \pm 0,2$	55,2	16,6
810- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6	-	$0,16 \pm 0,01$	-	-	-
810- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -16	0,30	Spitze?	$11,7 \pm 0,2$	59,3	17,7

Tabelle 6.2: Füllfaktor (FF), Längen der c-Facetten und der seitlichen Facetten der untersuchten Proben mit Querschnittsfläche (F) der Facette und der normierten Wachstumsrate (entspricht dem Produkt aus Füllfaktor und Querschnittsfläche). Die gewachsene Querschnittsfläche steigt mit abnehmendem Füllfaktor wie erwartet an, jedoch bleibt die normierte Wachstumsrate (WR), das Produkt aus Füllfaktor und Querschnittsfläche, im Rahmen der Messgenauigkeit konstant. Bei der Probe 810- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -16 kann eine c-Facette nicht zweifelsfrei ausgeschlossen werden. Falls eine vorhanden ist, so ist sie vergleichsweise klein ($< 0,3 \mu\text{m}$).

nächst trapezförmig und geht, falls der Wachstumsprozess lange genug andauert, so dass die Menge an abgeschiedenem Material pro Öffnung ausreicht, zu dreiecksförmigem Querschnitt über. Betrachtet man in Tabelle 6.2 die Querschnitte der Proben 830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6 und 830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -16, sieht man, dass für einen größeren Füllfaktor das Wachstum noch trapezförmig ist, während für einen kleineren Füllfaktor der Übergang zu dreiecksförmigem Querschnitt bereits erfolgt ist. Ähnlich verhält es sich für die Streifen in $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -Orientierung, wenn gleich auch bei Probe 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16 noch eine kleine c-Facette vorhanden ist, d.h. der Übergang zu dreiecksförmigem Querschnitt vor der Deposition der aktiven Zone nicht mehr vollständig erfolgt ist.

Allerdings ist die Wachstumsrate und damit die Form des Querschnitts neben dem Füllfaktor auch abhängig von der direkten Umgebung auf der Probe³. In Abbildung 6.7 ist eine Lichtmikroskop-Aufnahme des Bereichs einer Probe gezeigt, in dem sich das Verhältnis von SiO₂-Maske und Öffnung abrupt ändert. Die Änderung des Querschnitts der gewachsenen Strukturen entspricht in solchen Übergangsbereichen einem schleichenden Übergang von dreieckigen Strukturen (Abb. 6.7, linke Seite) zu trapezförmigen Strukturen (Abb. 6.7, rechte Seite).

³Es wurden auf einem Saphir-Substrat-Wafer mehrere unterschiedliche Maskengeometrien nebeneinander strukturiert, der im Folgenden betrachtete Bereich entspricht dem Übergangsbereich zwischen zwei Maskengeometrien.

Dieses Verhalten kann wieder mit dem lokal zur Verfügung stehenden Quellmaterial begründet werden. An Stellen mit kleinem Füllfaktor ist die Wachstumsrate höher d.h. die Quellmaterialien werden schneller verbraucht. Im Übergang zwischen Bereichen unterschiedlich großer Füllfaktoren entsteht ein Gradient in der Quellmaterial-Konzentration. Dieser Dichteunterschied führt zu einer Diffusion der Quellmaterialien über mehrere Facetten hinweg. Dadurch steigt (im Bereich mit hohem Füllfaktor) bzw. sinkt (im Bereich mit kleinem Füllfaktor) die Wachstumsrate der Strukturen nah am Übergangsbereich.

Unterschiedliche Probenserien

Betrachtet man die beiden Probenserien 830 und 810, so fällt auf, dass die Facettengeometrien trotz ähnlichem Füllfaktor und ähnlicher normierter Wachstumsrate unterschiedlich sind. Am Deutlichsten zu erkennen ist dies für die Proben 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6 und 810- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6: Trotz ähnlichem Füllfaktor (0,58 bzw. 0,51) und ähnlicher Querschnittsfläche an abgeschiedenem Material ($28,6 \mu\text{m}^2$ bzw. $30,0 \mu\text{m}^2$) liegt einmal eine trapez- und einmal eine dreiecksförmige Geometrie vor. Für 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6 war das laterale Wachstum auf den Seitenfacetten stärker ausgeprägt als bei 810- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6, was bei gleicher Abscheidemenge zu einem noch trapezförmigen Querschnitt führt. Da sich bei den beiden Probenserien nur die Wachstumstemperatur der aktiven Zone geändert haben soll (830°C bzw. 810°C), müssten die Querschnittsgeometrien der Proben prinzipiell, bis auf Abweichungen im Wachstum der aktiven Zone, analog sein. Endgültig geklärt werden konnte die Abweichung nicht, es liegt jedoch nahe, dass, da zwischen den Epitaxiezeitpunkten der beiden Probenserien einige Monate lagen, während des MOVPE Wachstums Abweichungen auftraten, die zu unterschiedlichem Wachstum führten.

6.2.3 Versetzungsanalyse

Der Verlauf von Versetzungen durch die Facetten-Strukturen entspricht, wie erwartet, dem Verlauf von Versetzungen in FACELO-Proben. Durch die SiO_2 -Maske werden darunter verlaufende Versetzungen geblockt. Die Versetzungen im Bereich der Maskenöffnung wachsen wie in unstrukturierten Proben weiter, knicken aber beim Übergang zu lateralem Schichtwachstum, bei Überwachsen der Masken, um 90° ab und laufen parallel zur c-Ebene weiter (genaueres zu Versetzungen in FACELO-Strukturen s. Anhang A). Auffällig ist aber, dass bei vielen trapezförmigen Proben im Bereich der Quantentröge an der c-Facette neue Versetzungen entstehen (s. Abb 6.8 rechts). Dieses Entstehen neuer Versetzungen ist ein deutliches Indiz für eine erhöhte Indium-Konzentration in den Quantentrögen

an der c-Facette verglichen mit den Quantentrögen an den seitlichen Facetten und in der planar gewachsenen Referenzprobe [Neu05]. Bei hoher In-Konzentration im QW wird der Unterschied in den Gitterkonstanten zwischen InGaN QW und GaN hoch, die Verspannungen während des QW-Wachstums werden, gerade bei dicken Quantentrögen sehr hoch und ab einer gewissen Dicke in Versetzungen abgebaut. Genauer wird die Indium-Konzentration in den Quantentrögen proben- wie auch facettenabhängig im nächsten Abschnitt betrachtet.

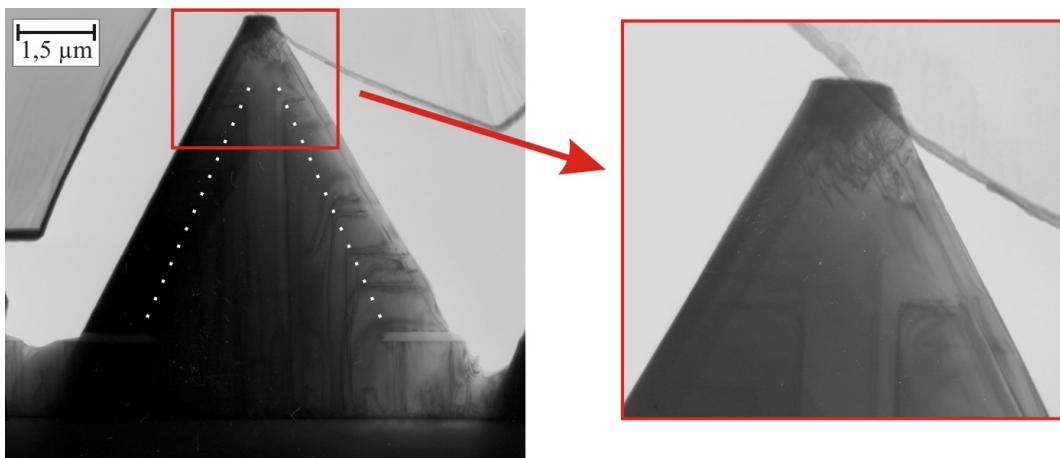


Abbildung 6.8: Querschnittsaufnahme zur Veranschaulichung der Versetzungsstruktur einer Probe mit schmaler c-Facette: Der grundsätzliche Verlauf der Versetzungen entspricht der Erwartung an nach dem FACELO-Prinzip gewachsenen Proben, Versetzungen knicken nach dem Übergang von vertikalem zu lateralem Wachstum ab (gekennzeichnet durch die gepunktete Linie). Auffällig ist, dass im oberen Bereich der Trapez-Struktur, im Bereich der Aktiven Zone um die InGaN QWs, eine Vielzahl neuer Versetzungen entstehen, was ein Indiz für eine hohe Indium-Konzentration in den c-Facetten der Probe ist.

6.2.4 Untersuchungen der aktiven Zone

Die aktive Zone der Facettenproben wurde anhand von Querschnittspräparaten im TEM untersucht. Insbesondere wurde dabei ein Augenmerk auf eine Auswertung der Geometrien der aktiven Zonen (Einzel-Quantentrogdicken, Barrierendicken, Dicke des gesamten Multi-QWs,...) für verschiedene Facettenstrukturen sowie verschiedene Untersuchungen zur Elementzusammensetzung in den Quantentrogstrukturen gelegt. In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der verschiedenen Messungen angegeben, eine genaue Diskussion erfolgt im nächsten Abschnitt.

Quantentroggeometrien an verschiedenen Facetten

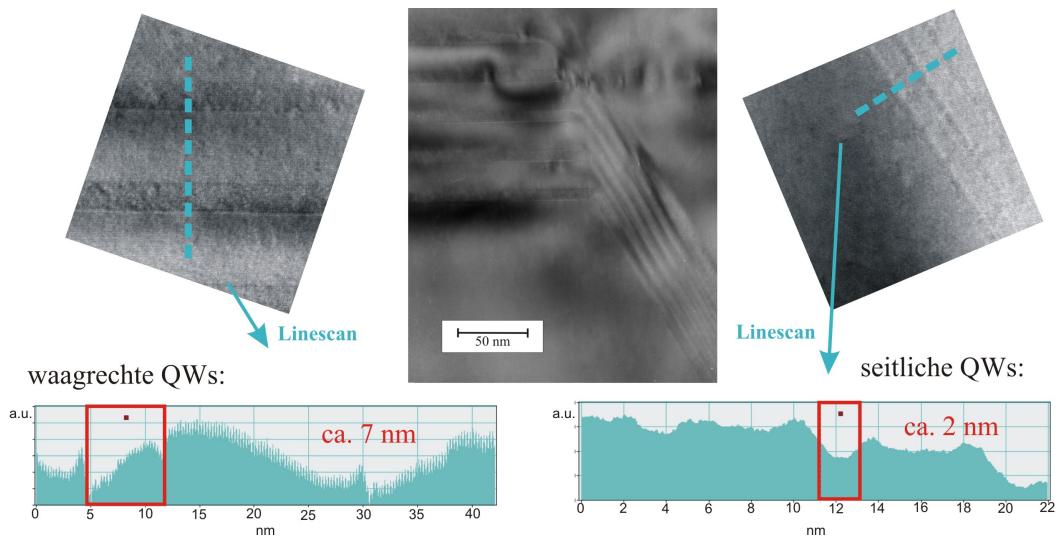


Abbildung 6.9: Beispiel zur Vermessung der Quantentrogstrukturen. Die einzelnen Quantentröge der Proben wurden über Linescans an verschiedenen Stellen der Probe vermessen und die Ergebnisse gemittelt. Die Dicke wurde dabei jeweils senkrecht zum Quantentrog gemessen.

Aus den Querschnittspräparaten der in Tabelle 6.1 aufgelisteten Proben wurden die Schichtdicken der einzelnen Quantentröge, der Barrieren sowie der gesamten Multiquantentrogstruktur (5 QWs und 4 Barrieren) ermittelt. Dabei wurde über CCD Aufnahmen und Linescans (s. Abb. 6.9) die Dicke an verschiedenen Stellen der Facetten gemessen und anschließend gemittelt. Die Dicke der seitlichen Quantentröge wurde senkrecht zum Quantentrog und nicht in Richtung $\langle 0001 \rangle$ gemessen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 6.3 zusammengefasst⁴.

Auffällig ist das gleichmäßige, störungs- und defektfreie Wachstum der QWs auf den seitlichen Facetten (s. beispielhaft Abb. 6.9, Mitte, oder Abb. 6.14). Es wurden auf keiner der untersuchten Proben Störungen der auf den seitlichen Facetten gewachsenen aktiven Zonen durch Defekte, auffällige Dickenschwankungen (außer den später beschriebenen Verdickungen der Quantentröge zur Spitze der dreiecksförmigen Strukturen) bzw. im TEM sichtbare Indium Cluster festgestellt. Die QWs wachsen, soweit dies durch TEM Messungen beurteilt werden kann, auf den seitlichen Facetten mit gleicher Güte wie bei auf c-plane gewachsenen Schichten.

⁴Zur besseren Übersichtlichkeit ist die Tabelle zusammen mit der Tabelle zur Messung der Indiumkonzentration am Ende dieses Kapitels platziert.

Untersuchungen zur Element-Zusammensetzung in der aktiven Zone

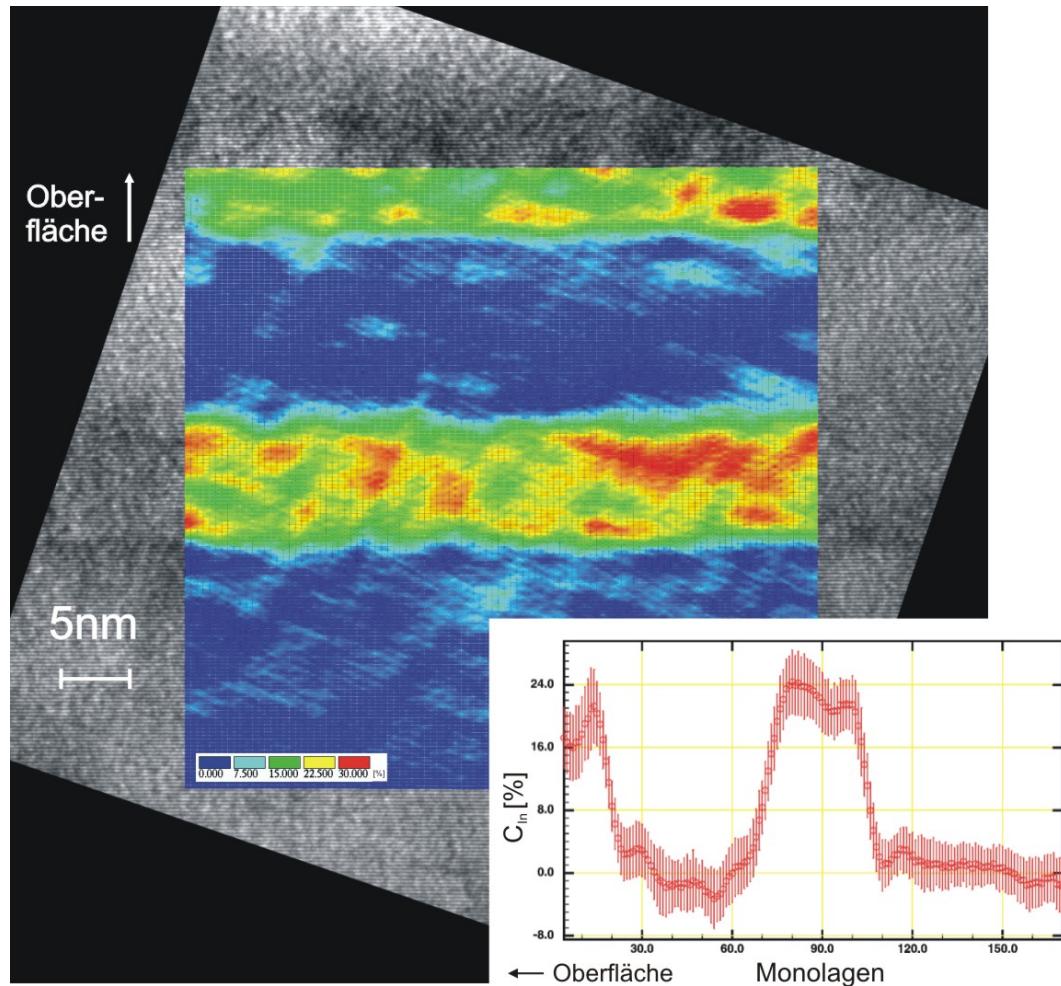


Abbildung 6.10: DALI Auswertung eines Quantentrogs an der top Facette der Probe 830 – $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ – 6: Zweidimensionale Map der Indiumverteilung im Quantentrog und gemitteltes Profil der Indium-Konzentration im Quantentrog.

Für die Untersuchung der Indiumkonzentration in den Quantentrögen der aktiven Zone wurden zwei unterschiedliche Methoden angewendet: Die Vergleichsmessungen an den aktiven Zonen der verschiedenen Facettenstrukturen wurden mit Energiedispersiver Röntgenspektrometrie (XEDS, s. Kapitel 2.3) durchgeführt, zur Bestimmung des k-Faktors und damit zur Kalibrierung der XEDS-Methode wurde DALI (s. Kapitel 2.4) verwendet. Da eine direkte Ermittlung des Indiumgehalts einzelner Quantentröge mit XEDS aufgrund sehr geringer Zählraten und hoher Probendrift nicht möglich war, wurde eine indirekte Methode verwendet: Eine Elektronensonde wurde in einem Fenster über die gesamte Quantentrogstruktur

(5 Quantentröge, 4 Barrieren) gescannt; dabei entsprach das abgescannte Fenster der Breite der Quantentrogstruktur und war parallel dazu ausgerichtet. Die gemittelte Indium-Konzentration der 5 Quantentröge wurde anschließend aus den vorher vermessenen Breiten der Quantentröge und Barrieren (s. Tabelle 6.3) und den gemessenen Indium und Gallium Intensitäten bestimmt.

Dafür wurde die in Kapitel 2.3.2 eingeführte Cliff-Lorimer Gleichung verwendet:

$$\frac{C_A}{C_B} = k_{AB} \frac{I_A}{I_B} \quad (6.1)$$

$$C_A + C_B = 100\% \quad (6.2)$$

Für die Bestimmung des k-Faktors, der zur Umrechnung der gemessenen Intensitäten in Element-Konzentrationen nötig ist, wurde von einer Probe ($830 - \langle 11\bar{2}0 \rangle - 6$) mit Hilfe von DALI die Indiumkonzentration der Quantentröge einer c-Facetten bestimmt (Beispiel-Auswertung s. Abb. 6.10). Aus der so mittels DALI bestimmten Indiumkonzentration und dem Spektrum des Fensters auf der gesamten Quantentrogstruktur erhält man den k-Faktor über:

$$k_{InGa} = \frac{xa(1 + \frac{I_{In}}{I_{Ga}})}{b \frac{I_{In}}{I_{Ga}}} \quad (6.3)$$

Dabei ist a die Breite aller bei der XEDS-Messung bestrahlten Quantentröge, b die Breite des Fensters und x die mit Hilfe von DALI zu 20,8% bestimmte mittlere Indiumkonzentration in den Quantentrögen. Es ergibt sich für k :

$$k_{InGa} = 4,26 \pm 1,03 \quad (6.4)$$

Die Bestimmung der Indiumkonzentrationen aller weiteren Quantentröge erfolgte über:

$$x = \frac{k_{InGa}a(1 + \frac{I_{In}}{I_{Ga}})}{b \frac{I_{In}}{I_{Ga}}} \quad (6.5)$$

In Abbildung 6.11 ist ein typisches Spektrum eines Multiquantumwells dargestellt. Die aus den Spektren berechneten Werte der XEDS-Messungen sind in Tabelle 6.4 zusammengefasst⁵. Die hohen Fehler entstehen v.a. durch die nur sehr ungenau mögliche Bestimmung der Breite der Quantentröge. Weitere Fehlerquellen, die mit berücksichtigt wurden, waren Ungenauigkeiten in der Bestimmung der Breite des abgerasterten Fensters und unterschiedliche Qualität in der Anpassung der verwendeten Fit-Kurven bei der Auswertung der Spektren. Ein möglicher Fehler bei der Berechnung des k-Faktors über die DALI-Messung wurde nicht berücksichtigt, da im Folgenden ausschliesslich die In-Konzentrationen in den Quantentrögen verschiedener Proben miteinander verglichen werden sollen.

⁵Die **XEDS** Messungen wurden im Rahmen der Diplomarbeit von Martin Utz durchgeführt [Utz07]. Genauere Informationen zu den verschiedenen Messungen, den verwendeten Parametern usw. können dort nachgelesen werden.

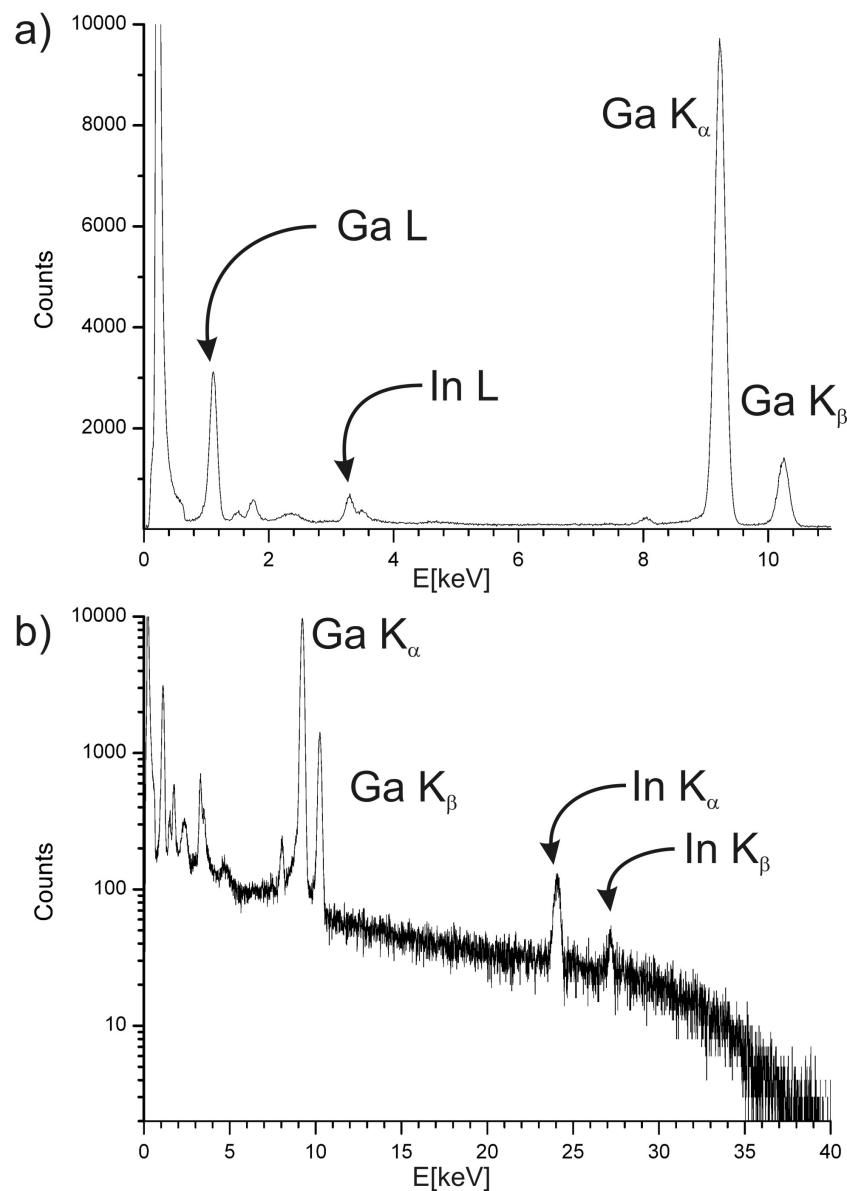


Abbildung 6.11: Typisches Spektrum eines Multi-Quantumwells in linearer a) und logarithmischer Auftragung b) (c-Facette von 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6): Neben den Gallium- und Indium-Linien sind noch Aluminium, Silizium, Blei und Kupfer nachweisbar. Abbildung aus [Utz07].

Probe	QW	Barriere	MQW	c/s
830- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -6	$1,1 \pm 0,5$	$4,4 \pm 0,5$	$22,1 \pm 1,3$	7,13
830- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -6 top	$7,85 \pm 0,52$	$13,54 \pm 0,97$	$93,41 \pm 6,48$	-
830- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -16	$2,67 \pm 0,74$	$6,51 \pm 0,74$	$39,74 \pm 0,62$	6,74
830- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -16 top	18 ± 6	28 ± 6	204 ± 26	-
830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6	$1,20 \pm 0,21$	$4,53 \pm 0,21$	$22,89 \pm 0,42$	4,48
830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6 top	$5,38 \pm 1,65$	$12,86 \pm 1,65$	$77,92 \pm 1,65$	-
830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -16	-	-	$45,2 \pm 2,6$	-
810- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -6	$2,1 \pm 0,5$	$4,2 \pm 0,5$	$27,0 \pm 0,6$	-
810- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -16	$2,54 \pm 0,45$	$4,86 \pm 0,45$	$33,58 \pm 0,52$	-
810- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6	$4,0 \pm 0,4$	$5,9 \pm 0,4$	$43,2 \pm 0,6$	3,5
810- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6 top	$14,0 \pm 0,9$	$21,2 \pm 0,9$	$153,0 \pm 1,3$	-
810- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -16	$3,9 \pm 0,6$	$8,0 \pm 0,6$	$53,1 \pm 0,6$	-
Referenz	$3,9 \pm 0,2$	$6,7 \pm 0,2$	$46,3 \pm 0,4$	-

Tabelle 6.3: Die Breite der vermessenen Schichten in [nm]: Ein 'top' hinter den Probenbezeichnungen gibt an, dass die zugehörigen Schichten auf einer c-Facette lagen. In der Spalte 'MQW' ist die Breite des gesamten Multi Quantum Well (5 Tröge und 4 Barrieren) angegeben, die Spalte c/s enthält, bei vorhandener top-Facette, das Verhältnis der Breiten zwischen top und seitlichen Facetten. In der letzten Zeile befinden sich die Daten Referenzprobe ohne Facettenstruktur.

Probe	QW[nm]	C_{In}	In[nm]	Ga[nm]
830- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -6	$1,1 \pm 0,5$	$15,8 \pm 9,6$	$0,86 \pm 0,20$	$21,2 \pm 0,2$
830- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -6 top	$7,85 \pm 0,52$	$20,8 \pm 3,8$	$7,72 \pm 1,00$	$85,7 \pm 1,0$
830- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -16 ¹⁾²⁾	$2,67 \pm 0,74$	$21,9 \pm 10,1$	$2,82 \pm 0,55$	$36,9 \pm 0,6$
830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6 ¹⁾²⁾	$1,20 \pm 0,21$	$13,5 \pm 2,5$	$0,79 \pm 0,19$	$22,1 \pm 0,2$
830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6 top	$5,38 \pm 1,65$	$31,2 \pm 12,5$	$7,77 \pm 1,25$	$70,2 \pm 1,3$
810- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -6	$2,1 \pm 0,5$	$20,5 \pm 7,4$	$1,96 \pm 0,26$	$24,8 \pm 0,3$
810- $\langle 1\bar{1}20 \rangle$ -16 ¹⁾	$2,54 \pm 0,45$	$22,8 \pm 6,8$	$2,76 \pm 0,36$	$30,8 \pm 0,4$
810- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -16 ¹⁾	$3,9 \pm 0,6$	$24,1 \pm 5,8$	$3,97 \pm 0,49$	$48,7 \pm 0,5$
Referenz ¹⁾²⁾	$3,9 \pm 0,2$	$15,8 \pm 3,1$	$2,84 \pm 0,42$	$45,5 \pm 0,5$

Tabelle 6.4: Indiumkonzentrationen in den Quantentrögen der verschiedenen Facetten. In der Spalte 'In' ist die Menge an reinem Indiumnitrid innerhalb des gesamten MQWs angegeben, in 'Ga' die Menge an Galliumnitrid.
¹⁾ Bei den Spektren dieser Facetten war der Strahlungshintergrund unterhalb der Gallium-K Linien erhöht. ²⁾ Hier fehlten die niederenergetischen Linien in den Spektren.

6.2.5 Diskussion der Ergebnisse

In diesem Kapitel erfolgt eine Diskussion der Ergebnisse der strukturellen Untersuchungen am TEM und ein Abgleich mit Ergebnissen der Messungen mit analogen Proben an der Universität Ulm⁶.

Facettengeometrien innerhalb einer Facettenstruktur

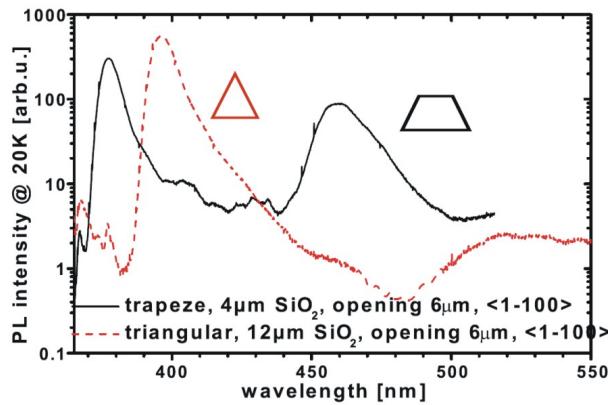


Abbildung 6.12: a) Vergleich des PL-Spektrums einer dreieckigen Facette mit dem einer trapezförmigen. Für trapezförmige Facetten erhält man zwei Peaks in der PL-Messung, wobei einer im Vergleich zum Emissionspeak der planar gewachsenen Referenzprobe, 450 nm, zu höheren und einer zu niedrigeren Wellenlängen verschoben ist. Für dreiecksförmige Facetten erhält man im PL Spektrum einen Emissionspeak. Die Messungen wurden im Rahmen der Dissertation von Barbara Neubert an der Universität Ulm durchgeführt [Neu08].

Abhängig von den Maskenabständen bilden sich bei Wachstum auf den maskierten Substraten, wie in Abschnitt 6.2.1 beschrieben, im Allgemeinen Streifen mit trapez- oder dreiecksförmigem Querschnitt aus. Nimmt man von Proben mit trapezförmigem Querschnitt ein Photolumineszenzspektrum auf, so erhält man zwei verschiedene Emissionspeaks (s. Abb. 6.12). Einer der beiden ist gegenüber dem an der c-plane Referenzprobe gemessenen Emissionspeak (nicht abgebildet, 450 nm) zu kürzeren Wellenlängen verschoben, der andere zu längeren. Ortsabhängige CL-Messungen an trapezförmigen Strukturen (s. Abb. 6.13 a)) zeigen zwei unterschiedliche emittierte Wellenlängen für c- und s-Facette; die Strahlung höherer Wellenlänge wird von der c-Facette emittiert, die niedrigerer Wellenlänge

⁶Es wurden u.a. REM-, Photolumineszenz- und Kathodolumineszenz-Analysen durchgeführt [Neu08].

von der s-Facetten. Der Unterschied in der Emissionswellenlänge zwischen den QWs an der c- und s-Facetten beträgt bei PL-Messungen im höchsten Fall ca. 80 nm; dies entspricht einer Energiedifferenz von $\Delta E \approx 570\text{meV}$. Dieser Unterschied ist viel zu groß als rein durch das Wachstum auf der semi-polaren Oberfläche und das dadurch abgeschwächte piezoelektrische Feld verursacht zu werden. Als Abschätzung dafür kann Abb. 6.3 rechts dienen: Der berechnete Unterschied zwischen c-plane und 60° verkipptem Wachstum beträgt (für 10% In im QW) ca. 30 meV, auch der höhere In-Gehalt in den untersuchten Proben (für die Referenzprobe $15,8 \pm 3,1\%$, s. Tabelle 6.4) kann den Unterschied von mehr als einer Größenordnung zu den gemessenen Werten nicht erklären.

Anhand der TEM Messungen kann das Auftreten zweier dominierender Wellenlängen für trapezförmige Strukturen begründet werden: Sowohl die Breite der Quantentrogstruktur (s. Abb. 6.14) als auch die Indium-Konzentration in den InGaN QWs unterscheiden sich stark für top und seitliche Facetten. Dies war für alle untersuchten trapezförmigen Strukturen, sowohl in $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ - als auch in $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -Orientierung, wenn auch in unterschiedlichem Ausmaß, gültig, die Ergebnisse sind in Tabelle 6.3 zusammengestellt. Am Deutlichsten zu erkennen ist dies für Probe 830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6: Das Verhältnis der Breite eines Quantentrogs an der top Facette zu einem an der seitlichen Facette beträgt 4,5, die Indiumkonzentration ist an der top Facette mehr als doppelt so hoch als an der seitlichen.

Auch verglichen mit der Referenzprobe treten deutliche Unterschiede auf. Für 830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6 ist die Indiumkonzentration an der seitlichen Facette vergleichbar mit der Referenzprobe, für die top Facette annähernd doppelt so hoch. Ähnlich verhält es sich mit den Breiten der Quantentröge, die sich jeweils auch stark im Vergleich zur Referenzprobe ($3,9\ \mu\text{m}$) unterscheiden: die Breite an der top Facette ist deutlich höher ($5,38\ \mu\text{m}$), an der seitlichen Facette deutlich geringer ($1,2\ \mu\text{m}$). Für die unterschiedliche Abscheiderate und den unterschiedlich starken In Einbau für die verschiedenen Kristallfacetten gibt es mehrere Gründe. Es ist davon auszugehen, dass prinzipiell ein Wachstum an der top Facette gegenüber einem Wachstum an den seitlichen Facetten präferiert wird [Neu08], das heißt das vorhandene Quellmaterial wird effektiver und schneller umgesetzt. Zusätzlich können aber auch lokale Temperaturunterschiede auf den Facettenproben und eine zur Spitze hin zunehmende Konzentration der Quellmaterialien (die Spitzen sind näher an den Quellgasen) eine Rolle spielen [Neu08].

Betrachtet man die ortsabhängige CL-Messung für den Fall eines dreiecksförmigen Querschnitts (s. Abb. 6.13 b)) kann man erkennen, dass die emittierte Strahlung über fast den gesamten gemessenen Bereich gleiche Wellenlänge aufweist, an der Spitze jedoch zu einer höheren Wellenlänge übergeht. Auch dieses Verhalten kann mit TEM Messungen begründet werden: An allen untersuchten Proben mit dreiecksförmigem Querschnitt wurde eine Verbreiterung der Quantentröge (und Bar-

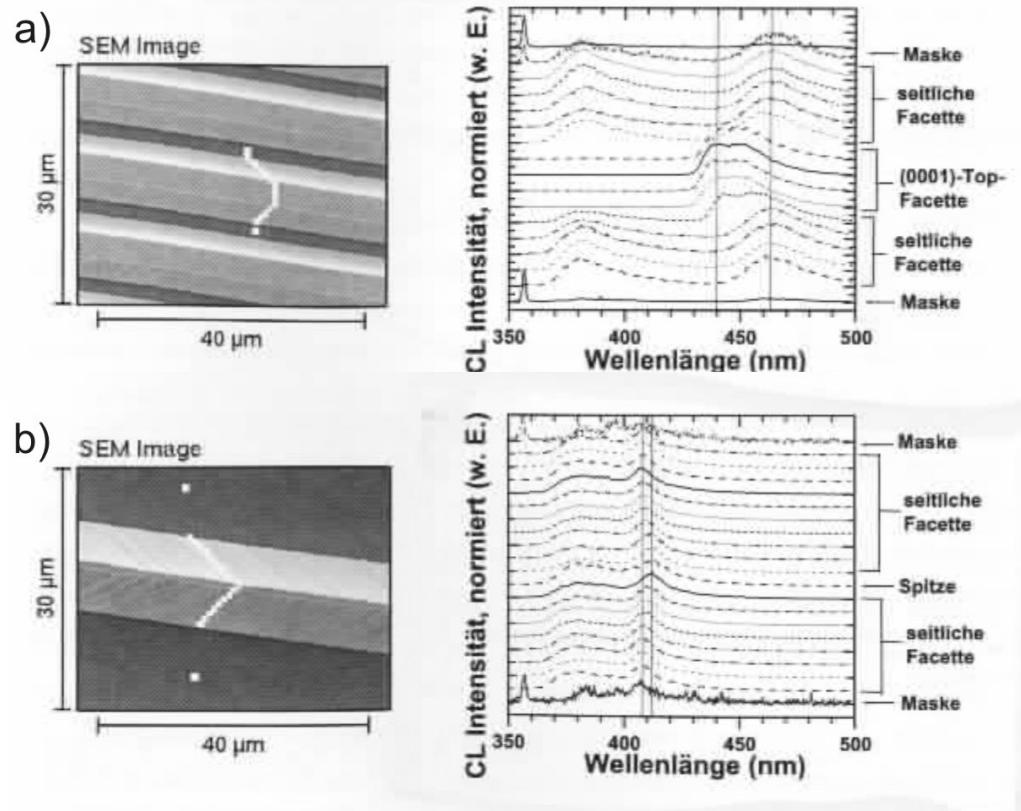


Abbildung 6.13: REM Aufnahmen und Kathodolumineszenzmessungen zweier Streifen in $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -Richtung mit trapez- bzw. dreiecksförmigem Querschnitt. In den REM Bildern sind die Messpunkte der CL-Messungen eingezeichnet. Für trapezförmigen Querschnitt (a) erhält man in CL Messungen zwei unterschiedliche Emissionsmaxima für seitliche und top Facette, mit deutlich höherer Wellenlänge für die top Facette, für dreiecksförmigen Querschnitt (b) sieht man eine Erhöhung der sonst gleichmäßigen Emissionswellenlänge zur Spitze hin. Die Messungen wurden im Rahmen der Dissertation von Barbara Neubert an der Universität Ulm durchgeführt [Neu08].

rieren) zur Spitze hin gemessen (s. Abb. 6.15). Durch die breiteren Quantentröge erhöht sich die Wellenlänge der emittierten Strahlung⁷. Aufgrund der zu geringen lateralen Auflösung der EDX Messungen konnte die Indium-Konzentration in den verbreiterten Spitzen nicht ermittelt werden. Begründet werden können die zur Spitze hin dicker werdenden Quantentröge mit den bereits erwähnten Tempera-

⁷Ein ähnlicher Effekt wurde auch schon in der Literatur beobachtet [Nis05]: Die schleichen-de Verbreiterung kann z.B. bei geeigneten Wachstumsbedingungen der aktiven Zone genutzt werden, um Strukturen mit kontinuierlichem Emissionspektrum zu erzeugen.

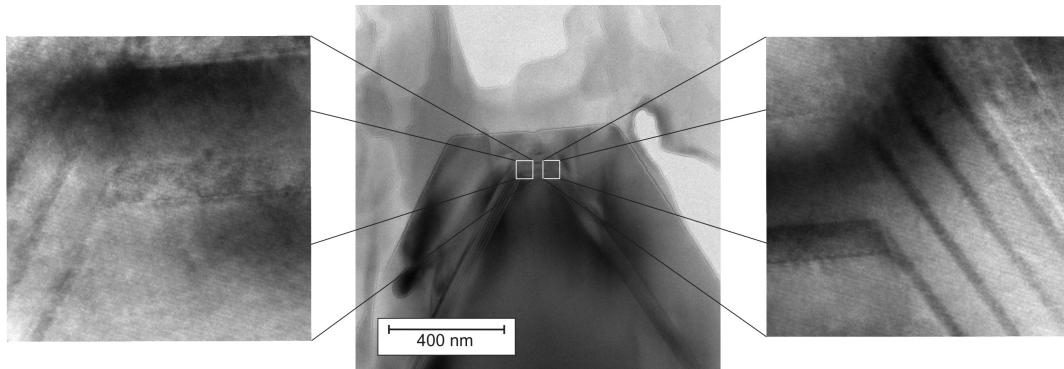


Abbildung 6.14: Aufnahmen der Spitze einer Probe mit trapezförmigem Querschnitt. Deutlich zu erkennen ist der große Dickenunterschied von top und seitlicher Facette, in diesem Fall von der Größe Faktor 4.

turunterschieden auf der Probe und der höheren Konzentration der Quellgase an der Spitze der Facette. Dies führt zu unterschiedlichen Absorptions- und Desorptionsprozessen, sowie zu Diffusions- und Migrationsprozessen während der Abscheidung der Quantenfilme, die zur Verdickung der Quantentröge an der Spitze führen.

Unterschiedliche Maskenabstände

Aus PL-Messungen ist bekannt, dass die emittierten Wellenlängen der seitlichen Facetten bei einer Maskenbreite von $16 \mu\text{m}$ im Vergleich zu $6 \mu\text{m}$ zu höheren Werten verschoben sind (s. Abb. 6.16 a)). Dies gilt für alle untersuchten Proben, unabhängig von Orientierung der Masken und verwendeter Wachstumstemperatur. Dafür kann es zwei Gründe geben: breitere QWs und/oder eine höhere In-Konzentration in den QWs bei den Proben mit einer Maskenöffnung von $16 \mu\text{m}$. Beides ist für die am TEM vermessenen Proben zutreffend (s. Tabellen 6.3 und 6.4). Man muss jedoch für eine genaue Beurteilung zwei Fälle unterscheiden: Deutlich ist der Anstieg, wenn man Proben betrachtet, die bei einer Maskenbreite von $16 \mu\text{m}$ dreiecksförmigen Querschnitt aufweisen, für Maskenbreite $6 \mu\text{m}$ trapezförmigen Querschnitt. Wie im vorangegangenen Abschnitt beschrieben, erhöht sich die In-Konzentration bei trapezförmigen Proben an der c-Facette auf Kosten der In-Konzentration an den seitlichen Facetten; es überrascht daher nicht, dass die seitlichen Facetten bei dreiecksförmigem Querschnitt breiter und In-reicher sind. Deutlich wird dies, wenn man die beiden Proben 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6 und 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16 miteinander vergleicht⁸. Die seitlichen QWs bei 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16 sind

⁸Die sehr kleine c-Facette bei Probe 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16 wird hier vernachlässigt, wäre sie nicht vorhanden, ist zu vermuten, dass der Unterschied noch größer wäre.

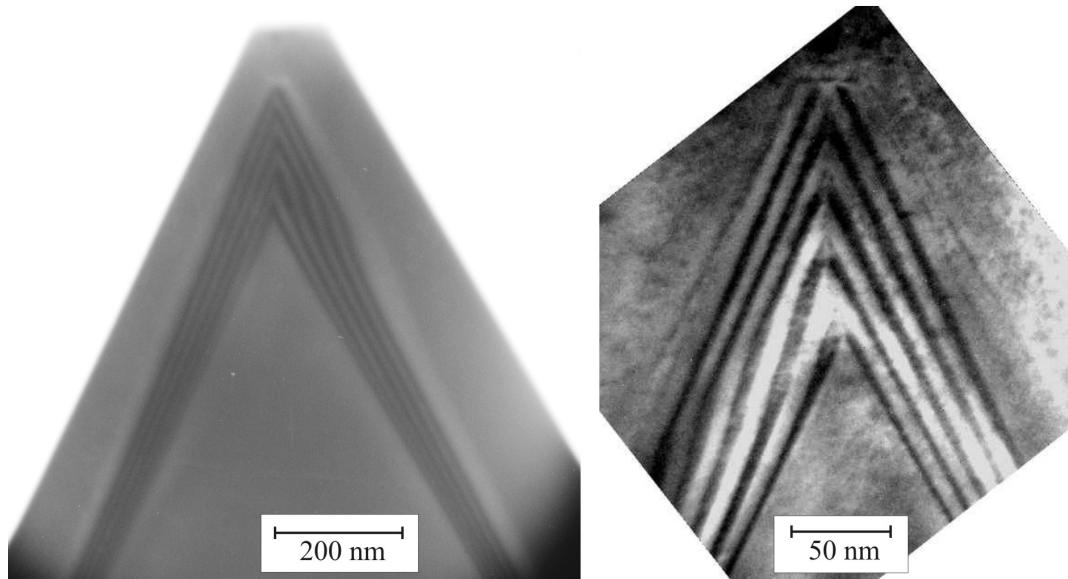


Abbildung 6.15: Aufnahme der Quantentrogstruktur an der Spitze von Proben mit dreiecksförmigem Querschnitt: Die Quantentröge verbreitern sich zur Spitze hin.

mehr als doppelt so breit, die In-Konzentration ist um mehr als 30% höher als bei 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6. Weniger deutlich ist der Unterschied, wenn bei beiden Proben dreiecksförmiger Querschnitt vorliegt, z.B. 810- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6 und 810- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16. Doch auch hier kann man von einer Erhöhung der QW-Breite und der In-Konzentration ausgehen, wenngleich die Messfehler keine definitive Aussage zulassen.

Orientierungen der Maskierung

Bei trapezförmigen Proben unterscheidet sich das Verhältnis c-Facetten-QW-Breite/s-Facetten-QW-Breite zwischen Wachstum auf $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ - und $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -Facetten deutlich. Für Probe 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6 erhält man ein Verhältnis von ca. 7:1 für 830- $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ -6 ein Verhältnis von 4,5:1. Eine Erklärung ist die unterschiedliche Stabilität der Seitenfacetten $\{11\bar{2}2\}$ und $\{1\bar{1}01\}$. An den stabileren $\{1\bar{1}01\}$ Facetten erfolgt die Abscheidung bei geringeren Wachstumstemperaturen, wie sie beim Wachstum der aktiven Zone verwendet werden (810°C bzw. 830°C verglichen zu 1020°C bei Standard GaN Wachstum) überwiegend auf der c-Facette, während die Abscheidung bei $\{11\bar{2}2\}$ -Facetten gleichmäßiger zur c-Facette erfolgt⁹. Aufgrund der geringen Zahl und der sehr unterschiedlichen Geometrien der untersuchten Proben ist ein Vergleich zwischen s-Facetten der unterschiedlichen Orientierun-

⁹Eine genaue Abhandlung über die temperaturabhängig unterschiedlichen Abscheideraten für die verschiedenen Kristallfacetten findet sich in [Neu08].

gen sehr schwierig. In PL-Messungen sieht man, dass die emittierte Wellenlänge für $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ orientierte Proben für alle Maskengeometrien deutlich niedriger ist als für $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ orientierte. Daraus folgt, dass die absolute Quantumwelldicke und/oder die In-Konzentration in den QWs für $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ orientierte Proben höher sein muss. Dies steht im Widerspruch zu den am TEM gemessenen Werten. Eine Begründung für diesen Widerspruch kann nicht gegeben werden, vermutet werden kann aber, dass die geringe Zahl an untersuchten Facetten im TEM verglichen mit den PL-Messungen an der Universität Ulm keine repräsentativen Ergebnisse liefert.

Unterschiedliche Wachstumstemperaturen der Quantentrogstruktur

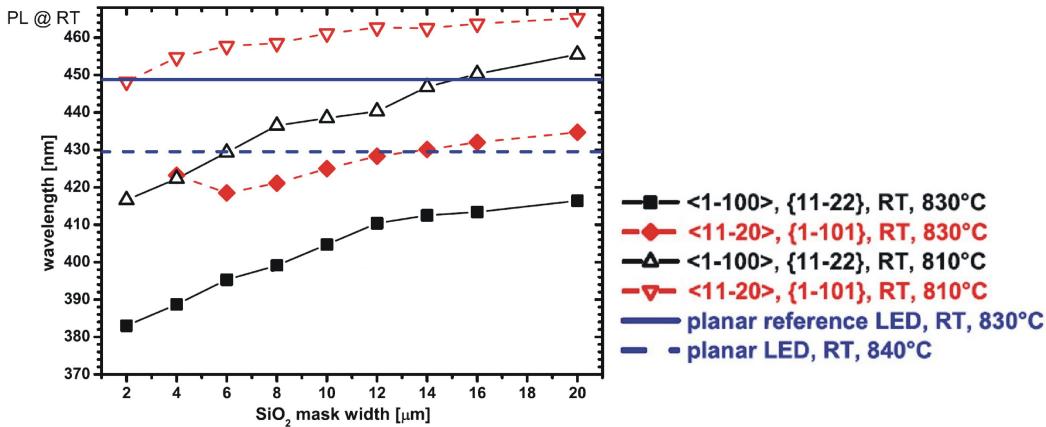


Abbildung 6.16: Peakwellenlängen des PL-Signals der seitlichen Quantentroge für alle epitaxierten Maskenbreiten verglichen mit planar gewachsenen Referenz Strukturen. Die Emissionswellenlänge ist wegen des besseren Indium Einbaus in die Quantentroge bei geringeren Wachstumstemperaturen höher. Für TEM Messungen standen Proben mit nomineller Maskenbreite von 6 μm und 16 μm und die bei 830°C gewachsenen Referenzstruktur zur Verfügung.

In PL Messungen erkennt man für alle Orientierungen und Maskengeometrien eine deutliche Verschiebung der emittierten Wellenlänge zu höheren Werten für geringere Wachstumstemperatur des InGaN/GaN MQWs. Dies ist in Übereinstimmung mit der Literatur, die für geringere InGaN Wachstumstemperatur einen effizienteren Einbau von In beschreibt [Nak92]. Dies konnte in den TEM Messungen nur teilweise bestätigt werden (s. Tabelle 6.4). Bei Proben mit Maskenabstand 6 μm liegt der Wert der Indiumkonzentration für 810- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6 über dem Wert für 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -6. Bei den Proben mit Maskenabstand 16 μm zeigt sich ein anderes Bild. Die Quantentroge der beiden Proben 830- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16 und 810- $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -16 unterscheiden sich kaum, weder hinsichtlich ihrer Breite noch ihrer

Indium-Konzentration. Die hohen Fehler, gerade für die XEDS Messungen lassen jedoch durchaus einen Unterschied zu, der allerdings nicht nachgewiesen werden konnte.

6.3 Zusammenfassung

Um die Effizienz Galliumnitrid basierter LEDs zu steigern, wird seit einiger Zeit versucht vom c-plane Wachstum auf andere Wachstumsrichtungen überzugehen. Grund dafür ist die starke Polarität von Gruppe-III-Nitriden in $\langle 0001 \rangle$ -Richtung: In der aktiven Zone der LED wachsen die InGaN QWs pseudomorph verspannt. Die Ladungsschwerpunkte werden voneinander getrennt, es entsteht ein piezoelektrisches Feld entlang der c-Achse. Dies führt zu einer Verkippung der Potentialöpfe der Quantentröge und damit zu einer geringeren Quanteneffizienz durch geringeren Überlapp der Wellenfunktionen und zu einer Verkleinerung der Bandlücke, also einer Rotverschiebung der emittierten Strahlung. Der Ansatz der in dieser Arbeit untersuchten und an der Universität Ulm gewachsenen Strukturen ist, durch einen FACELO ähnlichen Wachstumsprozess vor der Epitaxie der aktiven Zone, semipolare Oberflächen zu erzeugen. Es wurden Proben hergestellt, die in $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ - und in $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -Richtung mit SiO_2 Masken strukturiert waren und an denen sich die semipolaren $\{11\bar{2}2\}$ -und $\{1\bar{1}01\}$ -Facetten ausbilden sollten. Für TEM Untersuchungen standen Proben mit nominellen Maskenbreiten von 6 μm und 16 μm , bei denen zusätzlich die Wachstumstemperatur der QWs und Barrieren in der aktiven Zone variiert wurde (810°C bzw. 830°C), zur Verfügung. Es wurden anhand von Querschnittsaufnahmen die Geometrien der gewachsenen Facetten, insbesondere der aktiven Zone betrachtet sowie mit Hilfe von XEDS-Messungen die In-Konzentration in den InGaN QWs untersucht.

Abhängig von der Größe des Füllfaktors, der ein Maß zwischen Maskenöffnung und maskiertem Bereich angibt, bildeten sich vor dem Wachstum der aktiven Zone zwei Arten von Facetten aus, für kleinen Füllfaktor vorrangig dreiecksförmige, für großen Füllfaktor trapezförmige.

Für trapezförmige Facetten konnte zweifelsfrei nachgewiesen werden, dass sowohl die Dicke der QWs als auch die Indiumkonzentration in den QWs an der c-Facetten höher ist als an der seitlichen Facette. Für dreiecksförmige Facetten wurde gezeigt, dass sich die Dicke der QWs an den Facetten zur Spitze des Dreiecks hin erhöht. Diese Ergebnisse sind im Einklang mit Photo- und Kathodoluminiszenzmessungen, die an analogen Probenstrukturen an der Universität Ulm durchgeführt wurden.

Betrachtet man Proben mit unterschiedlichem Füllfaktor kann erklärt werden, warum die emittierte Wellenlänge in PL-Messungen der seitlichen Facetten bei geringerem Füllfaktor rotverschoben ist. Sowohl die QW-Dicke als auch die In-

Konzentration in den QWs ist bei einem Maskenabstand von 16 μm geringer als bei Proben mit Maskenabstand 6 μm .

Die Abhängigkeit der Effizienz des Einbaus von In in die InGaN QWs von der Wachstumstemperatur konnte teilweise bestätigt werden, allerdings ist eine belastbare Aussage wegen der hohen Fehler in den XEDS Messungen schwierig.

Betrachtet man die unterschiedlichen Orientierungen der Maskierung, in $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ - und in $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -Richtung, sieht man einen deutlichen Unterschied im Vergleich Breite c-Facette zu Breite seitlicher Facette. Erklärt werden kann dies durch die unterschiedliche Stabilität der entstandenen Seitenfacetten (auch verglichen zur c-Facette) die temperaturabhängig zu unterschiedlichen Wachstumsraten führt. Dies schlägt sich aber in den am TEM vermessenen Proben nicht in der absoluten Dicke der QWs bzw. In-Konzentration in den QWs nieder, die in $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -orientierten Proben höher sein sollte. Vermutet wird, dass die Ursache für diesen Widerspruch die sehr kleine Zahl an untersuchten Facetten im TEM ist, die in diesem Bereich keine repräsentativen Ergebnisse liefert.

Betrachtet man die kristalline Qualität der Proben, besonders der seitlich gewachsenen aktiven Zone, im Vergleich zu herkömmlich, in $\langle 0001 \rangle$ -Richtung, gewachsenen Schichten, fällt kein Unterschied auf. Weder entstehen durch das Wachstum Defekte in den Quantentrögen noch gibt es große Unterschiede in der Dicke der Quantentröge, und soweit nachweisbar, in der In-Konzentration der InGaN Schichten. Die kristalline Struktur wirkt sehr gleichmäßig und störungsfrei.

Eine Aussage inwieweit das piezoelektrische Feld in den seitlichen QWs verglichen mit in $\langle 0001 \rangle$ -Richtung gewachsenen Schichten abgeschwächt ist, kann für diese Probenserie anhand von PL und CL Messungen nicht vernünftig durchgeführt werden. Eine eventuelle Blauverschiebung, im Vergleich zur c-plane gewachsenen Referenzprobe wird von zu vielen anderen Effekten wie starken Unterschieden in den QW-Breiten, In-Konzentrationen überlagert. Umso wichtiger ist es, nicht auf indirekte Messungen der Abschwächung des piezoelektrischen Feldes über Messungen der emittierten Wellenlänge angewiesen zu sein, sondern das Feld direkt messen zu können. Dafür wurden mittlerweile sehr erfolgversprechende Methoden¹⁰ in der Transmissionselektronenmikroskopie an der Universität Regensburg entwickelt, die leider in dieser Arbeit nicht mehr angewendet werden konnten. Insgesamt lässt sich sagen, dass der Ansatz der auf seitlichen QWs gewachsenen LED Strukturen gut ist, es aber fraglich bleibt, ob er sich für kommerzielle Anwendungen durchsetzen kann. Die Komplexität der Herstellung der Facetten-Schichtsystemen im Vergleich zu herkömmlichem c-plane Wachstum wie auch die schwierige Prozessierung der LED-Chips [Neu08] spricht zunächst dagegen, es bleibt aber abzuwarten inwieweit der Prozess noch vereinfacht werden kann.

¹⁰Bestimmung des piezoelektrischen Feldes mit Hilfe von Elektronenholografie und differentiellem Phasenkontrast.

KAPITEL 7

Zusammenfassung

Ihm Rahmen dieser Arbeit wurden transmissionselektronenmikroskopische Untersuchungen an Gruppe-III-Nitrid basierten Heterostrukturen durchgeführt. Die Untersuchungen lassen sich in zwei Schwerpunkte gliedern: Betrachtungen zu Versetzungen und zu Möglichkeiten zur Versetzungsreduktion und die Analyse von auf semipolaren Facetten gewachsenen Quantentrogstrukturen.

Versetzungsanalyse

Zu Beginn des Kapitels zur Versetzungsanalyse wurden die Auswirkungen verschiedener Substratmaterialien auf den Verlauf und die Zahl der Versetzungen in durch MOVPE gewachsenen GaN Schichten betrachtet. Es konnte gezeigt werden, dass bei Wachstum auf Saphir-Substraten das Verhältnis von gemischten und reinen Stufenversetzungen ausgeglichen ist, während bei Wachstum auf Siliziumkarbid die reinen Stufenversetzungen deutlich überwiegen. Reine Schraubenversetzungen sind bei beiden Substratmaterialien in ähnlichem, sehr geringem, Umfang vorhanden. Ursächlich für die Unterschiede im Verhältnis der Versetzungstypen und den unterschiedlichen Verlauf der Versetzungen sind die verschiedenen Standard-Wachstumsmodi für Epitaxie auf Al_2O_3 (3D Inselwachstum in den ersten Wachstumsschritten) und SiC (vorrangig 2D Wachstum). Für Homoepitaxie auf GaN-Substraten konnte gezeigt werden, dass die Zahl der Versetzungen in der epitaxierten GaN Schicht prinzipiell von der Qualität des Substrats abhängig ist. Je nach Güte des Substratmaterials wurden Versetzungsdichten im Bereich von $10^6 - 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ gemessen. Insbesondere ist auf die Oberfläche des Substrats

zu achten: Wird der Polierschritt nach Schneiden der Substrate nicht zuverlässig durchgeführt und bleiben Störstellen an der Oberfläche des Substrats zurück, entsteht an der Grenzfläche zur epitaxierten Schicht eine hohe Zahl an Versetzungen, die Versetzungsdichte ist höher als für heteroepitaktisch gewachsene Schichten.

Um die Versetzungsdichte bei heteroepitaktischen Schichten zu reduzieren, ist eine verhältnismäßig einfache und schnelle Methode das Einbringen einer in-situ abgeschiedenen SiN-Zwischenschicht. Die SiN Bedeckung bleibt dabei unter einer Monolage, es wird eine teilweise Maskierung der Oberfläche erzeugt. Bei Fortsetzung der Epitaxie wächst GaN zunächst inselförmig auf den nicht mit SiN maskierten Bereichen. Diese werden erst nach und nach (abhängig von den gewählten Wachstumsparametern) lateral überwachsen bis es zur Koaleszenz der einzelnen GaN Inseln und einer vollständig geschlossenen Schicht kommt. Wie gezeigt wurde erfolgt die Versetzungsreduktion dabei durch zwei unterschiedliche Prozesse: Durch Versetzungen die beim lateralen Überwachsen der SiN Schicht in Höhe der SiN Schicht abknicken und durch Versetzungen die an den Seitenflächen der beim Überwachsen der SiN Schicht entstehenden GaN Mikroinseln abknicken. Diese vertikal verlaufenden Versetzungen können mit anderen Versetzungen reagieren und löschen sich bei passendem Burgersvektor aus. Wie durch TEM Aufnahmen gezeigt werden konnte, entsteht überhalb der SiN Schicht ein komplexes Versetzungsnetzwerk.

In mehreren Versuchsreihen wurden die Wachstumsparameter und die Lage der SiN-Schicht sowie die Epitaxiebedingungen des auf die SiN Schicht folgenden GaN Wachstums verändert und der Einfluss auf die in der Schicht verlaufenden Versetzungen ermittelt. Dabei wurde festgestellt:

- Der SiN Bedeckungsgrad sinkt mit steigender Temperatur der SiN Deposition, durch eine stärker werdende Aufrauung der Oberfläche ab.
- Die Versetzungsreduktion steigt mit höher werdendem Bedeckungsgrad an. Dabei gibt es eine theoretische Grenze, wenn die Zahl der bei der Koaleszenz der einzelnen GaN Mikroinseln entstehenden Versetzungen die Zahl der durch den höheren Bedeckungsgrad mehr ausgelöschten Versetzungen übersteigt.
- Die Position der SiN Schicht im Schichtsystem hat, bei einem Abstand zur AlN Nukleationsschicht von 50 nm, 100nm und 350 nm, keinen markanten Einfluss auf die Versetzungsreduktion. Bei Deposition der SiN-Zwischenschicht direkt auf oder nah an der AlN Nukleationsschicht steigt der Bedeckungsgrad durch eine verringerte Aufrauung der Oberfläche an, bei den untersuchten Proben war dadurch die Versetzungsreduktion verstärkt.

- Mit zunehmendem SiN Bedeckungsgrad steigt die Zahl der in der Probe auftretenden horizontalen Versetzungslinien. Diese reichen dabei bei höherem SiN Bedeckungsgrad weiter in die Probe hinein, da sich im ersten Wachstumsschritt nach Überwachsen der SiN Maskierung höhere GaN Mikroinseln ausbilden. Dadurch sinkt insgesamt die kristalline Qualität der GaN Schicht, es entstehen bei Koaleszenz der Inseln Stapelfehler im Koaleszenzbereich. Zusätzlich steigt durch die höheren GaN Mikroinseln die Schichtdicke bis zur vollständigen Koaleszenz an.
- Der 3D-2D Anwachsprozess, wie er in den untersuchten Proben angewendet wurde, führte zu einer Verschlechterung der Ergebnisse der Versetzungsreduktion.

Im letzten Abschnitt des Kapitels zur Versetzungsanalyse wurde eine besondere Art von Defekt betrachtet, der nur in Gruppe-III-Nitriden auftritt und dessen Auswirkungen auf Schichtsysteme für optoelektronische Bauteile in der Literatur kontrovers diskutiert wird, die V-Versetzung oder V-Defekt. Eine V-Versetzung ist eine invertierte, hexagonale Pyramide, die von den $\{10\bar{1}1\}$ -Ebenen begrenzt ist und deren Entstehung mit einer Störung der Periodizität des Kristallgitters verbunden ist. Es konnte gezeigt werden, dass die Epitaxietemperatur im Bereich der aktiven Zone das Entstehen von V-Versetzungen beeinflusst: Wird für InGaN Quantentröge und die dazwischenliegenden GaN Barrieren eine gleichermaßen niedrige Wachstumstemperatur verwendet¹, öffnet sich an jeder durch die aktive Zone verlaufenden Versetzung ein V-Defekt, erhöht man, bei sonst analogen Epitaxiebedingungen, die Wachstumstemperatur der Barrieren zum Standardwert für GaN Wachstum, ist im gesamten im TEM untersuchten Bereich keine V-Versetzung zu erkennen. Durch die höheren Wachstumstemperaturen der Barrieren wird ein selektives Facetten-Wachstum über die gesamte Aktive Zone verhindert. Ein weiterer Punkt zur Entstehung von V-Defekten konnte anhand von WBDF-TEM-Analysen zweifelsfrei nachgewiesen werden: Entgegen der Berichte in einigen Veröffentlichungen, dass V-Defekte nur an Versetzungen mit Schraubenkomponente entstehen, wurde gezeigt, dass sie sich, bei den untersuchten Epitaxiebedingungen, auch an reinen Stufenversetzungen öffnen können.

Semi-Polar gewachsene Quantentrogstrukturen

Wegen der starken Polarität der Gruppe-III-Nitride in c-Richtung kommt es in den pseudomorph verspannt gewachsenen InGaN Quantentrögen zu einer Trennung der Ladungsschwerpunkte und es entsteht ein piezoelektrisches Feld entlang

¹Eine deutlich niedrigere Wachstumstemperatur für die InGaN Quantentröge verglichen mit Standard-Wachstumsbedingungen von GaN ist nötig, um effizienten In Einbau zu realisieren.

der c-Achse. Dies führt zu einer Verkippung der Potentialtöpfe der Quantentröge und damit zu einer geringeren Quanteneffizienz durch geringeren Überlapp der Wellenfunktionen und zu einer Verkleinerung der Bandlücke, also einer Rotverschiebung der emittierten Strahlung. Um dies zu verhindern, wird seit einiger Zeit versucht GaN basierte Schichtsysteme für optoelektronische Anwendungen in anderen, weniger bzw. nicht-polaren Richtungen zu epitaxieren.

An der Universität Ulm wird ein Ansatz gewählt, um semipolare Oberflächen zu erzeugen, der dem FACELO Wachstum sehr ähnlich ist. Während einer Unterbrechung des GaN Wachstums erfolgt eine streifenförmige SiO_2 -Maskierung in $\langle 1\bar{1}00 \rangle$ - und in $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -Richtung. Wird das GaN Wachstum mit den, aus FACELO Prozessen bekannten, passenden Wachstumsparametern fortgesetzt, bilden sich Streifen mit den semipolaren $\{11\bar{2}2\}$ -und $\{\bar{1}\bar{1}01\}$ -Facetten aus. Auf diese semipolaren Flächen wurde eine fünfach InGaN Quantentrogstruktur epitaxiert, deren Wachstumstemperatur in zwei Probenserien zwischen 810°C bzw. 830°C variiert wurde.

Es konnte gezeigt werden, dass sich vor dem Wachstum der aktiven Zone zwei Arten von Facetten ausbilden, für kleinen Füllfaktor² vorrangig dreiecksförmige, für großen Füllfaktor trapezförmige. Durch den größeren maskierten Bereich, auf dem kein Wachstum stattfindet, steht bei kleinem Füllfaktor in den Öffnungen eine größere Menge an Quellmaterial zur Verfügung, so dass hier die lokale Wachstumsrate höher ist als bei hohem Füllfaktor.

Für trapezförmige Facetten konnte anhand von TEM Aufnahmen nachgewiesen werden, dass sowohl die Dicke der QWs als auch die Indiumkonzentration in den QWs an der c-Facette höher ist als an der seitlichen Facette. Dies erklärt die zwei unterschiedlichen Wellenlängen der Emissionspeaks, die in Photo- und Kathodolumineszenzmessungen ermittelt wurden. Für dreiecksförmige Facetten konnte gezeigt werden, dass an der Spitze eine Verdickung der Quantentröge auftritt. Auch diese Beobachtung steht im Einklang mit ortsaufgelösten Kathodolumineszenzmessungen, die eine Erhöhung der Wellenlänge der emittierten Strahlung zur Spitze hin zeigen.

Mit Hilfe von EDX Messungen und HRTEM Aufnahmen konnte gezeigt werden, dass die In-Konzentration und die QW-Dicke für Quantentröge an seitlichen Facetten für kleineren Füllfaktor geringer ist als für größeren. Auch dieses Verhalten wird durch Photolumineszenzmessungen bestätigt: Abhängig vom Füllfaktor ergeben sich unterschiedliche Peaks der Wellenlängen der emittierten Strahlung. Insgesamt konnte durch die TEM Messungen gezeigt werden, dass die kristalline Qualität der Proben, besonders der seitlich gewachsenen aktiven Zone, im Vergleich zu herkömmlich, in $\langle 0001 \rangle$ -Richtung, gewachsenen Schichten, keine Unter-

²Füllfaktor = $\frac{\text{Maskenöffnung}}{\text{Maskenperiode}}$

schiede aufweist. Es entstehen in den seitlichen gewachsenen Quantentrögen keine zusätzlichen Defekte, die Dicke der Quantentröge ist, bis auf die schon erwähnte Verbreiterung an der Spitze, sehr homogen. Gleiches gilt, soweit die großen Fehler der EDX Messungen eine Aussage zulassen, für die In-Konzentrationen.

ANHANG A

Versetzungsrreduzierende Maßnahmen bei Heteroepitaxie

A.1 ELO und FACELO

Die Grundidee der ELO¹-Technik basiert auf Versetzungsreduktion durch laterales Überwachsen. Sie wurde von Nishinaga et al für das Wachstum von GaAs auf GaAs- oder Si-Substraten entwickelt [Nis88] [Uji89]. Usui et al [Usu97] und Nam et al [Nam97] waren die Ersten, die diese Technik bei GaN-Wachstum anwandten und damit Versetzungsdichten im Bereich von 10^7 cm^{-2} erreichten. Kurz darauf wurde entdeckt, dass die Oberflächenstrukturen, die im ersten Wachstumsschritt (siehe unten) entstehen, eine Rolle bei der Änderung der Ausbreitungsrichtung der Versetzungen spielen [Sak97]. Durch Kontrolle dieses Oberflächenwachstums kann man ein Abknicken der Versetzungen in laterale Richtung erreichen, was zu einer weiteren Reduzierung der Versetzungsdichte im Vergleich zu konventionell gewachsenen ELO-Proben führt. Man nennt dieses kontrollierte Oberflächen- oder Facetten-Wachstum FACELO².

Das Vorgehen bei der Herstellung von ELO-Schichten ist folgendermaßen: Auf ein Fremdsubstrat (z.B. Al₂O₃- oder 6H-SiC) wird eine 1 bis 2 μm dicke GaN Schicht (Puffer) aufgebracht. Darauf folgt ein ca. 50-200 nm dicker, amorpher SiO₂- oder SiN-Film, in den mit Hilfe konventioneller Photolithographie streifenförmige Fen-

¹epitaxial lateral overgrowth, oft auch ELOG

²facet-controlled epitaxial lateral overgrowth

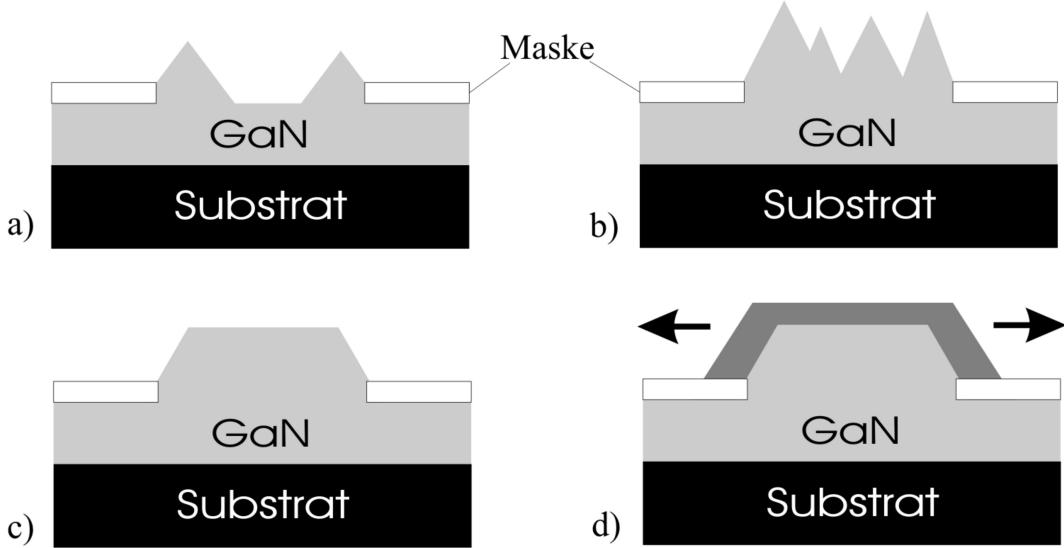


Abbildung A.1: Übersicht über das Wachstum von ELO-Proben: GaN-Deposition erfolgt zunächst an den Maskenrändern (a). Nachdem der Maskenbereich überwachsen wurde (b)(c), werden die Wachstumsbedingungen geändert und mit lateralem Überwachsen begonnen (d).

ster geätzt werden, die beim folgenden Überwachsen als Wachstumskeime dienen. Die Fenster- und Maskenbreiten werden dabei zu Forschungszwecken von Fall zu Fall variiert, um das laterale Wachstum zu optimieren; typische Werte der Masken- und Fensterbreiten liegen im Bereich zwischen 2 und 10 μm . Bei weiterer Deposition auf der strukturierten Oberfläche nukleiert GaN vor allem an den Maskenrändern innerhalb der Wachstumsfenster. Dagegen ist der Haftkoeffizient von GaN auf SiO_2 oder Si_3N_4 vergleichsweise gering, so dass sich auf den Masken keine Wachstumskeime bilden, sondern das abgeschiedene Material zu den Maskenrändern wandert (s. Abb. A.1a)). Ist der gesamte Fensterbereich ausreichend bedeckt (s. Abb. A.1b) und c)), werden die Wachstumsbedingungen (Temperatur, Druck) im zweiten Wachstumsschritt so geändert, dass der Maskenbereich lateral überwachsen wird (A.1d)). Die Defektreduzierung beruht auf dem Prinzip, dass die im GaN-Puffer enthaltenen Versetzungslinien an der Maskierung geblockt werden und sich lediglich die innerhalb der Maskenöffnungen liegenden Versetzungen weiter ausbreiten.

Wie die Versetzungen weiter in der Schicht verlaufen hängt von der Oberflächenstruktur des überwachsenen Fensterbereiches ab: Hat der überwachsene Fensterbereich vertikale $\{1\bar{1}\bar{2}0\}$ -Facetten (s. Abbildung A.1, Model A), verlaufen die Versetzungen während des zweiten Wachstumsschritts im Fensterbereich ungestört nahezu parallel zur Wachstumsrichtung bis zur Oberfläche. Versetzungen breiten

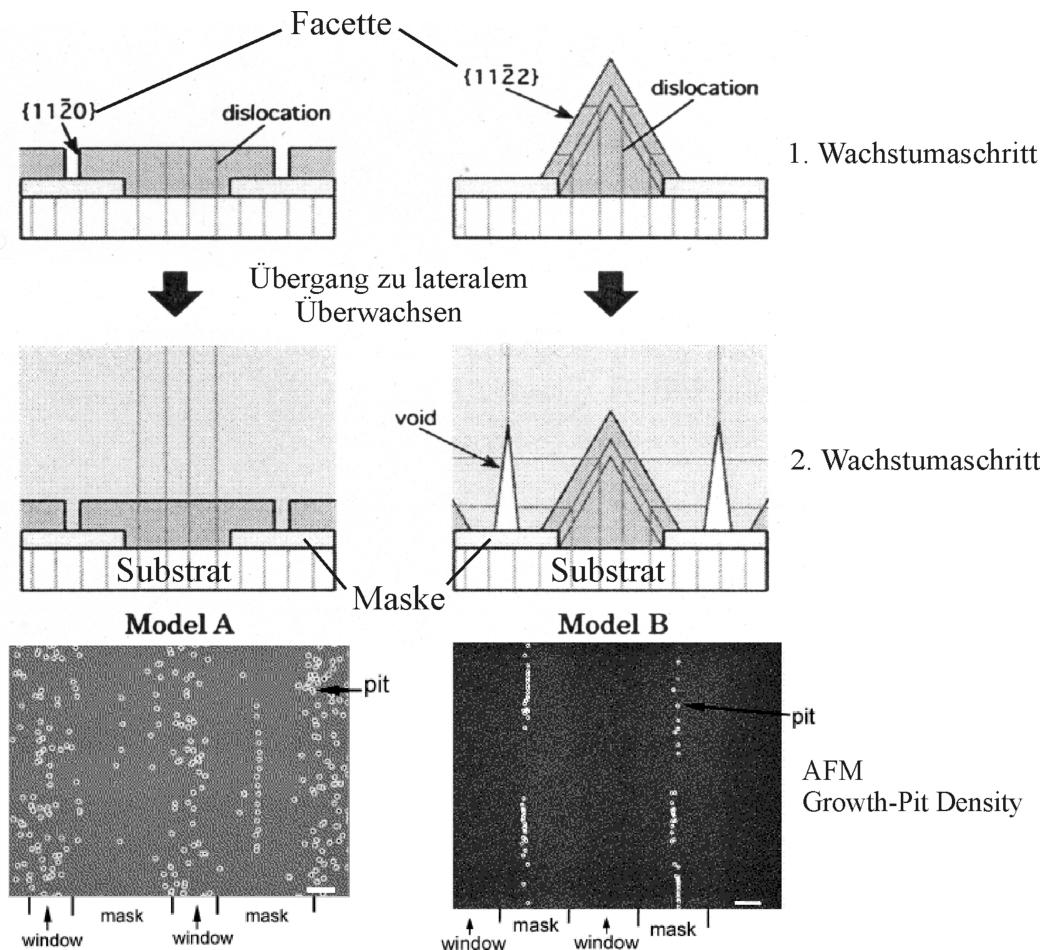


Abbildung A.2: Zwei verschiedene Arten des FACELO-Wachstums: Während sich bei Model A im ersten Wachstumsschritt $\{11\bar{2}0\}$ -Facetten ausbilden und sich Versetzungen im Fensterbereich bei lateralem Überwachsen bis zur Oberfläche ausbreiten, bilden sich in Model B $\{11\bar{2}2\}$ -Facetten aus, an deren Oberfläche die Versetzungen bei Überwachsen in die Basalebene abknicken.

Links und rechts oben ist eine Growth-Pit-Density-Aufnahme abgebildet: Während bei Model A Wachstum die Versetzungsichte im Maskenbereich reduziert und im Fensterbereich nicht beeinflusst wird, sind bei Model B Growth-Pits nur noch im Koaleszenzbereich sichtbar (Versetzungsichte $\approx 10^6 \text{ cm}^{-2}$) (Abbildungen aus [Hon01].)

sich also nur im Fensterbereich bis zur Oberfläche aus, der Maskenbereich ist nahezu versetzungsfrei. Liegen nach dem ersten Wachstumsschritt keine vertikalen Facetten, sondern z.B. Facetten in $\{11\bar{2}2\}$ -Richtung vor (s. Abbildung A.1, Model B), enden die Versetzungen statt an der $\{0002\}$ - an der $\{11\bar{2}2\}$ -Oberfläche. Beim

Überwachsen mit geänderten Wachstumsbedingungen knicken die Versetzungen in die {0001}-Ebene ab, teilweise in Richtung der Masken, teilweise senkrecht dazu. In welche Richtung das Abknicken erfolgt hängt von der Art der Versetzung (Stufen- und Schraubenversetzung) ab [Hon01]. Die nach dem Abknicken parallel zur Maskierung verlaufenden Stufenversetzungen laufen ungestört weiter bis zum seitlichen Rand der Probe und haben keinen Einfluss auf darüber gewachsene Schichten. Schrauben und gemischte Versetzungen knicken in Richtung der Maskierung ab. Bei einer koaleszierten Schicht enden sie, bei perfekt eingesetzten Wachstumsbedingungen, in den „voids“, sie können sich also nicht mehr weiter zur Oberfläche ausbreiten (s. Abb. , rechts). Allerdings entstehen durch Verspannungen im Koaleszenzbereich neue Versetzungen, die von den voids zur Oberfläche verlaufen und sich in darüber gewachsenen LED- oder LD-Schichten fortsetzen.

Durch diese Technik wird die Versetzungsichte im Fensterbereich reduziert (bei perfektem Wachstum ist der Fensterbereich sogar versetzungsfrei, s. Abb. A.1 rechtes AFM-Bild), allerdings propagieren im Koaleszenzbereich wegen der stärkeren Verspannungen, im Gegensatz zum {11 $\bar{2}$ 0}-Facetten-Wachstum, einige Versetzungen bis zur Oberfläche. Die Versetzungsichte ist aber auch in diesem Bereich stark reduziert.

	Model A	Model B
erster Wachstumsschritt		
Reaktordruck	80 Torr	500 Torr
Wachstumstemperatur	1000 °C	950 °C
Wachstumszeit	30 min	45 min
zweiter Wachstumsschritt		
Reaktordruck	500 Torr	500 Torr
Wachstumstemperatur	1050 °C	1050 °C
Wachstumszeit	90 min	105 min

Tabelle A.1: Typische Wachstumsbedingungen bei FACELO-Wachstum bei den beiden Modellen A und B, nach [Hon01]

In Tabelle A.1 sind typische Wachstumsparameter für die beiden Wachstums schritte bei FACELO-Wachstum dargestellt. Allgemein lässt sich sagen, dass bei höherem Druck und niedrigerer Temperatur {11 $\bar{2}$ 2}-Facetten-Wachstum auftritt, bei niedrigerem Druck und höherer Temperatur {11 $\bar{2}$ 0}-Facetten-Wachstum (s. Abb. A.3). Da das Einstellen der richtigen Wachstumsbedingungen nicht trivial ist (leichte Unterschiede in Druck und Temperatur bewirken große Unterschiede im auftretenden Facettenwachstum) [Hir00], treten oft Mischtypen auf, die sowohl {11 $\bar{2}$ 2}-Facetten als auch {11 $\bar{2}$ 0}-Facetten aufweisen. Unter bestimmten

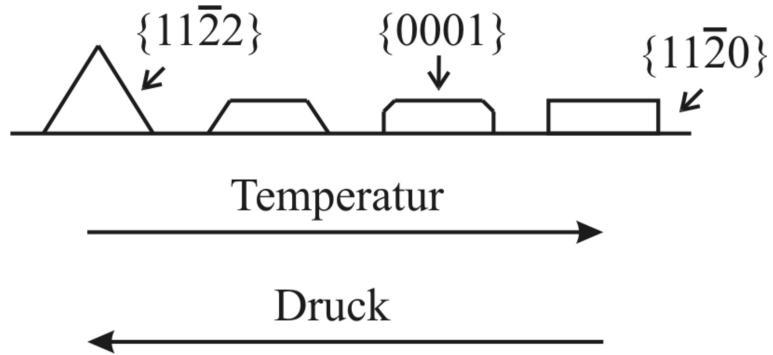


Abbildung A.3: Prinzipielle Abhängigkeit des Facettenwachstums bei FA-CELO im ersten Wachstumsschritt von den Wachstumsparametern Druck und Temperatur, nach [Hir00].

Umständen können sich auch andere Facetten als die bisher genannten ausbilden.

A.2 PENDEO

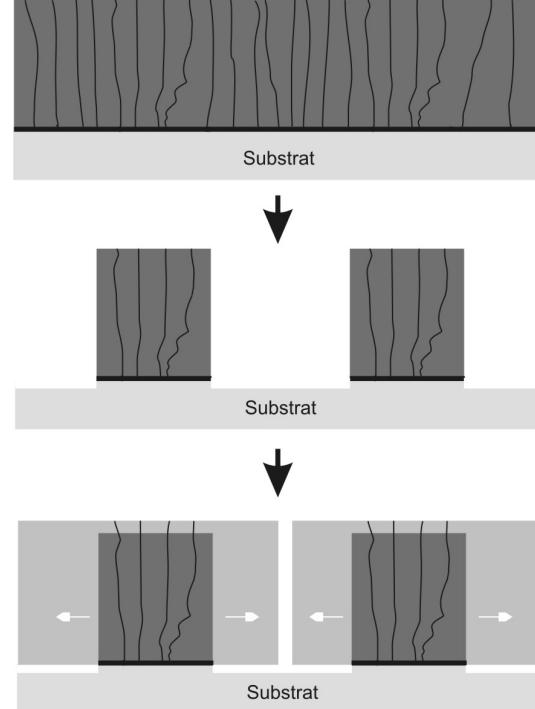


Abbildung A.4: Schematische Darstellung der verschiedenen Schritte für PENDEO Epitaxie.

Bei der Pendo Epitaxie [Ros02] [Rut03] wird zunächst eine GaN Schicht auf einem Fremdsubstrat abgeschieden (s. Abb. A.4 oben) und anschließend mittels Photolithographie und reaktivem Ionenätzen streifenförmig bis auf das Substrat zurück geätzt. Es entstehen GaN Streifen, die sich mit der Oberfläche des Substrats abwechseln (s. Abb. A.4 Mitte). Anschließend wird der GaN Wachstumsprozess wieder aufgenommen: GaN wächst (durch geeignete Wahl der Epitaxieparameter) an den verbliebenen GaN Streifen in lateraler Richtung an (s. Abb. A.4 unten). Die lateral überwachsenen Bereiche besitzen eine geringe Versetzungsdichte im Bereich von 10^5 cm^{-2} , die im ersten Schritt gewachsenen GaN Streifen sind nicht versetzungsreduziert. Es wechseln sich also auf der Probe im μm -Maßstab versetzungsarme und -reiche Abschnitte ab, die über einen größeren Bereich gemittelte Versetzungsdichte liegt im Bereich von 10^7 cm^{-2} .

Die auftretenden Probleme bei PENDEO Epitaxie ähneln den Problemen bei ELO-Epitaxie:

- Hohe Schichtdicken bis zur vollständigen Koaleszenz der Schicht sind notwendig.
- Das Anwachsen an die GaN Streifen erfolgt unter einem gewissen Winkel („wing-tilt“) - eine vollständig glatte Oberfläche ist schwer zu erreichen.
- In den Koaleszenzbereichen entstehen eine Vielzahl an Versetzungen und andere Gitterdefekte wie z.B. Stapelfehler.

A.3 PSS

Eine weitere Möglichkeit die Versetzungen in heteroepitaktisch gewachsenen Heterostrukturen zu reduzieren liegt, im Einsatz von strukturierten Al_2O_3 -Fremdsubstraten (patterned sapphire substrates, pss, Beispiel s. Abb. A.5) [Shi09] [Men12]. Die Versetzungsreduktion erfolgt hier durch die gänderten Wachstumsrichtungen durch die strukturierte Substratoberfläche: Durch geeignete Wahl der Epitaxieparameter findet Wachstum v.a. an den nicht $\{0001\}$ -Ebenen statt, die Ausbreitungsrichtung von Versetzungen ändert sich, Versetzungen laufen in den Zwischenbereichen der Al_2O_3 -Strukturen zusammen und können dort miteinander reagieren und sich gegenseitig auslöschen. Wie genau die Strukturierung der Saphir-Oberfläche aussieht ist abhängig vom Hersteller der Substrate, es gibt eine Vielzahl an Möglichkeiten, z.B. streifenförmige Strukturierung, konische Hügel, hexagonale Hügel, usw. Welcher Strukturierungstyp verwendet wird bzw. das beste Ergebnis liefert, hängt von den verwendeten Epitaxieparametern und den Anforderungen an die gewachsenen Schichten ab.

Das Prinzip der Versetzungsreduktion ist schematisch in Abb. A.6 (links) gezeigt,

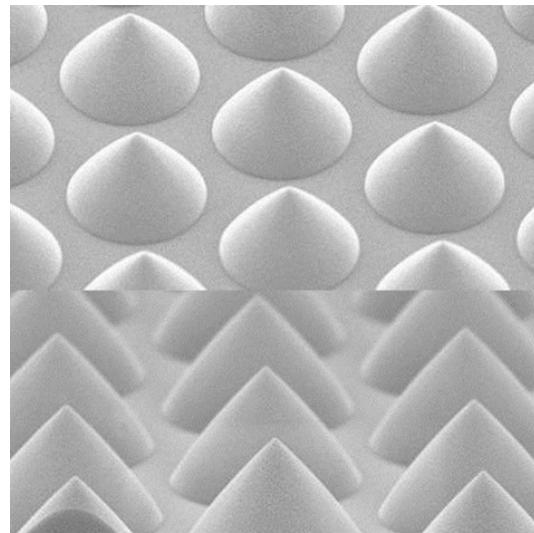


Abbildung A.5: REM-Aufnahmen einer Möglichkeit der Realisierung von strukturierten Substratobflächen zur Versetzungsreduktion [Ate12]. Die Ausdehnung und Höhe der Strukturen liegt im Bereich 1 μm.

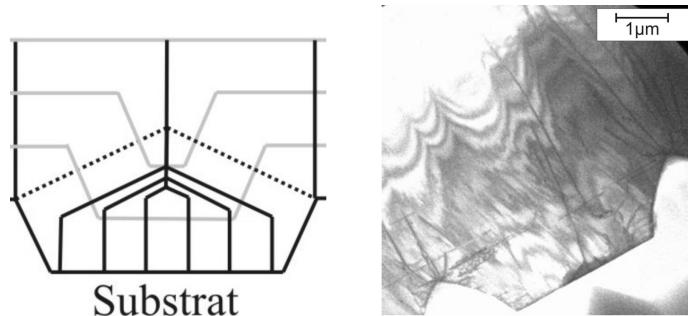


Abbildung A.6: Schematische Darstellung des Prinzips der Versetzungsreduktion mit Hilfe von strukturierten Substratoberflächen (links), TEM Aufnahme an einer auf einem strukturierten Al₂O₃-Substrat gewachsenen GaN Schicht (rechts).

eine TEM Aufnahme an einer pss Struktur in Abb. A.6 (rechts). Zu erkennen ist ein versetzungsrreduzierter Bereich zwischen den strukturierten Al₂O₃ Hügeln, jedoch auch die vielen Versetzungen die während der Koaleszenz an der Spitze der Al₂O₃ Hügel entstehen.

A.4 Zusammenfassung

In Tabelle A.2 sind die beschriebenen versetzungsreduzierenden Maßnahmen für Gruppe-III-Nitride als Übersicht zusammengefasst. Zusätzlich ist die in Kapitel 5.2 beschriebene Versetzungsreduktion durch eine SiN-Zwischenschicht mitaufgeführt.

Maßnahme	ex-situ Schritt	Mechanismus	erreichbare Versetzungsdichte
ELO	ja	laterales Überwachsen, Blocken von Versetzungen	$\sim 10^7 \text{ cm}^{-2}$
FACELO	ja	laterales Überwachsen, Blocken von Versetzungen	$\sim 10^6 \text{ cm}^{-2}$
PENDEO	ja	laterales Überwachsen	$\sim 10^7 \text{ cm}^{-2}$
PSS	nein	Änderung der Wachstumsrichtungen	$\sim 10^7 \text{ cm}^{-2}$
SiN IL	nein	laterales Überwachsen	$\sim 10^8 \text{ cm}^{-2}$

Tabelle A.2: Übersicht über versetzungsreduzierende Maßnahmen beim Wachstum von Gruppe-III-Nitriden.

Literaturverzeichnis

- [Amb98] O. Ambacher: *Growth and applications of Group III-nitrides*, J. Phys. D: Appl. Phys. vol. 31, 2653, (1998)
- [Ate12] <http://atecom.en.alibaba.com/>
- [Bea01] B. Beaumont, Ph. Vennégùès und P. Gibart: *Epitaxial Lateral Overgrowth of GaN*, phys. stat. sol. (b), vol. 227, 1, (2001)
- [Bec03] F. Bechstedt, J. Furthmüller und J. M. Wagner: *Electronic and vibrational properties of group-III nitrides: Ab initio studies*, phys. stat. sol. (c), 0, 1732, (2003)
- [Bee03] M. Beer: *TEM-Untersuchungen an Gruppe III-Nitrid Diodenstrukturen für blaue Laser*, Diplomarbeit, Regensburg, (2003)
- [Ben10] S. E. Bennett: *Dislocations and their reduction in GaN Materials Science and Technology*, 26, 1018, (2010)
- [Bil03] C. Bilzer: *TEM Untersuchungen an Gruppe III-Nitrid Heterostrukturen* Diplomarbeit, Regensburg, (2003)
- [Bin02] M. Binder: *Strukturelle Untersuchungen an querpräparierten Proben im Transmissionselektronenmikroskop*, Diplomarbeit, Regensburg, (2002)
- [Bra05] H. Braun: *Elektrische Feldabhängigkeit der Photolumineszenzspektren in InGaN/GaN - Heterostrukturen*, Diplomarbeit, Regensburg, (2005)

- [Bro91] I. N. Bronstein und K. A. Semendjajew: *Taschenbuch der Mathematik*, 25. Auflage, B. G. Teubner Verlagsgesellschaft, Stuttgart, Leibzig und Verlag Nakau, Moskau (1991)
- [Bru04] P. Brückner: *Einfluss der Prozessparameter beim epitaktischen Überwachsen von strukturierten GaN-Schichten mittels MOVPE*, Diplomarbeit, Ulm, (2004)
- [Cha05/1] A. Chakraborty, S. Keller, C. Meier, B. A. Haskell, S. Keller, P. Waterreit, S. P. Den Baars, S. Nakamura, J. S. Speck und U. K. Mishra: *Properties of nonpolar a-plane InGaN/GaN multiple quantum wells grown on lateral epitaxially overgrown a-plane GaN* Appl. Phys. Lett., vol. 86, 031901, (2005)
- [Cha05/2] A. Chakraborty, T. J. Baker, B. A. Haskell, F. Wu, J. S. Speck, S. P. Den Baars, S. Nakamura und U. K. Mishra: *Milliwatt Power Blue InGaN/GaN Light-Emitting Diodes on Semipolar GaN Templates* Jpn. J. Appl. Phys., vol. 44, 945, (2005)
- [Che01] D. Cherns, S. J. Henley und F. A. Ponce: *Edge and screw dislocations as nonradiative centers in InGaN/GaN quantum well luminescence*, Appl. Phys. Lett, vol. 78, 2691, (2001)
- [Che03] C. Chen, V. Adivarahan, J. Yang, M. Shatalov, E. Kuokstis und M. A. Kahn: *Ultraviolet Light Emitting Diodes Using Non-Polar a-Plane GaN/AlGaN Multiple Quantum Wells* Jpn. J. Appl. Phys. vol.42, 1039, (2003)
- [Chi04] A. Chitnis, C. Chen, V. Adivarahan, M. Shatalov, E. Kuokstis, V. Mandavilli, J. Yang und M. A. Kahn: *Visible light-emitting diodes using a-plane GaN - InGaN multiple quantum wells over r-plane sapphire* Appl. Phys. Lett., vol. 84, 3663, (2004)
- [Cho01] H. K. Cho, J. Y. Lee, G. M. Yang und C. S. Kim: *Formation mechanism of V defects in the InGaN/GaN multiple quantum wells grown on GaN layers with low threading dislocation density*, Appl. Phys. Lett., vol. 79, 215, (2001)
- [Com10] <http://www.compoundsemiconductor.net/csc/features-details.php?id=19645907>
- [Cra02] M. D. Craven, S. H. Lim, F. Wu, J. S. Speck und S. P. DenBaars: *Threading dislocation reduction via laterally overgrown nonpolar (11 $\bar{2}$ 0) a-plane GaN* Appl. Phys. Lett., vol. 81, 1201, (2002)

- [Dar97] I. Daruka und A.L. Barabasi: *Dislocation-Free Island Formation in Heteroepitaxial Growth: A Study at Equilibrium* Phys. Rev. Lett., vol. 79(19), 3708, (1997)
- [Das01] S. Dassonneville, A. Amakrone, B. Sieber, J.-L. Farvacque, B. Beaumont und P. Gilbert: *Luminescence of epitaxial GaN laterally overgrown on (0001) sapphire substrate: Spectroscopic characterization and dislocation contrast*, J. Appl. Phys., vol. 89, 3736, (2001)
- [Dav02] V. Y. Davydov, A. A. Klochikhin, V. V. Emtsev, D. A. Kurdyukov, S. V. Ivanov, V. A. Vekshin, F. Bechstedt, J. Furthmüller, J. Aderhold, J. Graul, A. V. Mudryi, H. Harima, A. Hashimoto, A. Yamamoto und E. E. Haller: *Band Gap of Hexagonal InN and InGaN Alloys*, phys. stat. sol. (b), vol. 234, 787, (2002)
- [Dwi02] R. Dwilinski , R.Doradzinski, J.Garczynski, L.P.Sierzputowski, A.Puchalski, Y.Kanbara, K.Yagi, H. Minakuchi und H.Hayashi: *Bulk ammonothermal GaN*, J. Crystal Growth, vol. 311, 3015, (2009)
- [Eng05] K. Engl: *TEM-Analysen an Gruppe III-Nitrid Heterostrukturen*, Dissertation, Regensburg, (2005)
- [Eng06] K. Engl, M. Beer, N. Gmeinwieser, U. T. Schwarz, J. Zweck, W. Wegscheider, S. Miller, A. Miler, H.-J. Lugauer, G. Brüderl, A. Lell und V. Härtle: *Influence of an in situ-deposited SiN_x intermediate layer inside GaN and Al-GaN layers on SiC substrates*, J. Crystal Growth, vol. 289, 6, (2006)
- [Fan04] X. L. Fang, Y. Q. Wang, H. Meidia und S. Mahajan: *Reduction of threatening dislocations in GaN layers using in situ deposited silicon nitride masks on AlN and GaN nucleation layers*, Appl. Phys. Lett., vol. 84, 484, (2004)
- [Fen06] M. Feneberg, F. Lipski, R. Sauer, K. Thonke, T. Wunderer, B. Neubert, P. Brückner und F. Scholz: *Piezoelectric fields in GaInN/GaN quantum wells on different crystal facets*, Appl. Phys. Lett., vol. 89, 242112, (2006)
- [Fur07] M. Furitsch: *Untersuchung von Degradationsmechanismen an (Al/In)GaN-basierenden Laserdioden*, Dissertation, Ulm, (2007)
- [Ger03] D. Gerthsen, E. Hahn, B. Neubauer, V. Potin, A. Rosenauer und M. Schowalter: *Indium distribution in epitaxially grown InGaN layers analyzed by transmission electron microscopy*, phys. stat. sol. (c), vol. 0, 1668, (2003)
- [Gme06] N. Gmeinwieser: *Hochrtaufgelöste spektroskopische Untersuchungen an Galliumnitrid* Dissertation, Regensburg, (2006)

- [Gra97] N. Grandjean, J. Massies, P. Vennégùès, M. Laügt und M. Leroux: *Epitaxial relationships between GaN and Al₂O₃(0001) substrates*, Appl. Phys. Lett., vol. 70, 643, (1997)
- [Hah00] E. T. Hahn: *Transmissionselektronenmikroskopische Untersuchung von Zusammensetzungsfluktuationen in epitaktischen In_xGa_{1-x}N-Schichten*, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, (2000)
- [Hal10] L. Halonen, E. Tetri und Pramod Bhusal: *Guidebook on Energy Efficient Electric Lighting for Buildings* Summary Report, Aalto University, (2010)
- [Har02] H. Harima: *Properties of GaN and related compounds studied by means of Raman scattering*, J. Phys.: Condens. Matter, 14, R967, (2002)
- [Han05] A. Hangleiter, F. Hitzel, C. Netzel, D. Fuhrmann, U. Rossow, G. Ade und P. Hinze: *Suppression of Nonradiative Recombination by V-Shaped Pits in GaInN/GaN Quantum Wells Produces a Large Increase in the Light Emission Efficiency*, Phys. Rev. Lett., vol. 95, 127402, (2005)
- [Her08/1] J. E. Hertkorn: *Verbesserung der lateralen Stromführung in hocheffizienten Halbleiterlichtquellen*, Dissertation, Universität Ulm, Abteilung Optoelektronik, (2008)
- [Her08/2] J. Hertkorn, F. Lipski, P. Brückner, T. Wunderer, S.B. Thapa, F. Scholz, A. Chuvalin, U. Kaiser, M. Beer, J. Zweck: *Process optimization for the effective reduction of threading dislocations in MOVPE grown GaN using in situ deposited SiN_x masks*, J. Cryst. Growth, vol. 310, 4867, (2008)
- [Hey96] B. Heying, X. H. Wu, S. Keller, Y. Li, D. Kapolnek, B. P. Keller, S. P. DenBaars und J. S. Speck: *Role of threading dislocation structure on the x-ray diffraction peak widths in epitaxial GaN films*, Appl. Phys. Lett., vol. 68, 643, (1996)
- [Hij06] M. Hijikuro, N. Kuwano, M. Takeuchi und Y. Aoyagi: *TEM analysis of annihilation process of threading dislocations in GaN thin films grown by MOVPE with anti-surfactant treatment*, phys. stat. sol. (c), vol. 3, 1832, (2006)
- [Hin00] T. Hino, S. Tomiya, T. Miyajima, K. Yanashima, S. Hashimoto und M. Ikeda: *Characterization of threading dislocations in GaN epitaxial layers*, Appl. Phys. Lett. 76, 3421, (2000)

- [Hir00] K. Hiramatsu, K. Nishiyama, M. Onishi, H. Mizutani, M. Narukawa, A. Motogaito, H. Miyake, Y. Iyechika und T. Maeda: *Fabrication and characterization of low defect density GaN using facet-controlled epitaxial lateral overgrowth (FACELO)*, J. Cryst. Growth, vol. 221, 316, (2000)
- [Hu91] S. M. Hu: *Misfit dislocations and critical thickness of heteroepitaxy*, J. Appl. Phys. Vol. 69, 7901, (1991)
- [Hon01] Y. Honda, Y. Iyechika, T. Maeda, H. Miyake und K. Hiramatsu: *Transmission Electron Microscopy Investigations of Dislocations in GaN Layer Grown by Facet-Controlled Epitaxial Lateral Overgrowth*, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 40, 309, (2001)
- [Ish00] Ishida M., Ogawa M., Orita K., Imafuji O., Yuri M., Sugino T. und Itoh K.: *Drastic Reduction of threading dislocation in GaN regrown on grooved stripe structure*, J. Cryst. Growth, vol. 221, 345, (2000)
- [Joy95] D. C. Joy: *X-Ray Spectrometry in Electron Beam Instruments*, Plenum Press, New York (1995)
- [Kai00] S. Kaiser: *TEM-Untersuchungen von heteroepitaktischen Gruppe III-Nitriden*, Dissertation, Regensburg, (2000)
- [Kal03] N. E. Kaluza: *MOVPE Growth and Characterization of $Al_xGa_{1-x}N$ Heterostructures for HEMT Application* Dissertation, RWTH Aachen, (2003)
- [Kim98] I.-H. Kim, H.-S. Park, Y.-J. Park und T. Kim: *Formation of V-shaped pits in InGaN/GaN multiquantum wells and bulk InGaN films*, Appl. Phys. Lett., vol. 73, 1634, (1998)
- [Kit96] C. Kittel: *Einführung in die Festkörperphysik*, 11. Auflage, Oldenbourg Verlag, München, (1996)
- [Kle11/1] S. Kaiser: *Transmissionselektronenmikroskopische Analysen zur Defektreduktion mittels SiN_x Zwischenschichten in AlGaN Heterostrukturen*, Dissertation, Ulm, (2011)
- [Kle11/2] O. Klein, J. Biskupek, K. Forghani, F. Scholz und U. Kaiser: *TEM investigations on growth interrupted samples for the correlation of the dislocation propagation and growth mode variations in AlGaN deposited on SiN_x interlayers*, J. Crystal Growth, vol. 324, 63, (2011)
- [Kuw07] N. Kuwano, M. Hijikuro, S. Hata, M. Takeuchi und Y. Aoyagi: *TEM analysis of an interface layer formed by the anti-surfactant treatment on a GaN template*, J. Crystal Growth, vol. 298, 284, (2007)

- [Lee05] S. R. Lee, A. M. West, A. A. Allerman, K. E. Waldrip, D. M. Follstaedt, P. P. Provencio, D. D. Koleske und C. R. Abernathy: *Effect of threading dislocations on the Bragg peakwidths of GaN, AlGaN, and AlN heterolayers*, Appl. Phys. Lett., vol. 86, 241904, (2005)
- [Mat74] J. W. Matthews, A. E. Blakeslee: *Defects in epitaxial multilayers*, J. Cryst. Growth, vol. 27, 118, (1974)
- [Met98] T. Metzger, R. Höpler, R. Born, O. Ambacher, M. Stutzmann, R. Stömmer, M. Schuster, H. Göbel, S. Christiansen, M. Albrecht und H. P. Strunk: *Defect structure of epitaxial GaN films determined by transmission electron microscopy and triple-axis X-ray diffractometry*, Phil. Mag. A, vol. 77, 1013, (1998)
- [Men12] L. Meng, W. Guohong, L. Hongjian, L. Zhicong, Y. Ran, W. Bing, L. Panpan, L. Jing, Y. Xiaoyan, W. Junxi und L. Jinmin: *Low threading dislocation density in GaN films grown on patterned sapphire substrates*, J. Semicond., 33(11), 113002, (2012)
- [Mon74] B. Monemar: *Fundamental energy gap of GaN from photoluminescence excitation spectra*, Phys. Rev. B, vol. 10, 676, (1974)
- [Mor08] H. Mordoc: *Handbook of Nitride Semiconductors and Devices: Vol. 1: Materials Properties, Physics and Growth*, Wiley Verlag GmbH, Weinheim, (2008)
- [Muk99] T. Mukai, M. Yamada und S. Nakamura: *Characteristics of InGaN-Based UV/Blue/Green/Amber/Red Light-Emitting Diodes*, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 38, 3976, (1999)
- [Nak92] S. Nakamura und T. Mukai: *High-Quality InGaN Films Grown on GaN Films*, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 31, 1457, (1992)
- [Nak99] S. Nakamura: *InGaN-based violet laser diodes*, Semicond. Sci. Technol. 14, R27–R40, (1999)
- [Nak00] S. Nakamura, S. Pearton und G. Fasol: *The Blue Laser Diode*, Springer, Berlin, (2000)
- [Nam97] O. H. Nam, M. D. Bremser, T. S. Zhaleva und R. F. Davis: *Lateral epitaxy of low defect density GaN layers via organometallic vapor phase epitaxy*, Appl. Phys. Lett. 71, 2638, (1997)

- [Nan03] Y. Nanishi, Y. Saito und T. Yamaguchi: *RF-Molecular Beam Epitaxy-Growth and Properties of InN and Related Alloys*, Jpn. J. Appl. Phys., vol.42, 2549, (2003)
- [Neu05] B. Neubert, F. Habel, P. Brückner, F. Scholz1, M. Schirra, M. Feneberg, K. Thonke, T. Riemann, J. Christen, M. Beer, J.Zweck, G. Moutchnik und M. Jetter: *Characteristics of GaInN quantum wells grown on non-(0001) facets of selectively grown GaN stripes* EW MOVPE XI, 375-377 (2005)
- [Neu08] B. M. Neubert: *GaInN/GaN LEDs auf semipolaren Seitenfacetten mittels selektiver Epitaxie hergestellter GaN-Streifen* Dissertation, Ulm, (2008)
- [Nis88] Nishinaga T., Nakano T. und Zhang S.: *Epitaxial lateral overgrowth of GaAs by LPE*, Jpn. J. Appl. Phys. 27, 964, (1988)
- [Nis05] K. Nishizuka, M. Funato, Y. Kawakami, Y. Narukawa und T. Mukai: *Efficient rainbow color luminescence from $In_xGa_{1-x}N$ single quantum wells fabricated on $\{11\bar{2}2\}$ microfacets*, Appl. Phys. Lett., vol. 87, 231901, 964, (2005)
- [Pak04] K. Pakula, R. Bozek, J. M. Baranowski, J. Jasinski und Z. Liliental-Weber: *Reduction of dislocation density in heteroepitaxial GaN: role of SiH₄ treatment*, J. Crystal Growth, vol. 267, 1, (2004)
- [Pas04] T. Paskova, D. A. Hanser und K. R. Evans: *GaN Substrates for III-Nitride devices*, Proceedings if the IEEE, vol. 98, 1324, (2010)
- [Pon95] F. A. Ponce, B. S. Krusor, J. S. Major, Jr., W. E. Plano und D. F. Welch: *Microstructure of GaN epitaxy on SiC using AlN buffer layers*, Appl. Phys. Lett., vol. 67, 410, (1995)
- [Rei93] L. Reimer: *Transmission Electron Microscopy*, Springer-Verlag, Berlin , (1993)
- [Ros90] H. Rose: Optik, vol. 85, 19 (1990)
- [Ros96] A. Rosenauer: *TEM-Untersuchungen von epitaktischen Grenzflächen in II-VI / III-V Heterostrukturen* Dissertation, Regensburg, (1996)
- [Ros02] A. M. Roskowski, E. A. Preble, S. Einfeldt, P. M. Miraglia, J. Schuck, R. Grober und R. F. Davis: *Reduction of diclocation density and strain in GaN thin films grown via maskless pendo-epitaxy*, Opto-Electronics Review, 10(4), 261, (2002)

- [Ros97] S. J. Rosner, E. C. Carr, M. J. Ludowise, G. Girolami und H. I. Erikson: *Correlation of cathodoluminescence inhomogeneity with microstructural defects in epitaxial GaN grown by metalorganic chemical-vapor deposition*, Appl. Phys. Lett., vol. 70, 420, (1997)
- [Rut03] P. Ruterana, M. Albrecht und J. Neugebauer: *Nitride Semiconductors: Handbook on Materials and Devices*, Wiley Verlag GmbH, Weinheim, (2003)
- [Sak97] Sakai A., Sunakawa H. und Usui A.: *Defect structure in selectively grown GaN films with low threading dislocation density*, Appl. Phys. Lett. 71, 2259, (1997)
- [Sch36] O. Scherzer: Z. Phys. vol. 101, 539, (1936)
- [Sch08] P. Schley, C. Napierala, R. Goldhahn, G. Gobsch, J. Schörmann, D. J. As, K. Lischka, M. Feneberg, K. Thonke, F. Fuchs und F. Bechstedt: *Band gap and effective electron mass of cubic InN*, phys. stat. sol. (c), vol. 5, 2342, (2008)
- [Sch00] M. Schowalter: *Transmissionselektronenmikroskopische Untersuchung des Einflusses der Gitterverspannung auf die Zusammensetzung von $In_xGa_{1-x}N$* , Diplomarbeit, Karlsruhe, (2000)
- [Shi09] H.-Y. Shin, S. K. Kwon, Y. I. Chang, M. J. Cho und K. H. Park: *Reducing dislocation density in GaN films using a cone-shaped patterned sapphire substrate*, J. Cryst. Growth, 311, 4167, (2009)
- [Sla73] G. A. Slack: *Nonmetallic crystals with high thermal conductivity*, J. Phys. Chem. Sol., vol. 34, 321, (1973)
- [Sla87] G. A. Slack, R. A. Tanzilli, R. O. Phol und J. W. Vandersande: *The intrinsic thermal conductivity of AlN*, J. Phys. Chem. Sol., vol. 48, 641, (1987)
- [Spe88] J. C. H. Spence: *Experimental High-Resolution Electron Microscopy*, Oxford University Press, New York, (1988)
- [Spi02] E. Speecker: Determination of crystal polarity from bend contours in transmission electron microscope images, Ultramicroscopy, vol. 92, 111, (2002)
- [Ste04] R. Stevenson: *GaN substrates offer high performance at a price*, Compound Semiconductor, vol. 10, 20 (2004)

- [Sug98] T. Sugahara, H. Sato, M. Hao, Y. Naoi, S. Kurai, S. Tottori, K. Yamashita, K. Nishino, L. Romano und S. Sakai: *Direct Evidence that Dislocations are Non-Radiative Recombination Centers in GaN*, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 37, 398, (1998)
- [Tak97] T. Takeuchi, S. Sota, M. Katsuragawa, M. Komori, H. Takeuchi, H. Amano und I. Akasaki: *Quantum Confined Stark Effect due to Piezoelectric Fields in GaInN Strained Quantum Wells* Jpn. J. Appl. Phys., 36, L382, (1997)
- [Tak99] T. Takeuchi, H. Amano und I. Akasaki: *Theoretical Study of Orientation Dependence of Piezoelectric Effects in Wurzite Strained GaInN/GaN Heterostrukturen and Quantum Wells* Jpn. J. Appl. Phys. vol.39, 413, (2000)
- [Tak00] H. Takahashi, A. Ito, T. Tanaka, A. Watanabe, H. Ota und K. Chikuma: *Effect of Intentionally Formed V-Defects on the Emission Efficiency of GaInN Single Quantum Well*, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 39, 569, (2000)
- [Tan00] S. Tanaka, M. Takeuchi und Y. Aoyagi: *Anti-Surfactant in III-Nitride Epitaxy - Quantum Dot Formation and Dislocation Termination*, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 39, 831, (2000)
- [Tom01] S. Tomiya, H. Nakajima, K. Funato, T. Miyajima, K. Kobayashi, T. Hino, S. Kijima, T. Asano und M. Ikeda: *Dislocations in GaN-Based Laser Diodes and Epitaxial Lateral Overgrown GaN Layers*, phys. stat. sol. (a), vol. 188, 69, (2001)
- [Uji89] Ujiie Y. und Nishinaga T.: *Epitaxial Lateral Overgrowth of GaAs on a Si Substrate*, Jpn. J. Appl. Phys. 28, 337, (1989)
- [Usu97] Usui A., Sunakawa H., Sakai A. und Yamaguchi A.: *Thick GaN Epitaxial Growth with Low Dislocation Density by Hydride Vapor Phase Epitaxy*, Jpn. J. Appl. Phys. 36, 899, (1997)
- [Utz07] M. Utz: *TEM-Untersuchungen zur Elementzusammensetzung in unterschiedlich hergestellten $In_xGa_{1-x}N$ Quantentrögen*, Diplomarbeit, Regensburg, (2007)
- [Var67] Y. P. Varshini: *Temperature dependence of the energy gap in semiconductors*, Physica, vol.34, 149, (1967)
- [Veg21] L. Vegard: *Die Konstitution der Mischkristalle und die Raumerfüllung der Atome*, Z. für Physik, vol. 5, 17, (1921)

- [Vis00] P. Visconti, K. M. Jones, M. A. Reshchikov, R. Cingolani, H. Morkoc und R. J. Molnar: *Dislocation density in GaN determined by photoelectrochemical and hot-wet etching*, Appl. Phys. Lett., vol. 77, 3532, (2000)
- [Vur03] I. Vurgaftman und J. R. Meyer: *Band parameters for nitrogen-containing semiconductors*, J. Appl. Phys., vol. 94, 3675, (2003)
- [Wal00] P. Walterreit, O. Brandt, M. Ramsteiner, R. Uecker, P. Reiche und K.H. Ploog: *Growth of M-plane GaN(1 $\bar{1}$ 00) on γ -LiAlO₂(100)*, J. Cryst. Growth, vol. 218, 143, (2000)
- [Wan01] K. Wang und R. R. Reeber: *Thermal expansion and elastic properties of InN*, Appl. Phys. Lett., vol. 79, 1602, (2000)
- [Wet04] C. Wetzel, T. Salagaj, T. Detchprohm, P. Li und J. S. Nelson: *GaN/GaN growth optimization for high-power green light-emitting diodes*, Appl. Phys. Lett., vol. 85, 866, (2004)
- [Wet05] C. Wetzel und T. Detchprohm: *Development of High Power Green Light Emitting Diode Chips*, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res., vol. 10, 1 (2005)
- [Wik13] <http://de.wikipedia.org/wiki/Farbwiedergabeindex>
- [Wil96] D. B. Williams und C. B. Carter: *Transmission Electron Microscopy*, Plenum Press, New York, (1996)
- [Wu98] X. H. Wu, C. R. Elsass, A. Abare, M. Mack, S. Keller, P. M. Petroff, S. P. DenBaars, J. S. Speck und S. J. Rosner: *Structural origin of V-defects and correlation with localized excitonic centers in InGaN/GaN multiple quantum wells*, Appl. Phys. Lett., vol. 72, 692, (1998)
- [Wu02] J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. Ager III, E. E. Haller, H. Lu, W. J. Schaff, Y. Saito und Y. Nanishi: *Unusual properties of the fundamental band gap of InN*, Appl. Phys. Lett., vol. 80, 3967, (2002)
- [Wun06] T. Wunderer: *Elektrolumineszenz-Untersuchungen an GaInN-Facetten-Quantenfilmen*, Diplomarbeit, Universität Ulm, Abteilung Optoelektronik, (2006)
- [Xia04] D. Xiao, K. W. Kim und J. M. Zavada: *Envelope-function analysis of wurtzite InGaN/GaN quantum well light emitting diodes*, J. Appl. Phys., vol. 96, 723, (2004)

Ein herzliches Dankeschön an

- Prof. Dr. Josef Zweck der mir die Möglichkeit zur Durchführung dieser Arbeit gegeben hat, für die umfangreiche Betreuung und für ganz viel Geduld...
- Prof. Dr. Dominique Bougeard für seine Bereitschaft als Zweitgutachter zur Verfügung zu stehen.
- das BMBF, das durch die Finanzierung diese Arbeit ermöglichte.
- meine Diplomanden (in der Reihenfolge des Auftretens...) Marcello Soda, Martin Brunner, Martin Utz und (zumindest noch teilweise) Johannes Thalmair, die wertvolle Beiträge zu dieser Arbeit geleistet haben.
- alle Projektpartner im BMBF-Projekt „1000 Lumen weiß“, für die Bereitstellung der untersuchten Proben. Namentlich möchte ich Barbara Neubert und Joachim Hertkorn erwähnen, die für einen Großteil der untersuchten Proben verantwortlich waren und viele vergleichende Messungen durchgeführt haben.
- Karl Engl für die Einführung in die Elektronenmikroskopie von Gruppe III Nitriden und später für die interessanten Proben von Osram OS.
- Olga Ganitcheva für die ausdauernde Unterstützung bei der Probenpräparation und für viele lustige und interessante Laborgespräche. Spasiba!
- Joe Zweck, Marcello Soda, Andrea Beer und Alice Lovrov für das Korrekturlesen dieser Arbeit und die sehr nützlichen Verbesserungsvorschläge (O-Ton: „Hosd eid du koa Rechtschreibprüfung in deim Computer...“).
- alle ehemaligen und gegenwärtigen Mitglieder der TEM-Arbeitsgruppe für das angenehme Arbeitsklima, die stete Hilfsbereitschaft bei Problemen und auch die vielen ausserphysikalischen Unternehmungen (TEM-Wochenenden, Italienurlaube,...).
- den Rest des Lehrstuhls Back für die zahlreichen Nachfeiern, Ausflüge, Turniere, Kart-Rennen, sportlichen Aktivitäten und was es sonst noch alles gab, die die Freizeit im Verlauf der Promotion unterhaltsam ausfüllten.
- Marcello Soda für viele gemeinsame Unternehmungen, Tagungen, Ausflüge mit und ohne Schranken, Besuche in Italien und alles andere. War mir eine Ehre, Dottore!

- die Fussballtruppe um Stefan Kreitmeier für viele unvergessene Stunden am Uni Sportgelände („Jetzt wird's aber schon gscheit dunkel...“-„Egal, noch ein Tor hamma gsagt!“).
- meinen gesamten Freundeskreis für die Unterstützung und (im positiven Sinne...) Ablenkung. Namentlich sei Sebastian Maier erwähnt, der mich während der gesamten Promotionszeit mit Rat und Tat begleitet hat.
- Alice Lovrov für die Unterstützung und Hilfe während der letzten Schritte bis zur Fertigstellung der Arbeit.
- meine Familie, dafür das sie mir das Physikstudium ermöglicht hat, viele aufbauende Worte und dass sie mich immer unterstützt haben.