

Herstellung hochreflektierender
AlGaN/AlN-DBR- und UV-VCSEL-
Strukturen mittels plasmaunterstützter
Molekularstrahlepitaxie

Vom Fachbereich Elektrotechnik und Informationstechnik
der Universität Hannover
zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Ingenieurwissenschaften

Dr.-Ing.

genehmigte Dissertation
von

Dipl.-Phys. Fritz Fedler

geboren am 1. Oktober 1971 in Nienburg/Weser

2003

1. Referent Prof. Dr.-Ing. J. Graul

2. Referent Prof. Dr.rer.nat. J. Osten

Vorsitz Prof. Dr.-Ing. J. Mucha

Tag der Promotion 21.8.2003

Schlagworte / *keywords* GaN, DBR, UV-Laser

Kurzfassung

In dieser Arbeit wird das Wachstum einer im Ultravioletten (UV) emittierenden GaN/AlGa_N/AlN *vertical cavity surface emitting laser* (VCSEL) Struktur mittels plasmaunterstützter Molekularstrahlepitaxie (MBE) und vorbereitende Untersuchungen an ebenfalls hergestellten AlGa_N/AlN Einzelschichten und *distributed Bragg reflectors* (DBR) beschrieben. Bei hier hergestellten UV-VCSEL Strukturen konnte nach Elektronenstrahl- und optischem Pumpen erfolgreich der für Mikroresonatoren spezifische Übergang von verstärkter, spontaner Emission zu stimulierter Emission nachgewiesen werden.

Es wird ein neuer Weg des Designs von Bragg-Spiegeln aufgezeigt, und das Wachstum der DBRs detailliert beschrieben. DBRs sind für die Herstellung des UV-VCSELS das kritische Element: Die bei weitem meiste Wachstumszeit einer VCSEL-Struktur entfällt auf die Spiegel. Mit der Reflektivität des Bragg-Spiegels steht und fällt die Funktionsfähigkeit des Vertikallasers. Die Qualität des Spiegels hängt von der Grenzschichtmorphologie der Halbperioden und der Einhaltung der Periodizität ab. Für diese beiden Parameter gilt es, das Kristallwachstum zu optimieren.

Begonnen wird mit der Wachstumsoptimierung und Charakterisierung von AlN- und AlGa_N-Einzelschichten. Zur strukturellen Analyse wird eine Weiterentwicklung der x-Bond-Methode der Röntgendiffraktometrie herangezogen. Optische Parameter werden mit Hilfe der spektroskopischen Ellipsometrie (SE) gewonnen. Dabei ist erstmals die Bestimmung der optischen Dispersion von GaN- und AlGa_N- Einzelschichten mit Hilfe des Tanguy-Modells vorgenommen worden. Sonst gängige Auswertungsverfahren nach Sellmeier oder Cauchy fassen nur transparente Medien mit gleichmäßiger Absorption im beobachteten Spektrum. Sie sind in diesem Fall für den UV-Spektralbereich weniger geeignet, da die geplante VCSEL-Struktur nah an der GaN-Bandkante emittieren soll, und folglich hier ein möglichst genaues Modell wünschenswert ist. Das Tanguy-Modell nimmt in besonderem Maße Rücksicht auf Effekte an der Bandkante der untersuchten Halbleiterkristalle, und ist dabei in seiner physikalischen Auslegung zuvor verwendeten, rein parametrischen Modellen überlegen.

Ein ~260 nm dicker AlN-Puffer auf dem Saphirsubstrat erwies sich als ideale Basis für das DBR-Wachstum. Mit Hilfe von unmittelbar vor dem DBR- bzw. VCSEL-Wachstum hergestellten Referenzschichten wurde *ex-situ* die optische Dispersion der verwendeten Einzelschichten festgestellt. Damit konnten die Wachstumsparameter der nachfolgenden Multiheterostrukturen festgelegt werden. Der Vergleich zwischen Spiegel-Design und gemessenem Reflektionsspektrum zeigt gute Übereinstimmung für die hergestellten DBRs.

Die Abfolge von 2D (für AlGa_N) und 3D (für AlN) Kristallwachstum ermöglicht das Wachsen der AlN- und AlGa_N-Spiegelhalbperioden bei gleicher Temperatur. Daraus folgen spezielle Verspannungseigenschaften, die im Rahmen einer Analyse der kritischen Schichtdicken der Halbperioden betrachtet werden. Der Grad der Verspannung wird durch den kombinierten Einsatz der erweiterten x-Bond-Methode an Referenzschichten und einer neuen, gemischt quantitativ-qualitativen Übergitteranalyse an den DBRs festgestellt.

Im Rahmen dieser Arbeit sind hervorragende Spiegelreflektivitäten von bis zu 97% (367 nm, 25,5-Perioden-AlGa_N/AlN-DBR) im gewünschten UV-Spektralbereich erreicht worden. Nachdem die Wachstumsparameter und Schichtfolgen der DBRs feststanden, konnten verschiedene MQW-Proben auf Eignung als aktives Medium geprüft werden. Schließlich wurden UV-VCSEL-Strukturen gewachsen, deren Kristallcharakteristik und die besonderen Probleme des langen Wachstums besprochen werden.

Abstract

In this work the growth of GaN/AlGaN/AlN vertical cavity surface emitting laser (VCSEL) structures designed for ultra violet (UV) emission via plasma-assisted molecular beam epitaxy (MBE) is described. Preliminary studies on AlGaN/AlN single layers as well as distributed Bragg reflectors (DBR) were carried out. During electron beam- and optical pumping experiments grown UV-VCSEL structures successfully demonstrated the micro-resonator typical crossover behavior from amplified spontaneous emission to stimulated emission.

A new procedure for designing DBRs is proposed and the following DBR growth described in detail. DBRs are the critical element for the UV-VCSEL production: by far the greatest amount of time pertains to the mirrors. High enough a reflectivity of the DBRs is the single most crucial characteristic for vertical lasing operation. Mirror quality strongly depends on interface morphology of the half-periods and periodicity of the DBR superlattice (SL). Crystal growth needs to be optimized for these properties.

First, growth parameter optimization and characterization of AlGaN and AlN single epitaxial layers is undertaken. Structural data of the single layers is gained by applying an improved x-ray diffraction (XRD) χ -Bond measurement. For the first time spectroscopic ellipsometry (SE) in conjunction with the Tanguy-model has been used for extraction of optical parameters of GaN and AlGaN single layers. The more common Sellmeier and Cauchy models may only be applied to transparent media with constant spectral absorption. They are not suited for the UV spectral range in this case because the designed VCSEL structure should radiate close to the GaN absorption edge. The Tanguy model includes a “physical” band edge description, therefore data interpretation is superior to other solely parametric models.

A ~ 260 nm thick AlN buffer grown on the sapphire substrate yielded best results for subsequent DBR deposition. With the aid of single layer reference samples grown immediately prior to DBR or VCSEL growth the respective dispersion data for the multihetero structure design was taken *ex-situ* via SE. This way, growth parameters for the DBR/VCSEL structure could be set accordingly. A comparison between DBR design (using the Tanguy dispersion data of the single layers) and measured reflection curves shows good agreement.

The successive 2D (for AlGaN) and a 3D (for AlN) crystal growth allows for steady temperature growth for both half-periods of a DBR. This results in specific strain properties discussed in the context of critical thicknesses of the different layers within the DBRs. A combination of the extended χ -Bond method used with respective reference samples and a newly devised quantitative-qualitative superlattice (SL) analysis for DBR samples facilitates strain assessment.

In this work outstanding mirror reflectivities are presented in the desired UV spectral region for the AlGaN/AlN material system of up to 97% (367 nm, 25.5 period AlGaN/AlN DBR). Following the successful establishment of suitable DBR design and growth conditions various multi quantum well (MQW) samples were tested for applicability as active medium within a VCSEL structure. Finally, UV-VCSEL structures were grown. Their structural quality and problems arising from the long growth process time are discussed.

INHALT

<i>Abkürzungsverzeichnis</i>	<i>viii</i>
<i>Symbolverzeichnis</i>	<i>ix</i>
1 Einleitung	1
1.1 Die VCSEL-Struktur	4
1.2 Das Materialsystem der Gruppe-III-Nitride	6
1.3 Übersicht	10
2 Plasmaunterstützte Molekularstrahlepitaxie	14
2.1 MBE-Technologie	15
2.1.1 Effusionszellen	18
2.1.2 Stickstoffplasmaquelle	29
2.1.3 Substrat.....	30
2.1.4 In-situ RHEED	32
2.2 Einzelschichtherstellung	37
2.2.1 GaN-Wachstum	37
2.2.2 GaN-Dotierung.....	44
2.3 Diskussion der Kristallqualität	48
2.3.1 Gitterfehler	49
2.3.2 Laterale Inhomogenität	52
3 DBR-Design mittels spektroskopischer Ellipsometrie	54
3.1 Meßprinzip der spektroskopischen Ellipsometrie	54
3.2 Theorie der Spektrensimulation	61
3.2.1 Modellierung eines Schichtstapels	62
3.2.2 Optische Dispersion nach dem Tanguy-Modell.....	64
3.2.3 Probeninhomogenität	69
3.3 GaN- und AlGaN-Einzelschichtspektrensimation	73
3.3.1 GaN-Einzelschicht	73
3.3.2 AlGaN-Einzelschichten.....	78
3.4 DBR-Design	80

4	<i>XRD-Analysemethoden für epitaktische Schichten und DBRs</i>	83
4.1	Reziproker Raum und Bragg-Bedingung	83
4.2	Gitterverspannung und Gitterverzerrung	85
4.3	Rekursive Auswertung der erweiterten x-Bond-Methode	88
4.4	Übergitterspektrenanalyse	91
4.4.1	Qualitative Betrachtung.....	92
4.4.2	Peak Positionen des Übergitterbeugungsbildes.....	93
4.5	Quantitativ-qualitative DBR-Spektrenauswertung	96
5	<i>Vorstudien für die DBR-Herstellung an GaN-, AlGaN- und AlN-Einzelschichten</i> ...	102
5.1	HT-AlN-Zwischenschichten in GaN-Einzelschichten	102
5.1.1	Wachstum.....	103
5.1.2	Schichtmorphologie	105
5.1.3	Verspannungsanalyse	107
5.1.4	Elektronische Eigenschaften	110
5.2	AlGaN-Einzelschichten	111
5.2.1	Wachstum.....	113
5.2.2	Schichtmorphologie und Verspannung	114
5.2.3	Optische Eigenschaften	119
5.3	Wachstumstemperaturuntersuchung an AlN- und AlGaN-Einzelschichten ..	121
5.3.1	Wachstum.....	122
5.3.2	Optische Eigenschaften	123
6	<i>DBR- und VCSEL-Wachstum</i>	126
6.1	Bragg-Reflektoren	127
6.1.1	DBR-Wachstumsanalyse.....	128
6.1.2	DBR-Verspannungsanalyse	137
6.1.3	Kritische Schichtdicken.....	141
6.1.4	DBR-Reflektionsspektrensimulation	148
6.2	Aktives Medium – MQW	151
6.3	Doppel-DBR-VCSEL-Wachstum	156
7	<i>Zusammenfassung</i>	160

8	<i>Dank</i>	163
9	<i>Anhang</i>	164
9.1	Tanguy-Simulationsparameter	164
9.2	Tabellenverzeichnis	166
9.3	Veröffentlichungen	167
9.4	Bibliographie	169
	<i>Lebenslauf</i>	175

Abkürzungsverzeichnis

2D	zweidimensional
3D	dreidimensional
AFM	atomic force microscopy
AlGaAs	Aluminiumgalliumarsenid
AlGaN	Aluminiumgalliumnitrid
AlN	Aluminiumnitrid
<i>barrier</i>	Potentialwall (im MQW)
CFOM	combined figure of merit
DBR	distributed Bragg reflector
EMT	effective medium theory
FET	field effect transistor
FWHM	full width at half maximum
GaN	Galliumnitrid
GaP	Galliumphosphid
HEMT	high electron mobility transistor
HRXRD	high resolution x-ray diffraction
HT-AlN-IL	high temperature AlN interlayer
HVPE	halide vapor phase epitaxy
III-V	Gruppe 3 und Gruppe 5 im Periodensystem der Elemente
IL	interlayer
InGaN	Indiumgalliumnitrid
InN	Indiumnitrid
KKR	Kramers-Kronig-Relation
LCAO	linear combination of atomic orbitals
LD	laser diode
LED	light emitting diode
LEO	lateral epitaxial overgrowth
MBE	molecular beam epitaxy
MOCVD	metal-organic chemical vapor deposition
MOSFET	metal oxide semiconductor field effect transistor
MQW	multi quantum well
MSE	mean squared error
OED	optical emission detector
PEC	photoelectrochemical (etching)
PL	Photolumineszenz
PSSA	polarizer sample step scan analyzer (SE Meßmodus)
QW	quantum well
RC	rocking curve
RF	radio frequency
RHEED	reflection high energy electron diffraction
rms	root mean square
RT	Raumtemperatur
SAED	selected area electron diffraction
SAW	surface acoustic wave
SE	Spektroskopische Ellipsometrie
SEM	scanning electron microscopy
SiC	Siliziumkarbid
SL	superlattice

TD	threading dislocation
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
UV	ultraviolett
VCSEL	vertical cavity surface emitting laser
VIS	visible
<i>well</i>	Quantenwanne
XRD	x-ray diffraction
α -Phase	hexagonale Wurtzit-Kristallstruktur
β -Phase	kubische Kristallstruktur

Symbolverzeichnis

a, a_0	laterale Gitterkonstante
a	Tanguy-Fitparameter, Stärke des optischen Oszillators
a_2	ellipsometrischer Fourierkoeffizient
a_V	Ausgaskoeffizient
A	Fläche
A	Analysatorwinkel
A	Tanguy-Fitparameter proportional zum Quadrat des Kane-Impulses
b	Betrag des Burger-Vektors
b	Tanguy-Fitparameter, Quadrat der Energie des optischen Oszillators
b_2	ellipsometrischer Fourierkoeffizient
c	vertikale Gitterkonstante
c, c_0	Lichtgeschwindigkeit
C_{ij}	Elastizitätsmoduln
d	Bragg-Ebenenabstand
d	Gasteilchendurchmesser
d_0	Durchmesser der Austrittsöffnung einer Knudsenzelle
d_{avg}	gemittelter Bragg-Ebenenabstand einer DBR-Periode
d_A	Bragg-Ebenenabstand der 1. DBR-Halbperiode
d_B	Bragg-Ebenenabstand der 2. DBR-Halbperiode
d_p	Eindringtiefe
dS	Flächenwinkel
$d\omega$	Raumwinkel
D	Effusionslänge (Atomstrahlweg in der UHV-Kammer)
e	Exponentialfunktion
$e_{ }$	AlGa _N Mischkristallverzerrung in a-Achsenrichtung relativ zu relaxiertem GaN
e_{\perp}	AlGa _N Mischkristallverzerrung in c-Achsenrichtung relativ zu relaxiertem GaN
E_c	Energie eines Versetzungslinienkerns
E_D	Durchbruchfeldstärke
E_g	Bandlückenenergie
E_p	Kane-Energie
f_a	laterale Gitterfehlpassung von AlN bezüglich GaN
f_c	vertikale Gitterfehlpassung von AlN bezüglich GaN
g_A	Wachstumsrate des Materials der 1. DBR-Halbperiode
g_B	Wachstumsrate des Materials der 2. DBR-Halbperiode
h	Schichtdicke

h, \hbar	Planck-Konstante
h, k, l	Miller-Indizes
h_c	kritische Schichtdicke
I	Intensität
k	Imaginärteil des Brechungsindex, Extinktionskoeffizient
k_B	Boltzmann-Konstante
L	DBR-Periodenlänge
L	mittlere freie Weglänge
L_0	Länge der Austrittsöffnung einer Knudsenzelle
L_A	1. DBR-Halbperiodenlänge
L_B	2. DBR-Halbperiodenlänge
M	Molmasse
m_e	effektive Elektronenmasse
m_h	effektive Lochmasse
$M_{p/s}$	Reflexionsmatrix
n	Realteil des Brechungsindex
$n(\vec{r})$	Elektronenanzahldichte
n_A	Atomflächendichte
\tilde{n}	Brechungsindexfunktion
nml_A	Anzahl der Monolagen der 1. DBR-Halbperiode
nml_B	Anzahl der Monolagen der 2. DBR-Halbperiode
N	DBR-Periodenanzahl
N_A	Avogadro-Konstante
p	Gasdruck
p	Grad der Polarisierung
P	Kane-Impuls
P	Polarisatorwinkel
q	Elementarladung (pos.)
Q	Ellipsenkippwinkel
r, ϑ, φ	Polarkoordinaten
r_{ab}	Ellipsenhauptachsenverhältnis
r_c	Radius eines Versetzungslinienkerns
r_p	paralleler Reflexionskoeffizient (Fresnel-Koeffizient)
r_s	senkrechter Reflexionskoeffizient (Fresnel-Koeffizient)
R	universelle Gaskonstante
R	Reichweite eines Tod-Feldes
R	Tanguy-Fitparameter, Rydberg-Konstante (Exzitonenbindungsenergie)
s	Haftkoeffizient
t	Zeit
t_A	Wachstumszeit der 1. DBR-Halbperiode
t_B	Wachstumszeit der 2. DBR-Halbperiode
T	Temperatur
T	Transmissionsintensität
T_z	Zersetzungstemperatur
v_s	Elektronengeschwindigkeit
V	Volumen
W_a	Clausing-Korrekturfaktor für Effusionszellen
x	Materialzusammensetzung

$\Delta_{e.m.}$	Phasenwinkel
Φ_0	Flussdichte
Γ	Tanguy-Fitparameter, Energieniveaubreiterungskoeffizient
Ψ, Δ	Ellipsometerwinkel
$\Psi_{e.m.}$	Ellipsenwinkel des Amplitudenverhältnisses
α	Winkel zwischen Burger-Vektor und Gitterfehler
α_a	lateraler Ausdehnungskoeffizient
α_c	vertikaler Ausdehnungskoeffizient
β	optischer Absorptionskoeffizient
χ	Wärmeleitfähigkeit
ε	dielektrische Funktion
$\langle \varepsilon \rangle$	effektive dielektrische Funktion
ε_0	dielektrische Konstante des Vakuums
ε_1	Realteil der dielektrischen Funktion
ε_2	Imaginärteil der dielektrischen Funktion
$\varepsilon_{i,j}$	Gitterverzerrung
ϕ	Lichteinfallwinkel
ϕ	Winkel zwischen Bragg-Ebenen und der Probennormalen
λ	Wellenlänge
μ	Elektronenmobilität
μ	magnetische Permeabilität
μ	versetzungslinientyp- und elastizitätskonstantenabhängige Konstante
μ_0	magnetische Permeabilität des Vakuums
ν	Poisson-Zahl
π	Kreiszahl
θ_B	Bragg-Winkel
2θ	XRD-Goniometerwinkel, Goniometerarm
ρ	spezifische Dichte
ρ	ellipsometrische Messgröße (Quotient der Fresnel-Koeffizienten)
σ	elektrische Leitfähigkeit
σ_D	Versetzungslinienflächendichte
$\sigma_{i,j}$	Gitterspannung
ω	Kreisfrequenz
ω	XRD-Goniometerwinkel, Probenteller
\vec{a}	reziproke Gittervektoren
\vec{b}	Burger-Vektor
\vec{B}	magnetische Flussdichte
\vec{D}	elektrische Flussdichte
\vec{E}	elektrische Feldstärke
\vec{G}	reziproker Gittervektor
\vec{G}_{\parallel}	reziproker Gittervektor in a-Achsenrichtung
\vec{G}_{\perp}	reziproker Gittervektor in c-Achsenrichtung
\vec{H}	magnetische Feldstärke
\vec{j}	elektrische Stromdichte

\vec{k}	Wellenvektor eines einfallenden Photons
\vec{k}'	Wellenvektor eines reflektierten Photons
\vec{p}	Impuls
\vec{r}	Ortsvektor
\vec{S}	Stokes-Vektor

1 Einleitung

Mit der Erfindung des Transistors im Jahre 1947 durch J. Bardeen, W. Brittain und W. Shockley begann, was gemeinhin als die elektronische Revolution bezeichnet wird [1]. Die Nobelpreis-prämierte Erfindung führte zu einer umfassenden Veränderung der Lebensumstände. Viele heute selbstverständliche technischen Hilfsmittel sind ohne Elektronik, und damit Halbleitertechnologie, nicht möglich: Computer, Mobiltelefone, Fernseher, „intelligente“ Autos und Waschmaschinen usw. Die Liste kann beliebig fortgesetzt werden. Die meisten elektronischen Anwendungen basieren auf Silizium, von dem behauptet werden darf, dass es technologisch beherrscht wird. Die Wechselbeziehung zwischen vermarkteter Technik und Forschung bringt aber immer neue Anwendungen hervor, die nach wie vor die Halbleitertechnologie vor große Herausforderungen stellen. Für bestimmte Funktionen werden dazu auch neue Halbleitermaterialien neben dem altbekannten Silizium oder Germanium untersucht und für den großtechnischen Einsatz erforscht.

Für Leuchtdioden (*light emitting diodes*, LED), Laserdioden (LD) und Detektoren für elektromagnetische Wellen verschiedener Spektralbereiche bedarf es Halbleiter mit direkter Bandlücke. Im sichtbaren Spektralbereich arbeitende LEDs werden heute aus AlGaAs (rot), GaP (grün) und AlP bzw. SiC (blau) hergestellt (Abbildung 1.1). Mit 15% ist die Quanteneffizienz bei roten AlGaAs-Dioden sehr gut; GaP- und SiC-Dioden weisen allerdings nur eine Effizienz von weniger als einem Prozent auf [2].

Neuere Ansätze basieren auf II-VI- und III-Nitrid-Halbleitern. Die verwendeten Se- und Te-Verbindungen der II-VI-Halbleiter leiden allerdings unter starker Degradation der Bauelemente. Die Gruppe-III-Nitride sind an mechanischer und thermischer Stabilität überlegen. Die Firma Nichia Chemical Industries produziert seit 1995 InGaN-LEDs für den grünen und blauen Spektralbereich, die den herkömmlichen Dioden an Leuchtstärke deutlich überlegen und an Lebensdauer mittlerweile ebenbürtig sind [3]. Große Bildschirme für öffentliche Plätze auf Diodenbasis gehören dadurch zum Alltagsbild der Metropolen der Welt, genau wie stromsparende Ampeln und Farbscanner, deren Empfindlichkeit den ganzen sichtbaren Wellenlängenbereich abdeckt [3,4]. UV-LEDs und UV-Detektoren eignen sich für so unterschiedliche Anwendungen wie Lithographie und Luftverschmutzungsmessungen [2]. Zwar sind schon seit 1998 auch kantenemittierende, blaue LDs auf InGaN-Basis kommerziell erhältlich [5], die erste in Europa hergestellte blaue LD wurde aber erst jetzt in Bremen vorgestellt [6]. Mit blauen LDs ist aufgrund der kürzeren Wellenlänge verglichen mit derzeitig verwendeten GaAs LDs unter anderem die Vervielfachung des Fassungsvermögens

einer CD-ROM möglich. Ein neuer Industriestandard soll gerade dafür geschaffen werden [7]. Nicht überschätzt werden kann die zukünftige Bedeutung der Nitride im Bereich der Weißlichtbeleuchtung. Werden die vorhandenen Lichtemissionshomogenitätsprobleme gelöst, können Glühlampe und Neonröhre durch die neue, stromsparende LED-Technik abgelöst werden. Dies kann z.B. durch die Kombination von mehreren LEDs, die bei verschiedenen Wellenlängen emittieren und so weißes Licht herstellen, erreicht werden. Eine zweite Möglichkeit umgeht das Homogenitätsproblem durch die Nutzung von blauen und UV-LEDs, denen ein phosphorizierender Stoff nachgeschaltet wird. Auf diese Weise sind bereits mit mehreren LEDs ausgestattete Autoscheinwerfer entwickelt worden [8]. Weißlichttaschenlampen mit jeweils einer LED auf Nitridbasis sind mittlerweile im Handel erhältlich.

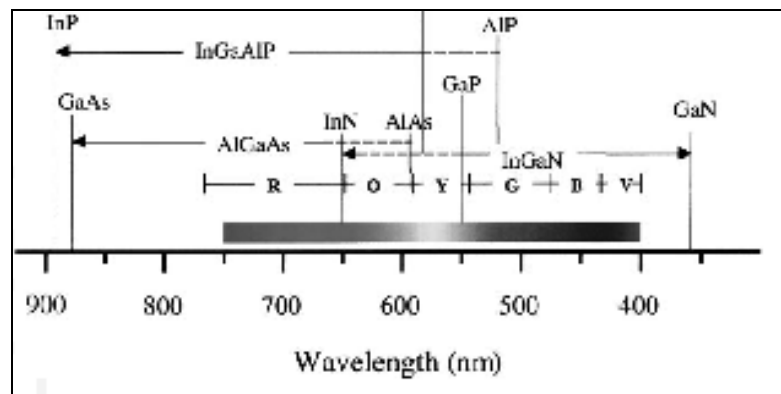


Abbildung 1.1. Verschiedene Halbleiter für die LED Anwendung im sichtbaren Spektrum [9].

Im Bereich der Leistungselektronik machen die Gruppe-III-Nitride ebenfalls große Fortschritte. Mit überlegener Durchbruchfestigkeit beim Einsatz in *high electron mobility transistor* (HEMT) und *metal oxide semi-conductor field effect transistor* (MOSFET) Strukturen, besserer Elektronenleitfähigkeit und der Möglichkeit zum Hochtemperatureinsatz (bis ca. 350 °C) lassen die Nitride die GaAs-, Si-, und z.T. auch schon die SiC-Konkurrenz hinter sich (Tabelle 1.1). Einsatzgebiete der Hochtemperaturelektronik sind die Auto- und Luftfahrtindustrie. Auch in klassischen Leistungselektronikbereichen wie Eisenbahn- und Kraftwerktechnik werden Nitrid-Bauelemente ihre Anwendung finden. Die hohe Durchbruchfestigkeit macht Nitrid-Bauelemente ebenfalls zu idealen Kandidaten für den Einbau in Radaranlagen und Mikrowellensendern. Der Einsatz in der Kommunikationstechnologie ist schon geplant: Sender und Empfänger von Mobiltelefonen werden derzeit mit GaAs-Transistoren bestückt. Nitridtechnologie verspricht größere Leistungsentfaltung bei zuverlässigem Einsatz.

Noch ist das Hauptproblem der Gruppe-III-Nitride die Fertigung in ausreichender Kristallqualität. Die theoretisch guten Kennzahlen gelten für fehlerlose „*bulk*“-Kristalle, und werden in der Praxis kaum erreicht. Hier ist nach wie vor Grundlagenforschung notwendig. Folglich ist ein Schwerpunkt der Halbleitertechnologie im Bereich der III-V Halbleiter der letzten Jahre die Untersuchung der Wachstumsprozesse der Nitride im Hinblick auf deren Optimierung.

Größe	Si	GaAs	4H-SiC	GaN
Bandlücke E_g [eV]	1,12	1,42	3,25	3,42
Durchbruchspannung E_D [MV/cm]	0,25	0,4	3,0	4,0
Elektronenmobilität μ [cm^2/Vs]	1350	6000	800	1300
Elektronengeschwindigkeit v_s [10^7cm/s]	1,0	2,0	2,0	3,0
Wärmeleitfähigkeit χ [W/cm K]	1,5	0,5	4,9	1,3
Dielektrische Konstante ϵ	11,8	12,8	9,7	9,0
CFOM= $\chi\epsilon\mu v_s E_B^2 / (\chi\epsilon\mu v_s E_B^2)_{\text{Si}}$	1	8	458	489

Tabelle 1.1. Vergleich wichtiger Halbleitereigenschaften bei Raumtemperatur [9]. Die *combined figure of merit* (CFOM) ist ein Maß für die Eignung des Einsatzes in elektronischen Bauteile relativ zum Silizium.

Die Entstehung von Kristallgitterfehlern und Stress, sowie die Dotierung und Strukturierung der Nitride sind noch immer nicht vollständig verstanden. Deswegen ist die Synthese des Materials auf für die Massenfertigung notwendig hohem technischen Niveau schwierig. Die weltweiten Anstrengungen lassen sich in drei eng miteinander verwobene Kategorien aufteilen:

1. Theoretische Grundlagen und materialspezifische Untersuchungen zur Bestimmung der Eigenschaften der Nitride (Bandstruktur, Materialkonstanten, usw.).
2. Elektronische Bauteile (Dioden, Transistoren, Thyristoren usw.).
3. Optische und optoelektronische Bauteile (LEDs, LDs, usw.).

Ein Überblick über Eigenschaften des Materialsystems der Gruppe-III-Nitride wird in Abschnitt 1.2 gegeben. Zum zweiten Punkt der Forschungstätigkeit auf dem Gebiet der Elektronik der Nitride sei auf die Dissertationen von J. Stemmer, T. Rotter und D. Mistele, verwiesen, die ebenfalls am Laboratorium für Informationstechnologie (Lfi) verfasst worden sind bzw. werden [10,11,12]. Diese Arbeit darf dem dritten Punkt der optischen Bauelemente zugerechnet werden. Im Vordergrund steht das Design, das epitaktische Kristallwachstum mittels PA-MBE und die Charakterisierung der *distributed Bragg reflector* (DBR)-Schichten.

Darüber hinaus wird das Wachstum der *vertical cavity surface emitting laser* (VCSEL)-Strukturen betrachtet. In einer weiteren Dissertation befasst sich H. Klausing mit dem Design der UV-VCSEL-Strukturen auf Grundlage der hier vorgestellten Einzelschichten und DBRs, sowie der Diskussion der Ergebnisse des optischen und Elektronenstrahl-Pumpens der hergestellten UV-VCSEL-Strukturen [13].

1.1 Die VCSEL-Struktur

Jüngere Anwendungen wie UV-Kameras [14] oder Hochleistungs-LEDs für Ampelschaltungen [3] sind nur möglich geworden, weil immer neue theoretische und experimentelle Untersuchungen zum besseren Verständnis des Verhaltens der Nitride beitragen. Auf dem Gebiet der optischen Bauelemente der Gruppe-III-Nitride steht nach der Realisierung diverser LED-Strukturen und blauer LDs in Form von Kantenemittern die Verwirklichung einer zuverlässigen VCSEL-Struktur im Mittelpunkt des Interesses. Bei Kantenemittern müssen nach dem epitaktischen Schichtwachstum des aktiven Mediums auf dem Substrat die Wafer gebrochen oder anderweitig geeignet strukturiert werden (Ätzen, Lithographie usw.), um die entstehenden Facetten als Spiegel des Lasers zu nutzen. Es kommt unter elektrischem oder optischem Pumpen zur Lateralemission. Der prinzipielle Aufbau eines elektrisch gepumpten Kantenemitters ist in Abbildung 1.2 zu sehen.

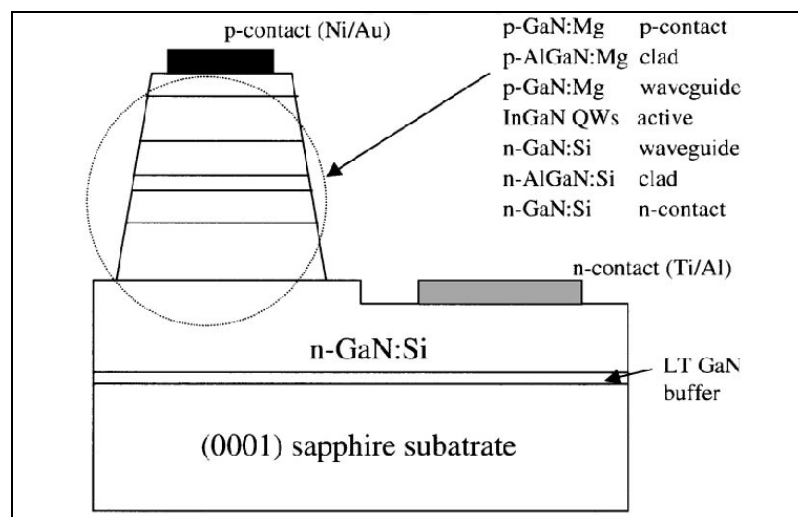


Abbildung 1.2. Konventionelle, elektrisch gepumpte InGaN-Kantenemitter Laserdiode [9]. Als aktives Medium dient ein InGaN-Quantum Well (QW).

Die laterale Ausdehnung des optischen Resonators von typischerweise $\sim 200 \mu\text{m}$ lässt viele Verstärkungsmoden zu. Weiterhin ist durch die Größe des optisch aktiven Gebiets der

Astigmatismus des ausgekoppelten Lichts unvermeidbar. Wo es auf Phaseninformation des Lichts ankommt, wird die Anwendung des Kantenemitters schwierig. Der inhärente „Linsenfehler“ macht das Einkoppeln von Licht in Lichtleiterkabel zur Datenübertragung wenn überhaupt nur über unpraktikable, komplizierte Linsensysteme möglich, die an jede LD angepasst werden müssten. Wo es hauptsächlich auf Leistungsentfaltung ankommt, wie etwa beim Lesen einer CD-ROM, ist das kein Problem.

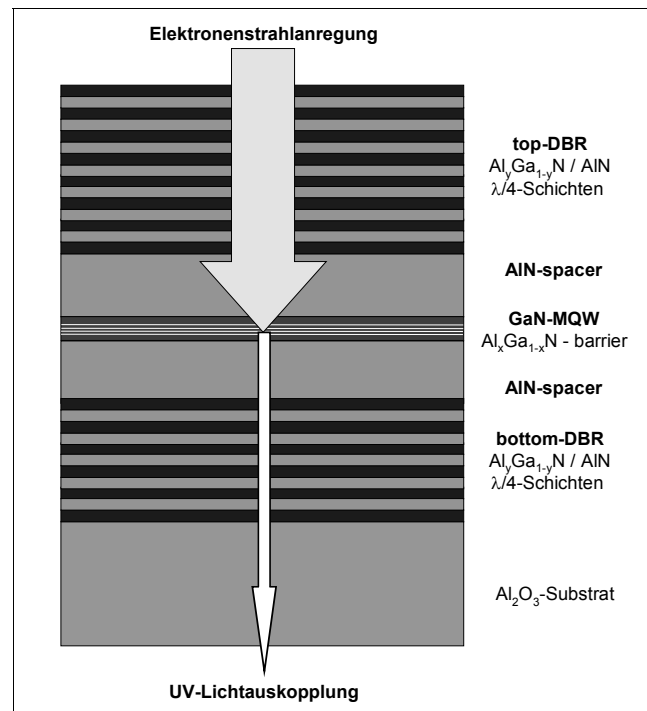


Abbildung 1.3. Grundschemata einer VCSEL-Struktur. Der GaN-MQW dient als aktives Medium. Die Dicke der AlN-spacer-Schichten ist so berechnet, dass ein Resonator entsteht. Elektronenstrahlpumpen führt zur vertikalen Lichtauskopplung durch das transparente Substrat.

Der Vertikalemitter hat demgegenüber einige Vorteile: Die optische Resonanzlänge ist durch das epitaktische Wachstum frei einstellbar. Üblich sind 2,5 bis 7,5 Emissionswellenlängen, also einige μm . Damit kann eine genaue Verstärkungsmodenauswahl getroffen werden. Der Astigmatismus kommt nicht vor, und damit wird der Einsatz in der Informationstechnik möglich. Die Effektivität des Lasers würde durch die Verwendung hochreflektierender Bragg-Spiegel (theoretisch $\sim 99,9\%$) gegenüber reflektierenden Bruchkanten ($\sim 75\%$) deutlich erhöht. Die Spiegel können im Nitrid-Materialsystem *in-situ* gewachsen oder *ex-situ* mit Dielektrika (SiO_2 , HfO_2 usw.), üblicherweise mittels *chemical vapor deposition* (CVD), realisiert werden. Das *in-situ* Verfahren maximiert die Prozessintegration und ist deshalb vorzuziehen. Ein weiterer Vorteil liegt in der Möglichkeit, Laser-arrays auf einem Wafer herzustellen. Bei

genauer Prozesskontrolle (d.h. optimierter Homogenität) ließe sich so die Laserstärke mit der Anzahl der Einzeldioden skalieren.

Die perfekt kontrollierte Herstellung derartig hochintegrierter, komplexer Bauteile, wie eines VCSELs (Grundstruktur nach Abbildung 1.3), ist zur Zeit weder mit *metal-organic chemical vapor deposition* (MOCVD) noch mit *molecular beam epitaxy* (MBE) Methoden verlässlich und reproduzierbar zu erreichen. Trotzdem wurden anderweitig erste VCSEL-Laborproben auf InGaN-Basis vorgestellt [15], die jedoch in keinster Weise kommerziellen Ansprüchen genügen.

In dieser Arbeit sollen Strukturen mit GaN/AlGaN-MQWs als aktivem Medium hergestellt werden. Im Gegensatz zu InGaN-basierter Technologie wird mit für GaN typischen Wellenlängen um 362 nm in den UV-Bereich vorgestoßen. Die einzige bisher demonstrierte stimulierte Emission nach optischem Pumpen einer GaN-basierten VCSEL-Struktur wurde 1996 vorgestellt [16]. Aufgrund des unpraktikablen aktiven Mediums, einer 10µm dicken GaN-Schicht, blieben nachfolgende Experimente jedoch aus. Die in dieser Arbeit verwendeten GaN/AlGaN-MQWs sind deutlich dünner und reduzieren die gesamte benötigte Wachstumszeit erheblich. Dem Autor sind neben den Aktivitäten in der eigenen Arbeitsgruppe lediglich zwei Beiträge zu UV-Vertikal-Dioden bekannt, die Ansätze zu dem neuerlichen Anlauf auf den UV-VCSEL bieten [17,18]. In den weiteren Kapiteln werden die Gründe für die Schwierigkeiten der VCSEL-Herstellung erläutert, und es werden Lösungsansätze für einige der dringendsten Probleme vorgestellt.

1.2 Das Materialsystem der Gruppe-III-Nitride

Die isomorphe Kristallreihe der Gruppe-III-Nitride GaN, AlN und InN und deren Mischkristalle zeichnen sich durch eine Reihe für Halbleiter hervorragender Eigenschaften aus. Alle drei sind Halbleiter mit direkter Bandlücke. Sie kommen in der thermodynamisch stabilen, hexagonalen α -, oder in der metastabilen, kubischen β -Phase vor (Abbildung 1.4). Die Mehrzahl der Anwendungen und Forschungspublikationen bezieht sich auf die hexagonale Wurtzit-Modifikation (Raumgruppe $P6_3mc$). Die Bandlücke lässt sich in der hexagonalen Mischkristallreihe zwischen dem Wert für InN (1,9 eV) und AlN (6,2 eV) frei einstellen. Damit sind die Gruppe-III-Nitride für optoelektronische Anwendungen geeignet. Die direkte Bandlücke macht es möglich, dass die Quanteneffizienz einer blauen InGaN-LED um den Faktor 200 höher liegt als die üblicher SiC-Dioden, die mit einer indirekten Bandkante auskommen müssen. Mit der Bandkante verändern sich im Mischkristall auch die

Gitterkonstanten. Die Abhängigkeit wird üblicherweise mit der quadratischen *bowing*-Parameter-Gleichung beschrieben. Für das $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Mischsystem erhält man

$$E_g = E_{g,\text{GaN}} + (E_{g,\text{AlN}} - E_{g,\text{GaN}} + b)x + bx^2, \quad (1.1)$$

mit b als *bowing*-Parameter, der das Maß für die Abweichung vom linearen Zusammenhang (Vegard) gibt. In der Literatur finden sich sehr unterschiedliche Werte für b . Für die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten AlGaN-Proben wurde $b=0,75$ eV festgestellt (Kapitel 5.2). Die verschiedenen Gitterkonstanten führen bei der Heteroepitaxie (Kapitel 2) zu Kristallverspannungen, die einen wesentlichen Anteil an den Problemen der Materialherstellung haben.

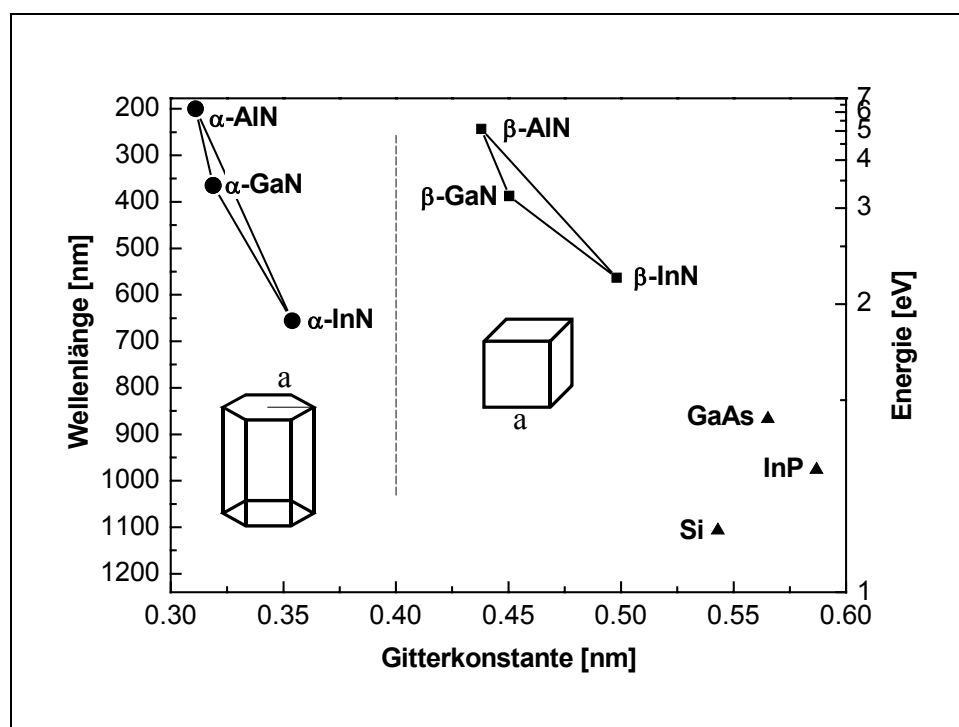


Abbildung 1.4. Gitterkonstanten und Bandkantenwellenlängen einiger Halbleiter [9]. Die durch die Verbindungslinien definierten Dreiecke geben die Einstellmöglichkeiten für die Bandlücke in den isomorphen Nitrid-Mischkristallreihen in hexagonaler Wurtzit- (α -) und kubischer Zinkblendestruktur (β -Phase) an.

Für das Design einer VCSEL-Struktur ist es von elementarer Bedeutung den Verlauf der dielektrischen Funktion ε zumindest in dem das Bauteil betreffenden Bereich zu kennen. Diese leitet sich aus der Bandstruktur des Halbleiters ab. Kritische Punkte im Bänderschema können im Spektrum von ε identifiziert werden. Die zu ε äquivalenten Größen Brechungsindex n und Absorption k müssen bekannt sein, um das Design von Bragg-Spiegeln zu betreiben. Die Bestimmung von n und k mittels Spektroskopischer Ellipsometrie (SE) ist

ein Hauptthema dieser Arbeit und wird in Kapitel 3 ausführlich behandelt. Die Bandstruktur der Nitride ist noch nicht bestimmt. Verschiedene theoretische Arbeiten zeigen je nach Modell z.T. deutliche Abweichungen voneinander. Als Beispiel diene die berechnete Bandstruktur von Wurtzit-GaN nach Abbildung 1.5.

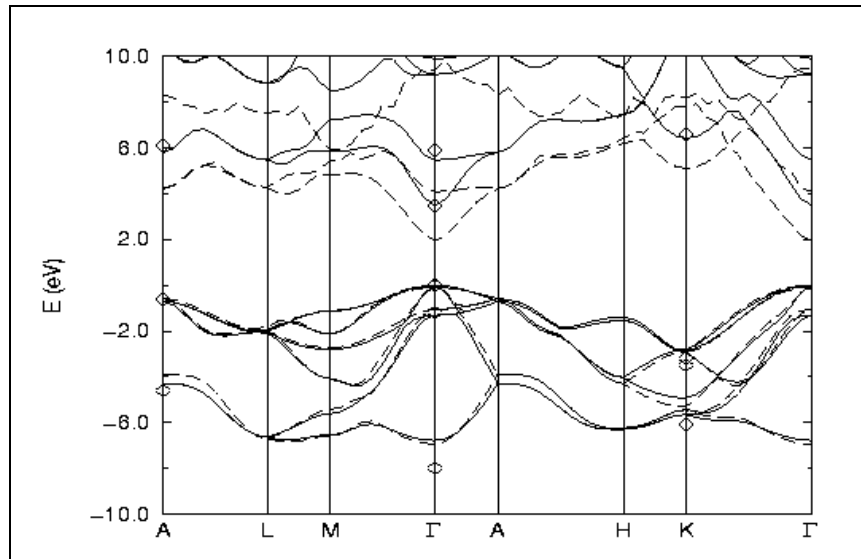


Abbildung 1.5. Bandstruktur von α -GaN in der ersten Brillouin-Zone. Die durchgezogenen Linien sind nach einem semi-empirischen Pseudo-Potential Modell berechnet, die gestrichelten Linien stellen eine *ab-initio* Kalkulation dar. Die mit Rauten markierten kritischen Punkte sind über verschiedene Verfahren der Messung zugänglich und dienen der Kontrolle der Modelle [19].

Die erheblichen Abweichungen im Leitungsband zwischen den beiden gezeigten Berechnungen sind auf verschiedene Voraussetzungen der Modelle zurückzuführen. Der semi-empirische Ansatz erweist sich als der bessere, da das Resultat näher an den gemessenen kritischen Punkten liegt (Rauten in Abbildung 1.5). Die aus den Modellen berechenbaren physikalischen Größen, wie Gitterkonstanten, Bandlücke, effektive Massen usw., weichen folglich ebenfalls von tatsächlich gemessenen Werten ab [19]. Theoretische Modelle können daher zur Zeit nur als Anhalt für die Vorhersage der Eigenschaften eines zu wachsenden Kristalls genutzt werden. Hinzu kommt, dass durch systematische Produktionsunterschiede, wie sie zwischen verschiedenen Herstellungsverfahren bestehen, die Materialeigenschaften beeinflusst werden. Auch Proben, die unter Anwendung der gleichen Technologie gewachsen wurden, aber aus verschiedenen Reaktoren stammen, werden unterschiedliche Schichtparameter aufweisen. Die Verfeinerung des Designs eines Bragg-Spiegels mit vorgegebenen optischen Eigenschaften kann deshalb nur unter Rückfluss von Materialparametern aus der Produktion selbst erfolgen. Es gibt noch keinen einheitlichen

Standard für die Wachstumsparameter, was sie zum Gegenstand der Forschung macht. Verschiedene Wachstumstemperaturen und Abkühlprozesse führen zu unterschiedlichen Verspannungen, die Kristallfehler nach sich ziehen. Die verschiedenen Wärmeleitfähigkeiten und Elastizitätsmoduln des Nitrid-Materialsystems nach Tabelle 1.2 im Zusammenspiel mit Substrateigenschaften stellen das große Problem der Heteroepitaxie dar (Kapitel 2). Wichtiger als die Schmelztemperatur bei Atmosphärendruck ist für die MBE der Nitride die Zersetzungstemperatur T_z im Vakuum. Damit ist diejenige Temperatur gemeint, ab welcher der Stickstoffpartialdruck bei einem UHV-Hintergrunddruck beginnt exponentiell anzusteigen [27]. Oberhalb T_z geht soviel Stickstoff aus den Nitridfilmen aus, dass das Material zersetzt wird, wenn der Umgebende Stickstoffpartialdruck dem N_2 -Dampfdruck nicht angepasst wird. Die Wachstumstemperatur sollte in der MBE stets unterhalb von T_z liegen, was dazu führt, dass das Wachstum nicht im thermodynamischen Gleichgewicht stattfindet. Durch die niedrige Wachstumstemperatur werden Segregations- und Diffusionseffekte unterdrückt. Das Resultat sind abrupte Materialübergänge beim Wachstum von Heterostrukturen.

Größe	InN	GaN	AlN
Bandlücke E_g [eV]	1,89 ^{a)}	3,39 ^{g)}	6,2 ^{a)}
Gitterkonstante c [nm]	5.703 ^{a)}	5.185 ^{a)}	4.98 ^{a)}
Gitterkonstante a [Å]	3.538 ^{a)}	3.189 ^{a)}	3.11 ^{a)}
c/a	1,612 ^{a)}	1,626 ^{a)}	1,601 ^{a)}
Ausdehnungskoeffizient α_c [$10^{-6}K^{-1}$]	2,6 ^{a)}	2,8 ^{a)}	3,4 ^{a)}
Ausdehnungskoeffizient α_a [$10^{-6}K^{-1}$]	3,6 ^{a)}	3,1 ^{a)}	2,9 ^{a)}
Wärmeleitfähigkeit χ [W/cmK]	0,8 ^{a)}	1,5 ^{b)}	2 ^{b)}
Durchbruchspannung E_D [MV/cm]	1,0 ^{c)}	4,0 ^{d)}	11,7 ^{c)}
effektive Massen m_e [m_0]	0,11 ^{e)}	0,20 ^{e)}	0,48 ^{f)}
Dichte ρ [g/cm ³]	6,81 ^{f)}	6,15 ^{f)}	3,23 ^{f)}
Elastizitätsmoduln [GPa]			
C11	223 ^{h)}	367 ^{h)}	396 ^{h)}
C12	115 ^{h)}	135 ^{h)}	137 ^{h)}
C13	92 ^{h)}	103 ^{h)}	108 ^{h)}
C33	224 ^{h)}	405 ^{h)}	373 ^{h)}
C44	48 ^{h)}	95 ^{h)}	116 ^{h)}
Schmelztemperatur [°C]	1100 ⁱ⁾	1700 ⁱ⁾	3000 ⁱ⁾
Zersetzungstemperatur T_z [°C]	630 ⁱ⁾	850 ⁱ⁾	1040 ⁱ⁾

Tabelle 1.2. Ausgewählte Eigenschaften des isomorphen Wurtzit-Nitridmaterialsystems bei Raumtemperatur aus

^{a)} [20], ^{b)} [21], ^{c)} [22], ^{d)} [9], ^{e)} [23], ^{f)} [24], ^{g)} [25], ^{h)} [26], ⁱ⁾ [27].

Die in Tabelle 1.2 gegebenen Werte hängen üblicherweise von der Temperatur ab. Das prominenteste Beispiel hierfür ist die Bandlücke, die mit der empirischen Varshni-Beziehung beschrieben werden kann [28]:

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha T^2}{\beta + T}. \quad (1.2)$$

Die Bandlücke wird mit zunehmender Temperatur kleiner. Für die Nitride liegt die RT-Bandkante ca. 1-1,5% unterhalb von $E_g(0)$. Für GaN wird α mit $5,84 \cdot 10^{-4}$ eV/K und β mit 465 K angegeben. Für das Wachstum ist die Temperaturabhängigkeit der thermischen Ausdehnungskoeffizienten wichtig. Für GaN liegen diese bei 700-750°C etwa doppelt so hoch wie für Raumtemperatur (RT) in Tabelle 1.2 angegeben: vertikal ist $\alpha_c = 6,1 \cdot 10^{-6}$ K⁻¹ und lateral $\alpha_a = 6,2 \cdot 10^{-6}$ K⁻¹ [20]. Die großen Elastizitätsmoduln zeigen die hohe Steifigkeit besonders von AlN. Da AlN neben der sehr hohen thermischen Stabilität genügend große piezoelektrische Konstanten aufweist, ist eine Anwendung im Bereich der *surface acoustic wave* (SAW) Bauteile denkbar. Diese beruhen auf der Umwandlung elektrischer in mechanische Schwingungen und umgekehrt. Ab einer Bandlücke von ca. 5,5 eV soll der AlGaN-Mischkristall, wie für reines AlN gezeigt, eine negative Elektronenaffinität aufweisen [29]. Damit ist das Materialsystem zur Konstruktion einer kalten Kathode geeignet, die bisherige, heiße Elektronenemitter ersetzen könnte.

Die Materialeigenschaften der Gruppe-III-Nitride, wie sie die isomorphe Kristallreihe InN, AlN und GaN aufweist, bilden eine hervorragende Grundlage für die Produktion neuer elektronischer wie optischer Halbleiterbauelemente. Die Ausbeutung dieses naturgegebenen Potentials ist aber nur mit Hilfe einer zuverlässigen Prozesstechnologie zu erreichen.

1.3 Übersicht

Das Prinzip der Herstellung und das Design einer VCSEL-Struktur ist aus anderen Materialsystemen (besonders GaAs) hinreichend bekannt. Nach Abbildung 1.4 machen die Gruppe-III-Nitride in ihrer hexagonalen Phase die Konstruktion von UV-Laserstrukturen möglich. Allerdings legen sehr wenige Arbeitsgruppen ihren Schwerpunkt auf UV-VCSEL, da die Beherrschung des aktiven Mediums und der umliegenden *distributed Bragg reflector* (DBR) Struktur im Bereich um 362 nm (Bandlücke von GaN) technologische Schwierigkeiten aufwirft, weil nicht mit leichter beherrschbarem InGa_N, sondern mit GaN und AlGa_N gearbeitet werden muss.

Für optische Bauelemente sind zunächst weniger evtl. gute elektronische Eigenschaften des Materials entscheidend, als vielmehr die Oberflächen- bzw. Grenzflächenmorphologie. In der „Tiefe“ der Schicht vorhandene Gitterfehler sind nur in so fern von Interesse, als sie durch Wechselwirkung mit Licht im für das Bauteil interessierenden Bereich störend wirken können. Im Idealfall fällt elektrische und optische Qualität einer epitaktischen Schicht natürlich zusammen. Das ist jedoch in der heutigen Nitrid-Epitaxie noch nicht selbstverständlich.

Das Ziel dieser Arbeit ist die Herstellung einer UV-VCSEL-Struktur nach Abbildung 1.3. Das Design der Struktur ist auf die Anregung per Elektronenstrahl durch den oberen DBR ausgelegt. Die Eindringtiefe des Elektronenstrahls muss bis in das aktive Medium reichen. Die Lichtauskopplung erfolgt durch das transparente Substrat. In den folgenden Kapiteln wird ein neuer Weg des Designs von Bragg-Spiegeln aufgezeigt, und das Wachstum der DBRs detailliert beschrieben. DBRs sind für das Wachstum des UV-VCSELs das kritische Element: Die bei weitem meiste Wachstumszeit einer VCSEL-Struktur entfällt auf die Spiegel. Mit der Reflektivität des Bragg-Spiegels steht und fällt die Funktionsfähigkeit des Vertikal-Lasers. Die Qualität des Spiegels hängt von der Grenzschichtmorphologie der beiden Halbperioden und der Einhaltung der Periodizität ab. Für diese beiden Parameter gilt es, das Kristallwachstum zu optimieren. Die praktische Arbeit wurde daher begonnen mit der Wachstumsoptimierung und Charakterisierung von AlN- und AlGaN-Einzelschichten (Kapitel 5.2). Zur Analyse wird eine Weiterentwicklung der x-Bond-Methode der Röntgendiffraktometrie herangezogen. Ebenfalls neu ist die Bestimmung der optischen Parameter der Einzelschichten mit Hilfe des Tanguy-Modells. Sonst gängige Auswertungsverfahren nach Sellmeier oder Cauchy fassen nur transparente Medien mit gleichmäßiger Absorption im ganzen Spektralbereich. Sie sind für den UV-Spektralbereich weniger geeignet, da die geplante VCSEL-Struktur nah an der GaN-Bandkante emittieren soll, und folglich hier ein möglichst genaues Modell wünschenswert ist. Das hier verwendete Tanguy-Modell nimmt in besonderem Maße Rücksicht auf Effekte an der Bandkante der untersuchten Halbleiterkristalle, und ist dabei in seiner physikalischen Auslegung zuvor verwendeten, rein parametrischen Modellen überlegen (Kapitel 3).

Nochmals aufgegriffen wurde im Zusammenhang mit der Abfolge der AlN- und AlGaN-Schichten innerhalb eines Spiegels die Einfügung von AlN-Hochtemperatur-Zwischenschichten (*high temperature AlN interlayer*; HT-ALN-IL), wie sie erstmals J. Stemmer ausführlich beschrieben hat (Kapitel 5.1)[10].

Neben Einzelschichten wurden auch verschiedene Puffer untersucht. Ein ~260 nm dicker AlN-Puffer erwies sich als ideale Basis für die DBR-Produktion. Ein besonderer, kombinierter 2D/3D-Wachstumsprozeß ermöglicht die Deposition der AlN- und AlGaN-Spiegelhalbperioden bei gleicher Temperatur. Daraus folgen spezielle Verzerrungseigenschaften, die im Rahmen der Analyse der kritischen Schichtdicken gesondert betrachtet werden (Kapitel 6.1). Die Verzerrungscharakterisierung wird möglich durch den kombinierten Einsatz der erweiterten x-Bond-Methode an Referenzschichten und eine detailliert beschriebene, gemischt quantitativ-qualitative Übergitteranalyse an den DBRs selbst (Kapitel 4). Im Rahmen dieser Arbeit sind für das vorliegende Materialsystem hervorragende Spiegelreflektivitäten von bis zu 97% mit einem 25,5-Perioden-Spiegel bei der gewünschten UV-Design-Wellenlänge von 367 nm erreicht worden.

Nachdem die Wachstumsparameter und Schichtfolgen der DBRs feststanden, konnten verschiedene MQW-Proben auf Eignung als aktives Medium geprüft werden (Kapitel 6.2). Schließlich wurde ein VCSEL-Design erstellt und mehrere VCSEL-Strukturen gewachsen, deren Kristallcharakteristik und die besonderen Probleme des langen Wachstums besprochen werden (Kapitel 6.3). Das Design und die optische Charakterisierung der VCSEL-Strukturen sind Inhalt der Dissertation H. Klausings [13]. Dort wird an den hier hergestellten UV-VCSEL Strukturen der für Mikroresonatoren spezifische Übergang von verstärkter, spontaner Emission zu stimulierter Emission nach Elektronenstrahl- und optischem Pumpen erfolgreich nachgewiesen.

Die Aufteilung der Arbeit gestaltet sich wie folgt: In Kapitel 2 wird die Riber-MBE32 Anlage vorgestellt und grundlegend die Prozesstechnik erklärt. Es folgt die Beschreibung des Wachstum von GaN-Einzelschichten und experimentelle Ergebnisse zur Dotierung mit Si und Mg. Das Kapitel schließt mit Anmerkungen zu Kristallgitterfehlern und Probeninhomogenität. Kapitel 3 beschäftigt sich im Detail mit der spektroskopischen Ellipsometrie (SE), die als unverzichtbares, prozessbegleitendes Charakterisierungsverfahren benutzt wurde. Die Parameter des Tanguy-Modells für GaN werden mit Hilfe von Einzelschichtanalysen etabliert. Ausführlich wird auf das Tanguy-Modell und seine Anwendung auf AlGaN-Schichten und für das Design der Bragg-Spiegel eingegangen. Kapitel 4 zeigt die Grundlagen der Röntgendiffraktometrie und beschreibt sowohl die erweiterte x-Bond-Methode als auch die neu entwickelte quantitativ-qualitative Übergitterspektrenanalyse. In Kapitel 5 werden die zuvor erarbeiteten Methoden angewendet und Ergebnisse zu GaN-Schichten mit Hochtemperatur-AlN-Zwischenschichten zum Zwecke der *threading dislocation* (TD) Reduktion gezeigt (Kapitel 5.1). Weiterhin werden

Wachstumsmodi von AlGa_N-Einzelschichten im gesamten Kompositionsbereich untersucht (Kapitel 5.2). Die Einzelschichtergebnisse finden Anwendung in der Herstellung der DBRs (Kapitel 6.1). Deren Materialeigenschaften und ihre optischen Eigenschaften werden besprochen. Es wird gezeigt, dass die produzierten GaN/AlGa_N-MQW-Strukturen sich in den Wachstumsprozess eines UV-VCSELs integrieren lassen (Kapitel 6.2). Schließlich beinhaltet die vorliegende Arbeit die Vorstellung einer produzierten VCSEL-Struktur (Kapitel 6.3) und endet mit der Zusammenfassung (Kapitel 7).

2 Plasmaunterstützte Molekularstrahlepitaxie

Die ersten Versuche zur GaN-Herstellung wurden in den frühen 1970er Jahren unternommen [30]. Mit Hilfe der *halide vapor phase epitaxy* (HVPE), eine Methode die in den 1960ern erfolgreich für die GaAs Produktion eingesetzt wurde, sind mit großen Wachstumsraten (einige 10 $\mu\text{m/h}$) erste, um 100 μm dicke GaN Schichten mit Hilfe von Galliumchlorid (GaCl_3) und Ammoniak (NH_3) gewachsen worden. Die verglichen mit heutigen Proben enorm große Schichtdicke war nötig um Gitterfehler „auszuwachsen“, die sich an der heteroepitaktischen GaN/Saphir Grenzschicht bilden. Zur Zeit sind die weitverbreitetsten Herstellungsmethoden der Gruppe-III-Nitride die *metal-organic chemical vapor deposition* (MOCVD) und die *molecular beam epitaxy* (Molekularstrahlepitaxie, MBE).

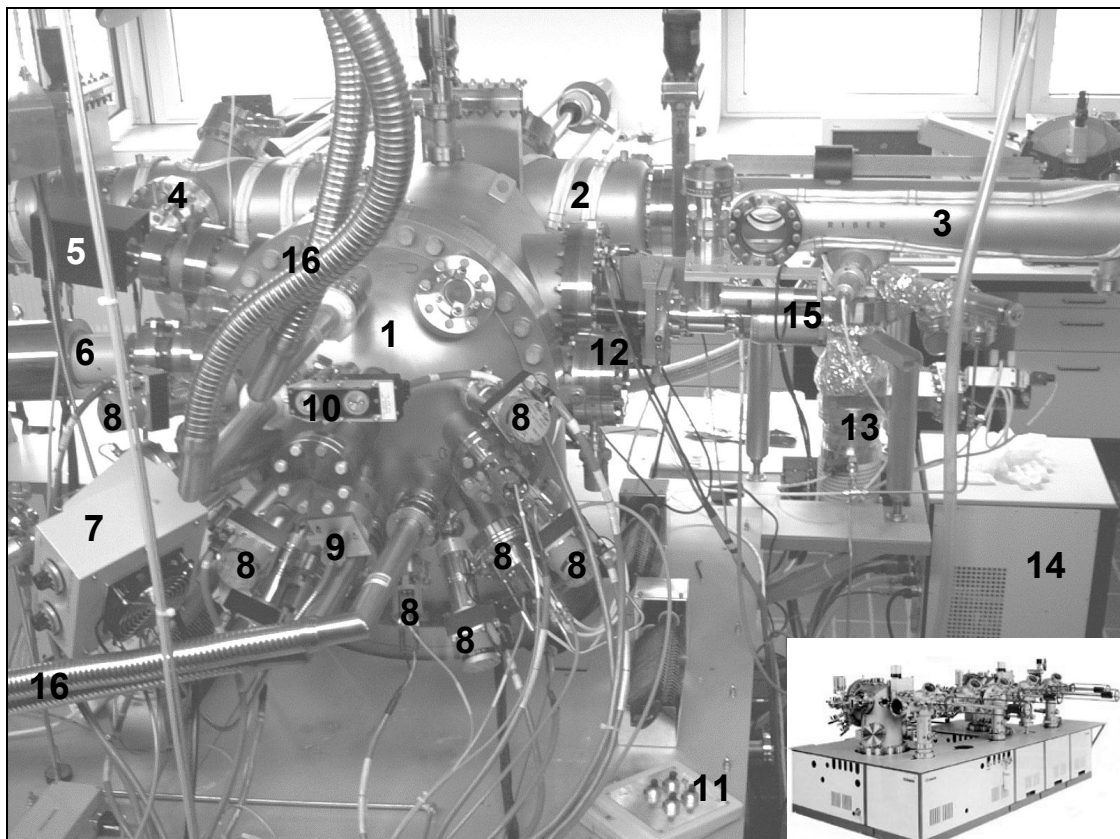


Abbildung 2.1. Riber MBE 32 des Lfi. (1) Prozesskammer, (2) Transfermodul, (3) Schleuse, (4) Ausheizstation, (5) Massenspektrometer, (6) RHEED Elektronenquelle, (7) Addon Plasmaquelle, (8) Effusionszellen, (9) Pyrometerfenster, (10) Hauptshutter-Motor, (11) RHEED Focus/Ablenkung, (12) RHEED Schirm, (13) Turbomolekularpumpe der Schleuse, (14) Wasserkühlung der Plasmaquelle, (15) Manipulatorsteuerung, (16) Stickstoffkühlung Zu- und Abfluss

Die aus herkömmlicher Siliziumtechnik wohlbekannte Dampfphasenabscheidung (CVD) wird bei der MOCVD um metallorganische Ausgangsstoffe erweitert.^a Für die industrielle Fertigung von LDs und LEDs sowie Transistoren auf Nitridbasis wird MOCVD vorgezogen, da bei Atmosphärendruck oder knapp darunter ein Multi-Waferprozess mit relativ hohen Kristallwachstumsraten ($>1\mu/h$) möglich ist. Für Details zum MOCVD-Prozess sei auf einschlägige Fachliteratur verwiesen. Im Gegensatz zur MOCVD verlangt die MBE aufwendige Vakuumtechnik um Hintergrunddrücke um 10^{-10} Torr aufrechterhalten zu können. Dies hat allerdings den Vorteil, dass *in-situ* Charakterisierung während des Kristallwachstums durch *reflection high energy electron diffraction* (RHEED) möglich ist. Alle für die vorliegende Arbeit entworfenen und charakterisierten Proben wurden mittels plasmaunterstützter Molekularstrahlepitaxie (*plasma assisted molecular beam epitaxy*, PA-MBE) mit einer Ribier Modell 32 Anlage hergestellt (Abbildung 2.1) [31]. Man erkennt die Metalleffusionszellen und die Stickstoffplasmaquelle, welche die Ausgangsstoffe der Kristallproduktion in reiner Form zur Verfügung stellen. Es sei erwähnt, dass auch bei der MBE mit metallorganischen Ausgangsstoffen experimentiert wird, was bislang jedoch für die Nitride nicht weit verbreitet ist [32].

2.1 MBE-Technologie

Im UHV des Reaktors einer Molekularstrahlanlage werden Metalle aus Feststoffzellen bzw. Effusionszellen (Knudsen-Zellen) durch deren Aufheizung verdampft. Über die Effusionslänge von ca. $D=15$ cm bewegt sich der jeweilige Dampfstrahl unter molekularen Strömungsbedingungen auf das Substrat zu, wo die Atome zunächst physikalisch adsorbiert werden (Abbildung 2.2). Der Partialdruck der Strahlen und der Hintergrunddruck des Reaktors müssen nun so gewählt sein, dass Stöße unter den Atomen auf dem Weg zum Substrat praktisch nicht stattfinden. Nur dann kann man von einem Materiestrahl sprechen. Alles ausgedampfte Material soll schließlich zum Substrat transportiert und Wechselwirkungen der verschiedenen Spezies vor dem Eintreffen auf dem Substrat vermieden werden. Nach der kinetischen Gastheorie^b ist die mittlere freie Weglänge L eines Atoms oder Moleküls gegeben durch

^a Die Metallatome sind an Ethyl- oder Methylgruppen gebunden. Beim Auftreffen auf das Substrat kommt es zur chemischen Zersetzung. Ammoniak dient als Stickstofflieferant.

^b Es wird ein ideales Gas vorausgesetzt, d.h. die Gasteilchen verhalten sich wie Punktmassen, Wechselwirkung zwischen Gasteilchen findet nicht statt, es besteht eine Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung und das Gas verhält sich isotrop.

$$L = \frac{1}{\sqrt{2\pi}nd^2}, \quad \text{wobei} \quad n = \frac{p}{k_B T} \quad (2.1)$$

die Anzahl der Gasteilchen pro Volumen beim Druck p und Temperatur T ist. d ist der Durchmesser der Gasteilchen und k_B die Boltzmann-Konstante. Die größten am Prozess beteiligte Teilchen sind das Ga und In Atom, bzw. das Stickstoffmolekül N_2 . Deren van-der-Waals-Radien^c liegen bei ca. 2 Å [33]. Damit lässt sich aus Gl.(2.1) der Druck p , bei dem noch wechselwirkungslose Molekularstrahlenbedingungen herrschen, zu $p < 0,2$ Torr bestimmen. Das liegt deutlich über den üblichen Stickstoffpartialdrücken des über die Plasmaquelle eingeleiteten Stickstoffs während des Wachstums von ca. $p = 10^{-5}$ Torr.

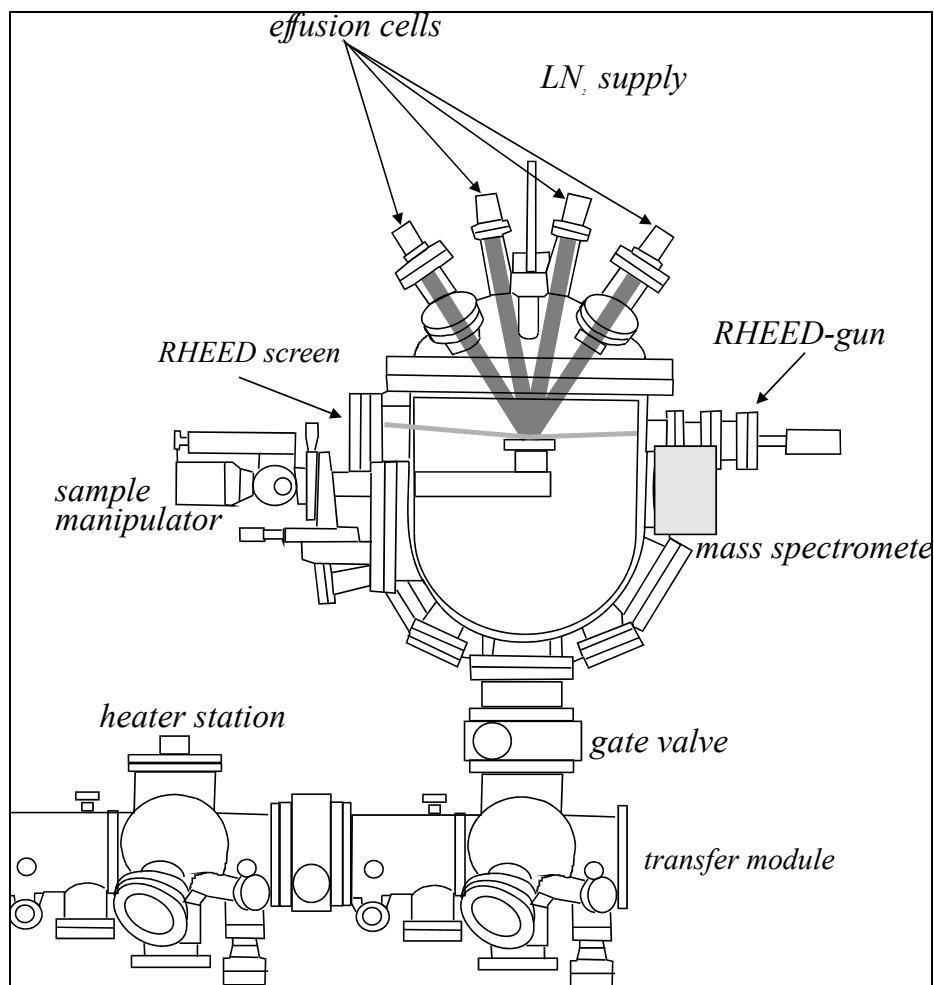


Abbildung 2.2. Übersichtsschema des MBE 32 Reaktors aus Abbildung 2.1[34]. Die charakteristische Effusionslänge D ist durch die dunklen, dicken Linien angedeutet. An der Stelle des Substrats wird vor jedem Wachstumsprozess durch Schwenken des Manipulators mit einer Bayard-Alpert Flussmessröhre der Partialdruck der Materiestrahlen geprüft.

^c Der van-der-Waals-Radius ist definiert als Entfernung zweier Atome oder Moleküle, die sich berühren aber keine chemische Bindung eingehen.

Die eigentliche Limitierung für den Hintergrunddruck ergibt sich aus der Minimierung der Verunreinigungen im zu wachsenden Kristall. Der typische Materialfluss aus der Ga-Zelle verursacht einen von der in den Strahl gehaltenen Bayard-Alpert Heißkathoden-Flussmessröhre gemessenen Partialdruck von $2,1 \cdot 10^{-6}$ Torr. Der maximale Abstrahlwinkel aus der Effusionszelle auf die Probe (12°) stimmt mit demjenigen der Flussmessröhre^d (11°) fast überein. Der gemessene Druck darf also als stellvertretend für den Strahldruck auf die Probe angenommen werden. Allerdings muss der gemessene Druck relativ zu Stickstoff nach $p_{\text{Messung}} = C \cdot p_{\text{wahr}}$ gewichtet werden (Tabelle 2.1). Also ist der wahre Wert $p_{\text{Ga}} = 1,25 \cdot 10^{-6}$ Torr.

N ₂	H ₂	Al	Ga	In
1	0,45	0,92	1,68	2,44

Tabelle 2.1. Gewichtungsfaktoren C ausgewählter Elemente für die Partialdruckmessung mit der am Manipulator befindlichen Bayard-Alpert Flussmessröhre der Riber MBE 32 [34].

Nach der Hertz-Knudsen Gleichung, abgeleitet aus der kinetischen Gastheorie, gilt für den Materialfluss je Fläche an der Phasengrenzfläche

$$\Phi_0 = p \sqrt{\frac{N_A}{2\pi M k_B T}} \quad (2.2)$$

für die Bedingungen des Hochvakuums.^e Die Flussdichte Φ_0 gibt die Anzahl der abgedampften Teilchen je Zeiteinheit und Fläche für den (maximal gefüllten) Tiegel. N_A steht für die Avogadro-Konstante und M für das molare Gewicht der abgedampften Teilchen. p ist der gemessene Partialdruck und T die Gastemperatur, also die Grenzflächentemperatur an der Metalloberfläche der Knudsen-Zelle. Damit ist die Materialflussdichte für atomares Ga ($M=70$ g, $T=1100$ K, $p=1,25 \cdot 10^{-6}$ Torr) etwa $\Phi_{0,\text{Ga}} = 1,58 \cdot 10^{18} \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$. Die atomare Oberflächendichte von GaN bestimmt sich aus der Fläche der lateralen, hexagonalen Einheitsmasche ($1/3$ Hexagon) mit der Gitterkonstanten $a=3,189$ nm. Die Anzahl der Atome je Fläche ist damit $n_A = 1/(\sqrt{3}/2 \cdot a^2)$. Um die nötige Anzahl Ga-Atome für eine GaN-Monolage auf das Substrat aufzubringen, bedarf es also etwa

^d Die Flußmeßröhre ist mit 185 mm weiter von den Effusionszellen entfernt (120 mm), hat aber ein breiteres Öffnungsfenster (35 mm) als die Probe (25,4 mm).

^e Das heißt der Wiedereintritt von Teilchen in den betrachteten Stoff aus dem darüberliegenden Dampf wird vernachlässigt.

$$t_{mono} = \frac{n_A}{\Phi_{0,Ga}} \approx \frac{1,13 \cdot 10^{19} \text{ m}^{-2}}{1,58 \cdot 10^{18} \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}} \approx 0,72 \text{ s}. \quad (2.3)$$

Von SEM Messungen abgeleitete Wachstumsraten von 8-10 nm/min entsprechen ca. 0,3 Monolagen je Sekunde oder $\sim 3,3$ s je Monolage. Gl.(2.3) gilt streng genommen nur für ein kaltes Substrat. Berücksichtigt man Desorption von der heißen Probe, wird der Anteil des Materieflusses der tatsächlich an der Substratoberfläche verbleibt mit dem *sticking*-Koeffizienten s gewichtet. Für Ga liegt s demnach zwischen 0,2 und 0,3 im Bereich der genutzten Wachstumstemperaturen um 700°C.

Wenn nun das Wachstum einer Monolage in der Größenordnung 3 Sekunden zu veranschlagen ist, sollte, um eine genügende Reinheit des Kristalls zu erreichen, die Ablagerung einer Monolage eines Restgasstoffes nach Ref.[35] etwa 10^5 mal so lange dauern. Sollte es sich dabei beispielweise um Sauerstoff, oder mit ähnlicher molarer Masse, Wasser handeln, kann wieder die Hertz-Knudsen-Gleichung Gl.(2.2) herangezogen werden, um den erlaubten Hintergrunddruck in der Prozesskammer abzuschätzen. Mit $M_{H_2O} = 18 \text{ g}$ und $T=77 \text{ K}$ (Restgastemperatur gegeben durch das *cryo-shroud* der Reaktorkammer) lässt sich der Partialhintergrunddruck p_{H_2O} bestimmen, wenn die Flussdichte Φ auf ein 100.000stel des Wertes für Ga abgesenkt wird. Es folgt

$$\frac{\Phi_{0,Ga}}{\Phi_{0,H_2O}} = 10^5 \Leftrightarrow p_{H_2O} = p_{Ga} 10^{-5} \sqrt{\frac{M_{H_2O} T_{H_2O}}{M_{Ga} T_{Ga}}} \approx 1,76 \cdot 10^{-12} \text{ Torr}. \quad (2.4)$$

Wie beim Ga wird auch hier nicht jedes auftreffende Wassermolekül in den wachsenden Kristall eingebaut. Die überwiegende Mehrzahl aller einfallenden Fremdteilchen wird sofort wieder desorbiert, da die thermodynamischen Eigenschaften der Probenoberfläche ja gerade für die bevorzugten Spezies, Ga, Al, In und N eingestellt sind. Dennoch wird an diesem Beispiel deutlich, dass der beobachtete, niedrige Standard-Prozesskammerhintergrunddruck von $\sim 10^{-11}$ Torr notwendig ist, und dass möglichst hohe Wachstumsraten angestrebt werden sollten, um möglichst reine Kristalle zu erzeugen.

2.1.1 Effusionszellen

Um die im vorigen Abschnitt gemachte Abschätzung der Wachstumsrate aus dem verdampften Material zu verbessern, muss die Abstrahlcharakteristik der verwendeten Effusionszellen beachtet werden (Abbildung 2.3). Zunächst sei das Kosinus-Gesetz der Effusion betrachtet.

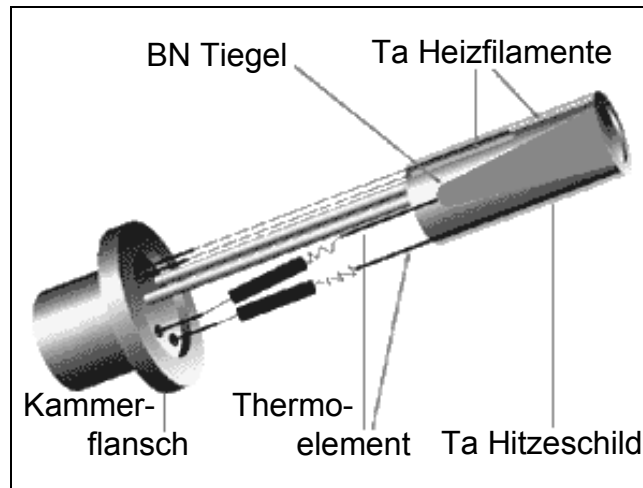


Abbildung 2.3. Doppelfilament Knudsen-Effusionszelle Riber CF-135 für Gallium. Übliche UHV Materialien wie Tantal und Bornitrid kommen zum Einsatz. An der Innenseite hat der Kammerflansch eine Aufnahme für einen Kupferring, der als Dichtung dient. An der Außenseite finden sich Anschlüsse für Thermoelemente und Heizungsfilamente.

Die ideale Knudsen-Effusionszelle enthält eine Gasphase und eine flüssige Phase im thermodynamischen Gleichgewicht. Oberhalb der Gasphase entweicht Materie durch ein kleines Loch in die Zelle (Abbildung 2.4). Sind die Zellwände dünn genug, wird ein Teilchen m , das durch die Mitte des Loches entweicht, sich in der gleichen Richtung fortbewegen wie innerhalb des Tiegels. Die Abstrahlcharakteristik des Lochs kann demnach als Halbkugel beschrieben werden.

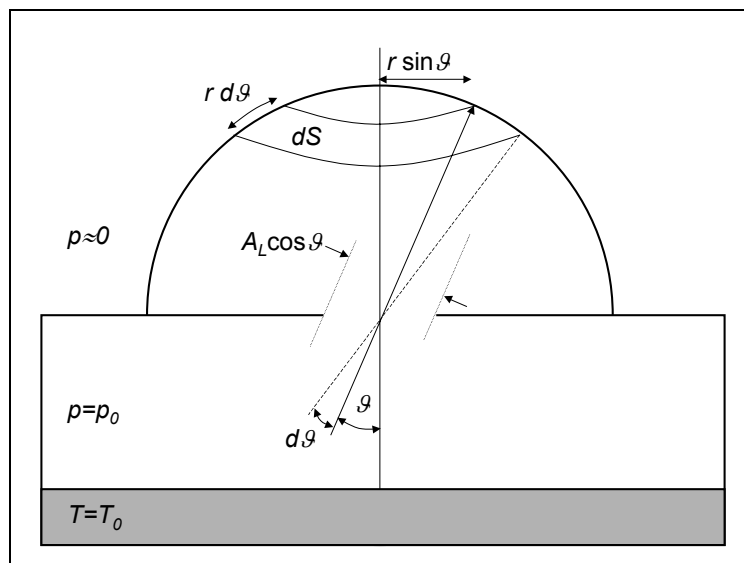


Abbildung 2.4. Zum Kosinus-Gesetz der Effusion. Ein Teilchen aus der Zelle im thermodynamischen Gleichgewicht beim materialspezifischen Dampfdruck p_0 kann durch die ideale Öffnung in den Raumwinkel $d\omega = dS/r^2$ des umgebenden Vakuums entweichen. Die Fläche des Lochs ist A_L .

Geht man davon aus, dass die Teilchen innerhalb der Zelle keine Vorzugsrichtung haben, hängt die Wahrscheinlichkeit, dass ein Teilchen m durch das Loch der Fläche A_L entweicht, vom Querschnitt des Lochs $A_L \cos \vartheta$ unter dem Flugwinkel ϑ des Teilchens ab. Die Wahrscheinlichkeit, das Teilchen in der Halbkugel oberhalb der Zelle wiederzufinden ist $P=1$. Der Raumwinkel einer Halbkugel ist 2π . Damit muss die Wahrscheinlichkeit, es im Raumwinkel

$$d\omega = \frac{dS}{r^2} = 2\pi \sin \vartheta d\vartheta \quad (2.5)$$

abhängig vom Flugwinkelintervall ϑ bis $\vartheta+d\vartheta$ wiederzufinden, mit 2π normiert werden: $P=d\omega/2\pi=\sin \vartheta d\vartheta$. Schließlich ist die Gesamtzahl der Teilchen, die das Loch pro Zeiteinheit durchfliegen weiterhin mit der Hertz-Knudsen Gleichung Gl.(2.2) gegeben. Werden alle diese Proportionalitätsfaktoren zusammengefasst, folgt die Anzahl je Raumwinkel der den Tiegel verlassenden Teilchen m in Abhängigkeit vom Flugwinkel, bzw. Austrittswinkel ϑ :

$$d\Phi_{\vartheta} = C_0 A_L \cos \vartheta \sin \vartheta d\vartheta \left(\frac{\Phi_0}{A_L} \right). \quad (2.6)$$

Die Proportionalitätskonstante C_0 bestimmt sich aus der Tatsache, dass der gesamte Raumwinkel $0 \leq \vartheta \leq \pi/2$ alle abgestrahlten Teilchen des Flusses Φ enthält:

$$\Phi_0 = \int_0^{\pi/2} d\Phi_{\vartheta} = \int_0^{\pi/2} C_0 \Phi_0 \cos \vartheta \sin \vartheta d\vartheta = \frac{C_0 \Phi_0}{2}. \quad (2.7)$$

Damit ist $C_0=2$ und unter Wiedereinführung des Raumwinkels $d\omega$ ergibt sich das Kosinus-Gesetz der Effusion:

$$d\Phi_{\vartheta} = \frac{\Phi_0}{\pi} \cos \vartheta d\omega = \frac{pA}{\pi} \sqrt{\frac{N_A}{2\pi M k_B T}} \cos \vartheta d\omega, \quad (2.8)$$

mit den für die Hertz-Knudsen Gleichung (2.2) gegebenen Größen. Nun ist das Substrat i.A. keine Halbkugeloberfläche, sondern ein ebener Wafer. Um den jeweiligen Fluss an verschiedenen Punkten der Probe zu bestimmen, müssen nach Abbildung 2.5a verschiedene Kugelradien r_A und r_B berücksichtigt werden. Am Punkt A ist $\vartheta=0$ und der Materiefluss Φ_A beträgt unter Verwendung von Gl.(2.5)

$$\Phi_A = \left. \frac{d\Phi_{\vartheta}}{dS} \right|_{\vartheta=0} = \frac{\Phi_0}{\pi r_A^2} = \frac{pA}{\pi r_A^2} \sqrt{\frac{N_A}{2\pi M k_B T}}. \quad (2.9)$$

Am Randpunkt des Substrats B wird der Fluss Φ_B durch das Flächenelement $dS(\vartheta)$ bestimmt. Jetzt geht allerdings der veränderte Kugelradius r_B in Gl.(2.5) ein.

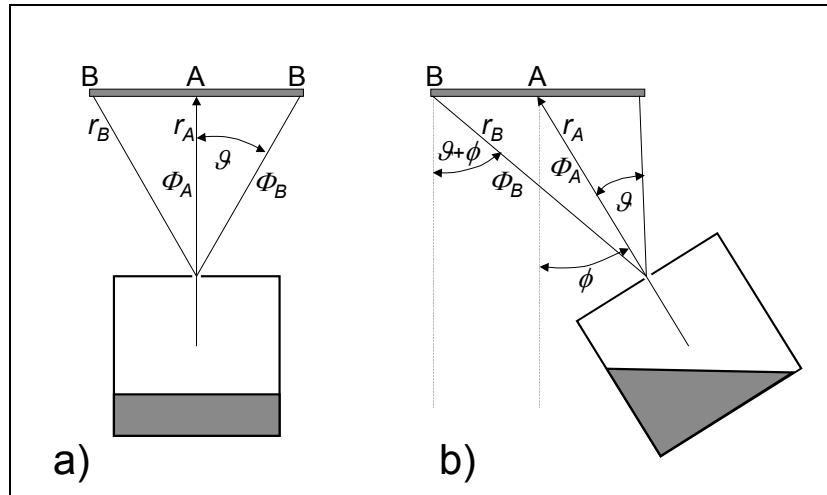


Abbildung 2.5. Zur Berechnung des Flusses aus einer idealen, a) senkrecht zum Substrat angebrachten und b) gekippten Knudsen-Zelle für verschiedene Punkte des Wafers nach Gl.(2.12).

Die auf die Substratebene projizierte Kugelfläche muss noch mit dem Einfallswinkel gewichtet werden:

$$dS(\vartheta) = \frac{r_B^2 d\omega}{\cos \vartheta}. \quad (2.10)$$

Damit wird der Fluss bei B ausgedrückt durch

$$\Phi_B = \frac{d\Phi_{\vartheta}}{dS(\vartheta)} = \frac{\Phi_0 \cos^2 \vartheta}{\pi r_B^2} = \Phi_A \cos^4 \vartheta \quad (2.11)$$

unter Verwendung der Identität $r_A^2 = r_B^2 \cos^2 \vartheta$. Wird nun noch zusätzlich die Effusionszelle um den Winkel ϕ gekippt, ergeben sich analog die Flussverteilungsgleichungen

$$\begin{aligned} \Phi'_A &= \Phi_A \cos \phi \\ \Phi'_B &= \Phi_A \frac{r_A^2}{r_B^2} \cos \vartheta \cos(\vartheta + \phi) \end{aligned} \quad (2.12)$$

wobei der Radienquotient noch mit Hilfe des Sinussatzes durch die Winkel nach Abbildung 2.5b ausgedrückt werden könnte.

Die Voraussetzungen für das Kosinus-Gesetz der Effusion nach Gl.(2.8) lassen sich in der Realität leider nur auf sehr wenige Spezialfälle anwenden. Dotier-Zellen, wie die in dieser Arbeit verwendete Mg-Zelle, besitzen nur eine sehr schmale Öffnung und erfüllen damit die Bedingung des gleichmäßigen Dampfdrucks in der Zelle (Knudsen-Zelle). Allerdings ist die den Austritt umgebende Wand nicht so dünn, dass während des Ausstrahlens keine Richtungsänderung der Teilchen vorkommt, wie zuvor vorausgesetzt. Vielmehr muss das Verhältnis von Länge L_0 zu Durchmesser d_0 der Öffnung berücksichtigt werden, um das korrekte Abstrahlverhalten der Zelle zu beschreiben. Nach Clausing ergibt sich bei zufälliger

Streuung der Teilchen an den molekular rauen Öffnungswänden bei zylindrischer Symmetrie eine Minderung der Anzahl der abgestrahlten Teilchen mit wachsendem Quotienten L_0/d_0 wiederum nach einem Kosinus-Zusammenhang [36,37]. Gl.(2.8) erhält auf der rechten Seite den aus Abbildung 2.6 ersichtlichen Clausing-Faktor $W_a(L_0/d_0)$. Er ist vom Raumwinkel unabhängig und gibt ein Maß für die Durchlässigkeit der Öffnung der Knudsen-Effusionszelle an. W_a ergibt sich aus rein geometrischen Überlegungen unter der Annahme, dass die Streuung der Öffnungswand nicht gerichtet ist.

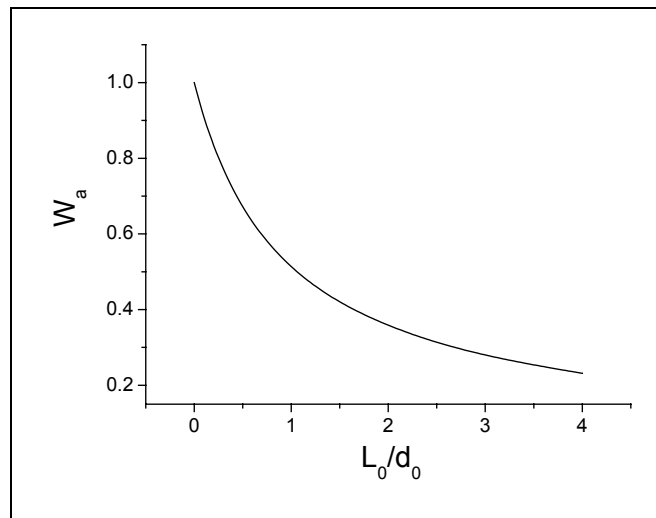


Abbildung 2.6. Clausing-Korrekturfaktor W_a für das Kosinus-Gesetz der Effusion. Je größer der Lochquotient L_0/d_0 desto geringer wird der Teilchenstrom. Für die verwendete Mg-Dotierzelle gilt $L_0/d_0 \approx 4$.

Für die Mg-Zelle reicht der Clausing-Faktor aus, den Lochwiderstand zu beschreiben. Die Voraussetzungen der Knudsen-Zelle des gaserfüllten Raums im thermodynamischen Gleichgewicht mit Loch zur Außenwelt sind erfüllt. Bei den restlichen verwendeten Zellen handelt es sich jedoch um Mischformen der Knudsen-Effusion und der Langmuir-Effusion, der Effusion direkt von der Phasengrenze.

Folgend sei die Abstrahlcharakteristik dieser Mischzellen nach Abbildung 2.3 betrachtet. Die gesamte Abstrahlcharakteristik wird durch den Einfluss der Öffnung endlicher Ausdehnung gegenüber dem Kosinus-Gesetz der punktförmigen Öffnung verändert. Je nach betrachtetem Abstrahlwinkel tragen verschiedene Wandbereiche einer zylindrischen Öffnung zum Teilchenstrom im Raumwinkelabschnitt $d\omega$ bei. Im Falle der verwendeten, nahezu zylindrischen Effusionstiegel nach Abbildung 2.7 ist die Abstrahlöffnung der Länge L_0 mit dem Füllstand des Tiegels festgelegt und der Durchmesser d_0 der Abstrahlöffnung durch den Durchmesser des Tiegels gegeben. Wiederum durch zwar aufwendige, aber immer noch rein

geometrische Überlegungen gelangt Dayton zu einer Korrektur des zuvor in Gl.(2.7) konstant bestimmten C_0 [38]. Das Kosinus-Gesetz der Effusion wird durch das abhängige $C_0(L_0, d_0, \vartheta)$, dass die von der Geometrie der Tiegelöffnung bestimmte Korrektur der Abstrahlcharakteristik beinhaltet, ergänzt [35]. Werden beide Korrekturwerte, $W_a(L_0/d_0)$ und $C_0(L_0, d_0, \vartheta)$, berücksichtigt, ergibt sich das modifizierte Kosinus-Gesetz der Effusion nach Gl.(2.8) zu

$$d\Phi_{\vartheta} = W_a C_0(L_0, d_0, \vartheta) \frac{\Phi_0}{\pi} \cos \vartheta d\omega \quad (2.13)$$

mit

$$C_0(p \leq 1) = 1 - \frac{2}{\pi} (1 - \alpha) \left(\arcsin p + p \sqrt{1 - p^2} \right) + \frac{4}{3\pi p} (1 - 2\alpha) \left(1 - \left(\sqrt{1 - p^2} \right)^3 \right),$$

bzw.

$$C_0(p \geq 1) = \alpha + \frac{4(1 - 2\alpha)}{3\pi p},$$

wobei

$$p = \frac{L_0}{d_0} \tan \vartheta,$$

und für den interessierenden Fall $L_0 > 2d_0$ ist

$$\alpha = \frac{u\sqrt{u^2 + 1} - v\sqrt{v^2 + 1} + v^2 - u^2}{\frac{u(2v^2 + 1) - v}{\sqrt{v^2 + 1}} - \frac{v(2u^2 + 1) - u}{\sqrt{u^2 + 1}}} \quad \text{mit} \quad u = \frac{L_0}{d_0} - v \quad \text{und} \quad v = \frac{L_0 \sqrt{7}}{3L_0 + d_0 \sqrt{7}}.$$

Das Resultat dieser geometrisch komplizierten Abhängigkeiten kann mit Polarkoordinatendiagrammen des Abstrahlverhaltens deutlich gemacht werden (Abbildung 2.7). Der äußere Kreis entspricht dem unkorrigierten Kosinus-Gesetz nach Gl.(2.8) für das ideale Loch mit $L_0=0$. Die innerste Kurve gibt das Verhalten für $L_0/d_0=4$ wieder, was dem Verhalten der benutzten Riber Tiegel mit ca. 28 cm³ Fassungsvermögen entspricht. Weitere Verfeinerungen des Modells für die Abstrahlcharakteristik können die vom Zylindrischen abweichende Form der Tiegel berücksichtigen und die Temperatur der Tiegelwände einbeziehen [35]. Die in Abbildung 2.3 erkennbare leicht konische Form der Effusionszelle wird in der realen Anwendung gewählt, um die Flussausbeute zu erhöhen. Der Lochwiderstand W_a wird durch den Öffnungswinkel des Tiegels reduziert. Bei nicht zu großem Winkel verändert sich die Abstrahlcharakteristik kaum. Lediglich der Einfluss des Einbauwinkels zwischen Substrat und Effusionszelle wirkt sich stärker aus als zuvor, was durch Rotation des Substrats aber vollkommen ausgeglichen werden kann.

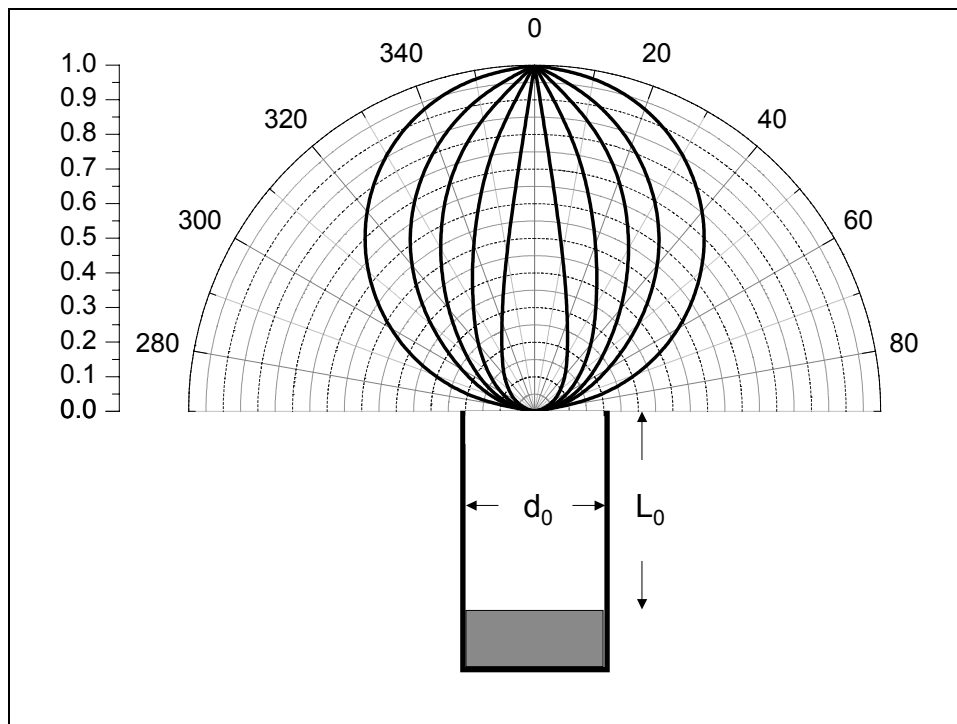


Abbildung 2.7. Abstrahlcharakteristik eines Effusionstiegels $C_0 \cos \vartheta$ in Abhängigkeit vom Abstrahlwinkel ϑ und dem Quotienten L_0/d_0 . Die linke Skala gibt die Intensität des Flusses relativ zum Dampfdruck unmittelbar über der Metallfüllung an. Die Kurven beschreiben das Verhalten für (von innen nach außen) $L_0/d_0=4$, $L_0/d_0=2$, $L_0/d_0=1$, $L_0/d_0=0,5$ und $L_0/d_0=0$.

Mit idealen Effusionszellen ließe sich mit Hilfe der Dampfdruckkurven der verwendeten Ausgangsstoffe (Abbildung 2.8), dem gemessenen Fluss auf Höhe des Substrats, der Tiegelgeometrie und der resultierenden Abstrahlcharakteristik die Wachstumsrate des gewachsenen Kristalls anhand des Materieflusses überprüfen. Dieser Versuch muss mit den realen Zellen allerdings scheitern. Während des Betriebs bilden sich z.B. am oberen Rand des Ga-Tiegels Tröpfchen kondensierten Materials, da es dort durch den *cryo-shrout* und absichtlich geringere Heizleistung kühler ist, als im stärker geheizten unteren Bereich. So wird das „Herauskriechen“ der Ga-Füllung verhindert. Die sich bildenden Tröpfchen gleiten bei ausreichender Masse irgendwann in den Tiegel zurück. Diese massive Rückgabe schon verdampften Materials wird durch die Hertz-Knudsen Beziehung nach Gl.(2.2) nicht berücksichtigt. Es bedarf eines weiteren Korrekturfaktors, des Ausgaskoeffizienten a_V , der bereits 1915 von Knudsen bei Versuchen zum Dampfdruck von Quecksilber vorgeschlagen wurde. a_V ist der Quotient aus beobachtetem Dampfdruck und theoretisch möglichem, maximalem Dampfdruck nach Gl.(2.2). Je nach Oberflächenbeschaffenheit des Quecksilbers sind Werte zwischen $5 \cdot 10^{-4}$ und 1 von Knudsen bestimmt worden [39].

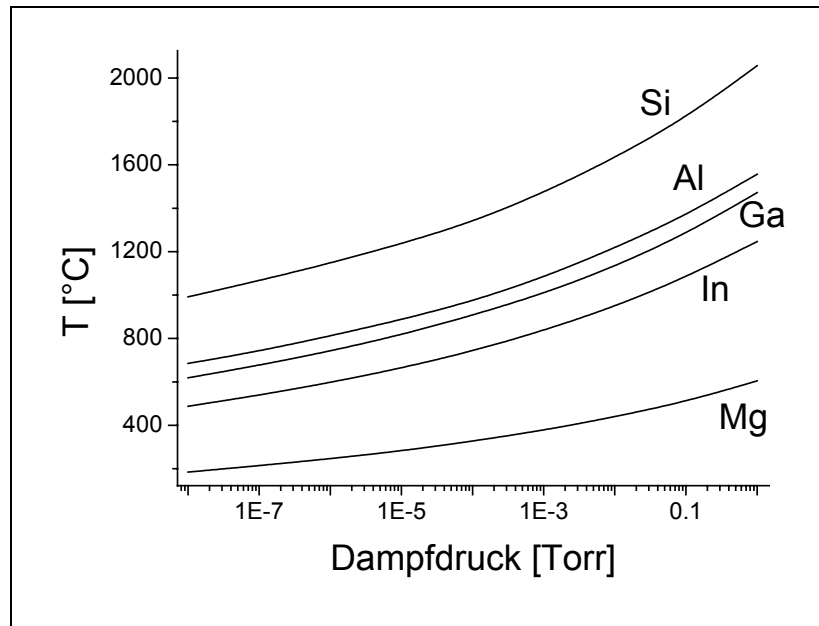


Abbildung 2.8. Dampfdruckkurven der Wachstumsmetalle.

Alle benutzten Zellen verwenden die gleichen, nahezu zylindrischen, pyrolytischen Bornitrid-Tiegel von ca. 9 cm Länge und $d_0=2$ cm Öffnungsdurchmesser. Bei typischen Füllständen von 1-2 cm ist der bestimmende Quotient $L_0/d_0 \approx 4$. Der Tiegelabstand vom Substrat beträgt 120 mm. Bei den verwendeten $\frac{1}{4}$ 2-Zoll Saphirsubstraten (Halbmesser 12,7 mm) ist dann der maximale, zu berücksichtigende Abstrahlwinkel $\vartheta = \arctan(12,7 \text{ mm}/120 \text{ mm}) \approx 6^\circ$. Nach Gl.(2.13) folgt $p=0,42$, $\alpha=0,11$ und damit $C_0(\vartheta=6^\circ)=0,74$. Multipliziert mit dem $\cos(\vartheta=6^\circ)=0,995$ des Kosinusgesetzes folgt, dass am Wafertrand der Metall-Fluss aus den Effusionszellen noch $\sim 74\%$ des Wertes vom Wafermittelpunkt beträgt. Um das Verhältnis von am Wafer eintreffendem zu insgesamt abgestrahltem Material zu berechnen, muss das Integral über den Abstrahlwinkel ϑ gebildet werden. Nach Gl.(2.6) bzw. Gl.(2.13) gilt

$$\int_0^{\vartheta} d\Phi_{\vartheta} = a_v W_a \int_0^{\vartheta} d\vartheta' \Phi_0 C_0(\vartheta') \cos \vartheta'. \quad (2.14)$$

Dies muss mit dem gesamten abgestrahlten Material normiert werden (Integration von 0 bis $\pi/2$). Die Auftragung des Integralquotienten zeigt Abbildung 2.9. Im Abstrahlwinkelbereich von $0-6^\circ$ liegen danach 30% des gesamten, emittierten Materialflusses. Die Reaktorkammer der Riber MBE 32 ist für 3-Zoll Wafer konzipiert. Der entsprechende Winkelausschnitt bis $\vartheta=18^\circ$ erhält 57% des abgestrahlten Metalls. Für größere Winkel lässt die Depositionseffektivität deutlich nach und die Materialverteilung auf dem Wafer wird immer ungünstiger.

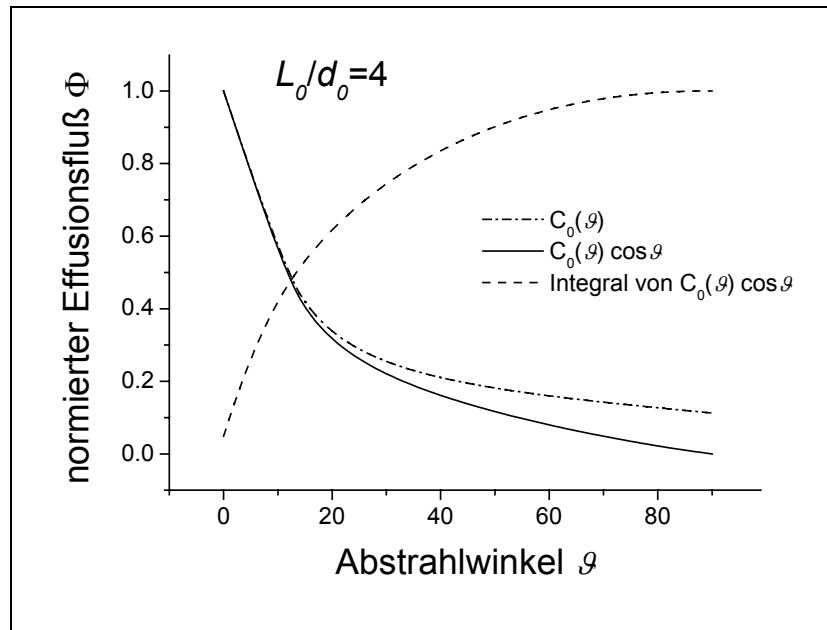


Abbildung 2.9. Abstrahlverhalten der verwendeten Metalleffusionszellen. Das Aspektverhältnis L_0/d_0 des Tiegels wird von der Funktion $C_0(\vartheta)$ beschrieben. Multipliziert mit dem $\cos \vartheta$ des Kosinus-Gesetzes ergibt sich der Fluss in Abhängigkeit vom Abstrahlwinkel. Die Integralkurve gibt den Anteil am Gesamtfluss bis zum angegebenen Winkel an.

Mit der Auslegung der Ribier MBE 32 auf 3-Zoll-Wafer ist die Abstrahlcharakteristik der Effusionszellen breiter als für das zentral angebrachte $\frac{1}{4}$ 2-Zoll Substrat notwendig (Abbildung 2.10). Der Probenhalter wird daher bei jedem Wachstumsprozess stark mitbedampft und bedarf regelmäßiger Reinigung.

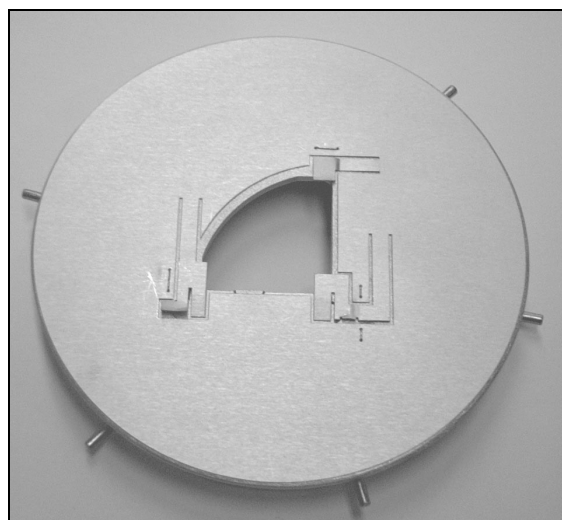


Abbildung 2.10. 3-Zoll MBE-Probenhalter für $\frac{1}{4}$ 2-Zoll Wafer. Das Substrat wird von einfachen Mo-Klammern in der Aussparung gehalten. Die äußeren Finger dienen der Aufnahme in das Transportsystem.

Für die korrekte Bestimmung des Ausgaskoeffizienten a_V für die verwendeten Effusionszellen bedarf es der richtigen Temperaturmessung. Die Temperaturanzeige $T=T_{wahr}+\Delta T$ der Thermoelemente der Effusionszellen kann über die Bestimmung der Aktivierungsenergie bzw. Verdampfungswärme E_a des Zellenfüllmaterials geprüft werden. Der Zusammenhang zwischen Verdampfungswärme und gemessenem Dampfdruck ist gegeben durch

$$p = p_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right), \quad (2.15)$$

wobei $R=N_a \cdot k_B=8,31 \text{ JK}^{-1}\text{mol}^{-1}$ die universelle Gaskonstante ist. Nach Abbildung 2.11 kann Gl.(2.15) in der Arrhenius-Form

$$\ln p = \ln p_0 - \frac{E_a}{R} \left(\frac{1}{T_{wahr} + \Delta T} \right) \quad (2.16)$$

gefittet werden. Für E_a ergeben sich 233 kJ/mol, was vom Literaturwert 256 kJ/mol abweicht. Der Vergleich

$$\frac{233\text{kJ/mol}}{T_{wahr}} = \frac{256\text{kJ/mol}}{T_{wahr} + \Delta T} \quad (2.17)$$

liefert $\Delta T=0,1 \cdot T_{wahr}$, d.h. eine 10%ige Überschätzung der Temperatur durch das Thermoelement. Der Temperaturkorrekturfaktor für die Ga-Zelle ist damit $K_T=(0,1)^{-1}=0,91$. Die nominelle Abweichung dürfte nach Spezifikation nur bei $0,1^\circ$ liegen. Allerdings wird in der Effusionszelle nicht innerhalb des Tiegels gemessen, sondern an dessen Unterseite.

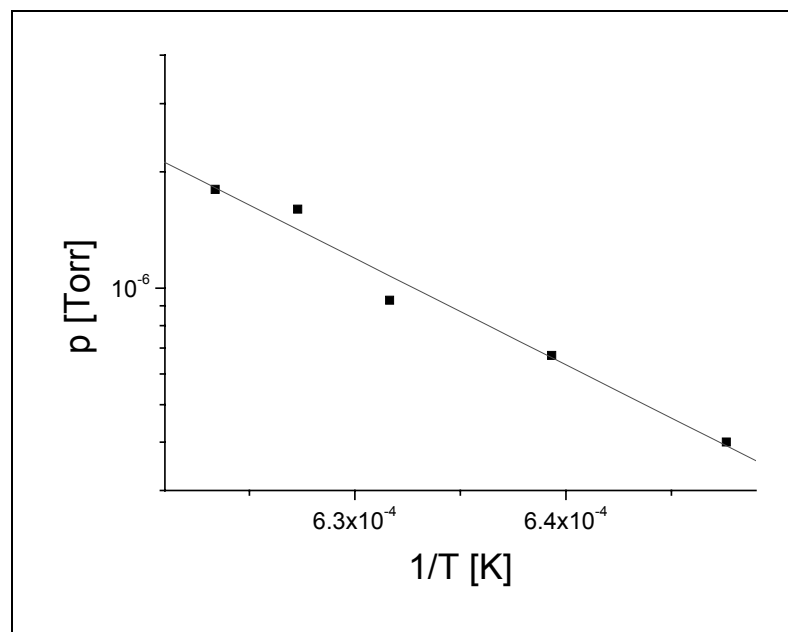


Abbildung 2.11. Arrhenius-Auftragung von gemessenem Dampfstrahl Druck und Zelltemperatur zur Bestimmung der Aktivierungsenergie bzw. Verdampfungswärme von Ga. Die Fitgerade ist $y = 11,4 - 27530x$.

Die dort gemessene Temperatur wird auch durch direkte Einstrahlung der Heizfilamente der Zelle beeinflusst. Eine systematische, mit der Heizleistung zunehmende Abweichung der gemessenen Temperatur von der Metalltemperatur innerhalb des Tiegels ist also durchaus plausibel.

Die letztgültige Fassung der Hertz-Knudsen-Gleichung Gl.(2.2) inklusive der Korrekturfaktoren ist

$$\Phi = a_V W_a p A \sqrt{\frac{N_A}{2\pi M k_B T}} \quad (2.18)$$

Für die Berechnung des Ausgaskoeffizienten a_V wird Gl.(2.18) mit Gl.(2.2) gleichgesetzt

$$a_V W_a p_{\text{Dampfdruck}} A \sqrt{\frac{N_A}{2\pi M k_B T_{\text{Tiegel}}}} = W_a p_{\text{Messung}} A \sqrt{\frac{N_A}{2\pi M k_B T_{\text{Tiegel}}}} \quad (2.19)$$

$$a_V = \frac{p_{\text{Messung}}}{p_{\text{Dampfdruck}}}$$

Der Dampfdruck wird mit Hilfe der korrigierten Tiegeltemperatur $T_{\text{wahr}}=0,91 \cdot 1095^\circ\text{C}$ und der Dampfdruckkurve nach Abbildung 2.8 gefunden: $p_{\text{Dampfdruck}}=7,0 \cdot 10^{-4}$ Torr. Mit dem vorgenannten Messwert ergibt sich

$$a_V = \frac{p_{\text{Messung}}}{p_{\text{Dampfdruck}}} = \frac{1,25 \cdot 10^{-6} \text{ Torr}}{7,0 \cdot 10^{-4} \text{ Torr}} = 1,8 \cdot 10^{-3} \quad (2.20)$$

Die abschließende Tabelle gibt die festgestellten Eigenschaften der verwendeten Effusionszellen wieder.

	Ga5	Al6	Al7	In8
Volumen	ca. 28 cm ³	ca. 28 cm ³	ca. 28 cm ³	ca. 28 cm ³
Befüllung	ca. 50 g Ga	ca. 10 g Al	ca. 10 g Al	ca. 35 g In
L_0/d_0	4	4	4	4
W_a	0,23	0,23	0,23	0,23
K_T	0,91	-	-	-
a_V	$1,8 \cdot 10^{-4}$	-	-	-

Tabelle 2.2. Gefundene Kennwerte der verwendeten Riber MBE 32 Effusionszellen. Die Zahlen der Zellbezeichnung geben den Einbauort an der Reaktorkammer an. Zellen 5-8 bilden einen Winkel von 37° mit der Horizontalen. Die Abstrahlcharakteristik ergibt sich mit $L_0/d_0=4$ aus Abbildung 2.7.

2.1.2 Stickstoffplasmaquelle

Im Gegensatz zur „klassischen“ GaAs-MBE, in welcher ausschließlich Effusionszellen zum Einsatz kommen, muss bei den Nitriden atomarer Stickstoff für das Wachstum zur Verfügung gestellt werden. Dies kann wie bei der MOCVD per Ammoniak Einleitung geschehen. Das Ammoniak Molekül wird auf der heißen Substratoberfläche aufgespalten. Das Stickstoffatom kann dann eine Metallverbindung (GaN, AlN, InN) eingehen und in den Kristall eingebaut werden. Eine Folge dieses Prozesses ist allerdings starke Wasserstoffverunreinigung. Dies ist besonders nachteilig für die p-Dotierung mit Mg. Erst durch nachprozessliches Ausgasen kann die Dotierung aktiviert werden. Die Alternative ist die N₂-Einleitung durch eine Plasmaquelle. Das inerte N₂-Molekül wird hier schon im Plasma in aktivierte, teilweise ionisierte N-Atome aufgespalten. In der verwendeten Addon-Quelle geschieht dies durch Einkoppeln der stickstoffcharakteristischen, elektromagnetischen Resonanzfrequenz von 13,56 MHz mit einer Leistung von bis zu 600 W. Der aktivierte Stickstoff kann durch eine den Resonanzraum von der Hauptkammer trennenden, mit Löchern versehenen Platte in Richtung Probe entweichen. Die Größe des Resonanzraums, die Menge eingeleiteten hochreinen Stickstoffs und die Geometrie der Austrittsplatte bestimmen den Druck im Resonanzraum und damit im Zusammenspiel mit der eingebrachten *radio frequency* (RF)-Leistung die Effektivität der Plasmaquelle.

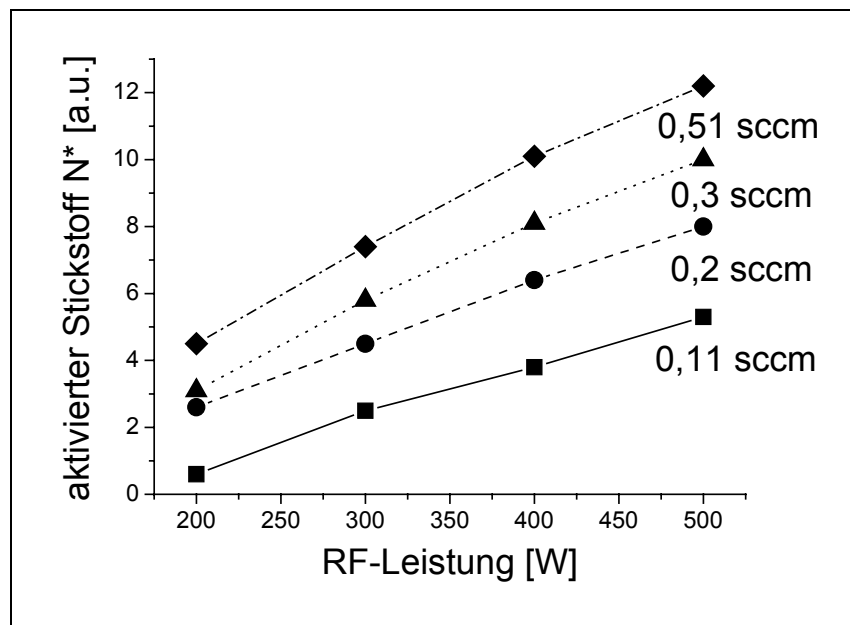


Abbildung 2.12. Veränderung der Menge aktivierten Stickstoffs mit Stickstofffluss und eingekoppelter RF-Leistung für die verwendete Addon Plasmaquelle [40].

Abbildung 2.12 zeigt am Beispiel einer mit der hier verwendeten identischen Quelle die Steigerung des Anteils der atomaren N-Spezies mit zunehmendem N_2 -Fluß und wachsender eingepprägter Leistung [40]. Im Allgemeinen wird angenommen, dass ein hoher Anteil aktivierten, atomaren Stickstoffs N^* am gesamten Stickstofffluss dem Kristallwachstum förderlich ist. N_2 -Moleküle müssten ja erst noch am Substrat getrennt werden, was bei der hohen Bindungsenergie der N-N Bindung von 945 kJ/mol kaum möglich ist^f. Genaue Untersuchungen liegen hierzu jedoch nicht vor. Im praktischen Einsatz kommt der Kühlung der Plasmaquelle besondere Bedeutung zu. Sie muss gleichmäßig erfolgen, da sonst deutliche Schwankungen im Betrieb bis hin zum Ausfall erfolgen können. Die Addon-Plasmaquelle ist mit einer Wasserkühlung ausgestattet, die über einen separaten Kühlkreislauf die Temperatur konstant hält. Bei zu geringem Kühlwasserdurchfluss konnte jedoch beobachtet werden, dass geringste Abweichungen der Kühlwassertemperatur deutliche Nachregelungen in der eingepprägten Leistung nach sich zogen, um die Menge des aktivierten Stickstoffs beibehalten zu können. Mit Hilfe des *optical emission detectors* (OED) wird ein durch das Plasma induzierter, nur im atomaren Stickstoff vorkommender Elektronenübergang beobachtet. Die Spannung der OED-Photodiode ist proportional zur Anzahl der durch einen auf den Plasmaraum gerichteten Viewport beobachteten Stickstoffatome. Die Plasmaquelle wurde während dieser Arbeit auf den OED-Wert ausgerichtet. Bei beobachteten, nicht reproduzierbaren Schwankungen in der Abhängigkeit zwischen OED-Wert und eingepprägter RF-Leistung bei konstantem N_2 -Fluß wurde die RF-Leistung nachgeregelt. Es ist nicht auszuschließen, dass sich dadurch die Menge anderer, möglicherweise ebenfalls am Wachstum teilhabender Spezies, wie z.B. ionisierte N_2 -Moleküle oder ionisierte N-Radikale verändert hat. Unregelmäßigkeiten im Wachstumsprozess müssen so zum Teil mit der mangelnden Kontrolle der Plasmaquelle erklärt werden, die größtenteils von Temperaturschwankungen im nicht klimatisierten Laborraum herrühren dürften.

2.1.3 Substrat

Bei der Heteroepitaxie ist die Wahl des Substrats eine der wichtigsten Wachstumsentscheidungen. Die ideale Wahl fiel auf GaN-Substrate, die jedoch nicht in ausreichender Qualität kommerziell verfügbar sind. Erste Anbieter versuchen seit einiger Zeit mit kleinen, fehlerreichen HVPE oder gar nach der Czochralski-Methode produzierten Kristallen diese Lücke zu schließen. Ernsthaft verwendbare GaN-Substrate in ausreichender

^f Zum Vergleich: Bei deutlich höheren Substrattemperaturen um 1000°C wird in der MOCVD die mit ~340 kJ/mol deutlich schwächere Ammoniak N-H Bindung getrennt.

Größe sind allerdings nur als dicke MOCVD Schichten auf Saphir zu extrem hohen Preisen erhältlich. Um im wirtschaftlichen Rahmen zu bleiben, bedarf es also eines Fremdsubstrats.

Substrat	a_0 [nm]	c_0 [nm]	Gitter- Fehler [%]	$\Delta a/a_0$ [$10^{-6}/K$]	$\Delta c/c_0$ [$10^{-6}/K$]	χ [W/cmK]
Al ₂ O ₃	0,4759	1,2991	16.1	7,3	8,5	0,33
6H-SiC	0,3081	1,5117	3.5	4,46	4,16	4,5
ZnO	0,3252	0,5213	-1.94	2,9	4,75	-
α -AlN	0,3112	0,4982	2.5	2,2	3	2,5
α -GaN	0,3189	0,5185	0.0	5,59	3,17	1,3
α -InN	0,3540	0,5705	-9.9	3	4	0,54

Tabelle 2.3. Gitterkonstanten, thermische Ausdehnungskoeffizienten und Wärmeleitfähigkeit möglicher Substrate und hexagonaler Gruppe III-Nitride. Der Gitterfehler gibt die Abweichung vom a-Gitterparameter von GaN an, jeweils bezogen auf das Substrat.

Für die im Rahmen dieser Arbeit herzustellenden VCSEL-Strukturen ist ein transparentes Substrat nötig. Die VCSEL-Struktur soll durch den oberen DBR mit einem Elektronenstrahl gepumpt werden und das ausgekoppelte Licht durch das Substrat detektiert werden. Weiterhin kommt es bei der Auswahl auf geringe Gitterfehlpassung an, um möglichst fehlerloses „Anwachsen“ zu gewährleisten. Natürlich muss das Substratmaterial selbst möglichst fehlerfrei vorliegen. Für die erwähnten GaN-Substrate gilt das noch nicht (sie wären auch im UV-Bereich nicht transparent), genauso wie für ZnO, was nach sonstigen Kenndaten ein guter Kandidat wäre (Tabelle 2.3). Die Gitterkonstanten von Al₂O₃ scheint zunächst zu groß. Die Kristallgitter sind jedoch nach Abbildung 2.13 um 30° gegeneinander verdreht, was, hier das Beispiel GaN auf Al₂O₃, zur günstigeren Fehlanpassung führt:

$$a_{\text{GaN}} = \frac{1}{2} a_{\text{Al}_2\text{O}_3} \cos 30^\circ = \frac{1}{\sqrt{3}} a_{\text{Al}_2\text{O}_3} \quad (2.21)$$

Die Fehlanpassung schrumpft so von 33% auf 16%. Nimmt man den Wärmeausdehnungskoeffizienten als konstant an, so lässt sich wegen ihrer unterschiedlichen Größe bei 800°C (etwa MBE Wachstumstemperatur) der Gitterfehler auf nur noch 10% abschätzen. Das ist immer noch viel für die Heteroepitaxie. Saphir ist jedoch zu akzeptablen Preisen in sehr guter Kristallqualität als 2-3 Zoll Wafer verfügbar. Zudem besitzt es eine sehr hohe thermische und vor allem chemische Stabilität während des Wachstumsprozesses. Der chemischen Stabilität bedarf es, um ungewollte Dotierung bzw. Verunreinigung von epitaktischen Schichten während des Wachstums zu vermeiden.

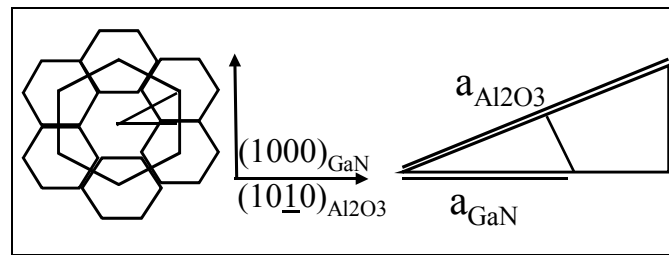


Abbildung 2.13. Der epitaktische GaN Film (kleines Sechseck) ist um 30° gegen das Saphirsubstrat (großes Sechseck) verdreht.

Andere Materialien wie LiGaO_2 oder LiAlO_2 haben beispielsweise eine sehr geringe Gitterfehlanpassung (1-2%), sind jedoch anfällig gegen thermische und chemische Zersetzung unter Prozessbedingungen. Ähnliche Wärmeausdehnungskoeffizienten von Substrat und Film sind von Vorteil, da sonst durch die Abkühlung der Probe von den hohen Wachstumstemperaturen nachträglich Verspannungen im epitaktischen Film auftreten, die zu Gitterfehlern führen können. In dieser Kategorie empfiehlt sich SiC. Zudem hat SiC eine hohe Wärmeleitfähigkeit, wie sie für elektronische Hochleistungsbauelemente notwendig ist. Saphir kann die entstehende Wärme in Leistungstransistoren nur bedingt abführen. Zudem ist SiC im Gegensatz zu Saphir ein dotierbarer Halbleiter. Elektrische Kontakte an der Unterseite von Nitridbauelementen werden möglich. Der ausgesprochen hohe Preis lässt jedoch keinen breiten Einsatz dieses Materials zu. Für das hier angestrebte Ziel der Herstellung elektronenstrahlgepumpter VCSEL sind keine elektrischen Kontakte notwendig. Das Licht des Lasers soll durch das transparente Substrat ausgekoppelt werden, aber SiC hat mit 2,9 eV eine kleinere Bandlücke als GaN. Das von den GaN/AlGaN-MQWs erzeugte Licht würde also absorbiert werden. Saphir ist als Isolator im sichtbaren bis weit in den UV-Bereich transparent. Die große Erfahrung im Umgang mit Saphir als Substratmaterial und die spezielle Anwendung im optoelektronischen Bereich machen daher Saphir zum Substrat der Wahl.

2.1.4 In-situ RHEED

Der niedrige Prozessdruck bei der MBE ermöglicht die *in-situ* Charakterisierung des wachsenden Kristalls mit *reflection high energy electron diffraction* (RHEED). Miyake hat 1937 RHEED zuerst zur Charakterisierung von Oberflächenoxiden benutzt [41]. Die Riber MBE 32 ist an den Seitenwänden der Reaktorkammer mit einer Elektronenkanone und gegenüberliegendem, phosphorizierendem RHEED-Schirm ausgestattet. Der Strahl der verwendeten EK-2035-R-Kathode kann bis auf den Durchmesser 0,1 mm fokussiert werden

[42]. Wegen des geringen Einfallwinkels von 1° wird die Probe bei gleichem Strahldurchmesser auf einer Länge von $0,1\text{mm}/\sin(1^\circ) \approx 6\text{mm}$ „belichtet“.

Beim RHEED macht man sich die Welleneigenschaften der Elektronen zu Nutze. Wie bei der detailliert in Kapitel 4 beschriebenen Röntgenbeugung (*x-ray diffraction* XRD) muss für konstruktive Interferenz die von Laue-Bedingung

$$\exp(i(\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r}) = 1 \quad \text{entsprechend} \quad (\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r} = m2\pi \quad (2.22)$$

erfüllt sein. Dabei ist die Richtung des einfallenden Elektronenstrahls mit $\vec{k} = \vec{p}/\hbar$ durch den Impuls der Elektronen gegeben. \vec{k}' ist der reflektierte Wellenvektor und \vec{r} ein beliebiger Gitterplatz auf der Oberfläche des realen Gitters. Im Unterschied zum XRD wird beim RHEED keine Tiefeninformation gewonnen. Wegen des kleinen Einfallwinkels von 1° ist die Eindringtiefe sehr niedrig und reicht nur in die ersten beiden Monolagen des Kristalls. Im Idealfall sieht der Elektronenstrahl demnach die lateralen Gitterplätze der Oberfläche des Volumengitters, also ein zweidimensionales Gitter, und eine eventuelle Oberflächenrekonstruktion.

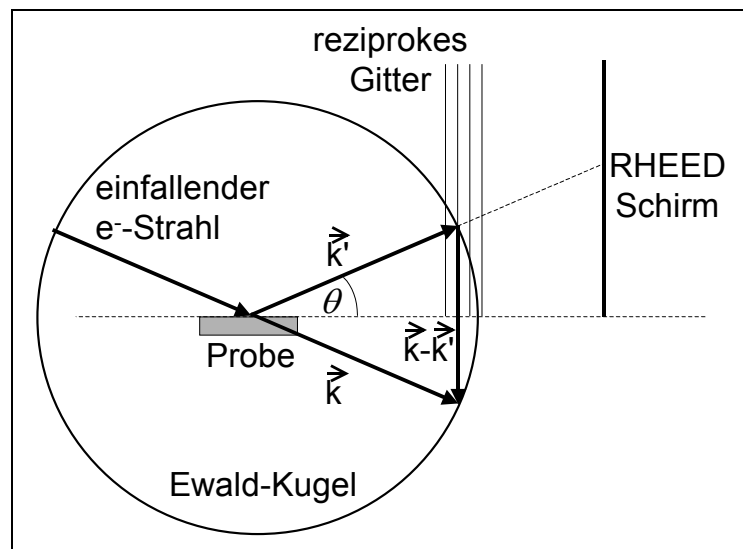


Abbildung 2.14. RHEED Prinzip mit Ewaldkugelkonstruktion. Der auftreffende Elektronenstrahl wird nach der von Laue-Bedingung an der Oberfläche der Probe reflektiert. Das Beugungsbild erscheint auf dem phosphorizierenden RHEED Schirm

Das reflektierte Beugungsbild rührt dann von Kristallgitterlinien und nicht Kristallgitterebenen her. Daher ist das reziproke Gitter nicht wie üblich die dreidimensionale, um 30° gedrehte und entsprechend skalierte Brillouin-Zone (Abbildung 4.1), sondern entsteht nur durch die Projektion der Oberflächengitterpunkte des dreidimensionalen, reziproken

Gitters. Daraus ergeben sich reziproke Gitter-Stangen (Abbildung 2.14). Die zugehörigen reziproken Gittervektoren des „Stangenwalds“ sind

$$\vec{a}_1^* = \frac{2\pi\vec{a}_2 \times \vec{n}}{A} \quad \text{und} \quad \vec{a}_2^* = \frac{2\pi\vec{a}_1 \times \vec{n}}{A}, \quad (2.23)$$

wobei $A = \sqrt{3}/2 \cdot a^2$ die Fläche der Einheitszelle des ebenen, hexagonalen Gitters ist. Die Interferenzbedingung nach von Laue wird durch die Ewald-Kugel-Konstruktion graphisch anschaulich gemacht (Abbildung 2.14). Gl.(2.22) beschreibt eine Kugel mit festem Radius \vec{k} , was die Bedingung der elastischen Streuung der Elektronen wiedergibt. Nach de-Broglie ist die Wellenlänge der Elektronen bei der verwendeten Beschleunigungsspannung von 30kV

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2 \cdot e \cdot m_e}} \frac{1}{\sqrt{U}} = \frac{6,6 \cdot 10^{-34} \text{ Js}}{\sqrt{2 \cdot 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ C} \cdot 9,1 \cdot 10^{-31} \text{ kg}}} \frac{1}{\sqrt{3 \cdot 10^4 \text{ V}}} = 7,1 \cdot 10^{-12} \text{ m}. \quad (2.24)$$

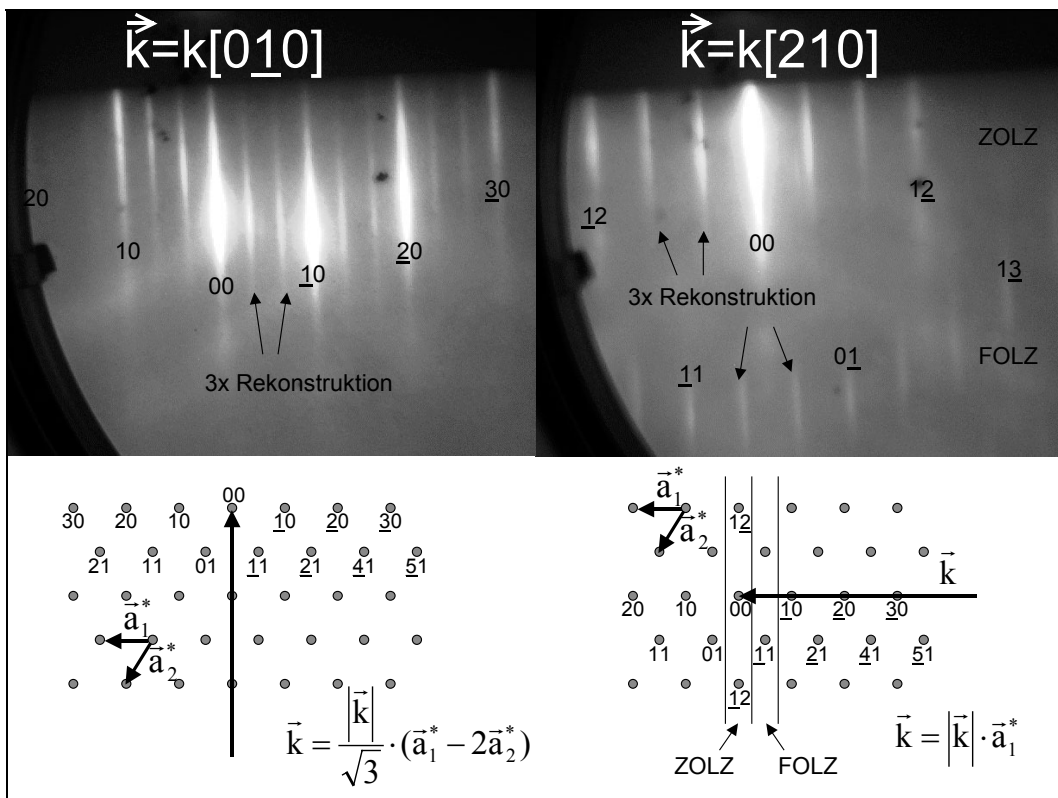


Abbildung 2.15. RHEED Bilder von hexagonalem GaN und zugehörige geometrische Situation im reziproken Raum. Der RHEED Schirm zeigt den Schnitt mit dem reziproken Raum senkrecht zum einfallenden Elektronenstrahl \vec{k} am Ursprung, der durch dessen Spitze definiert ist. Die Vektordefinitionen folgen Gl.(2.22) und Gl.(2.23). Die Nummern geben die hk Miller-Indizes der Stangen wieder. Sie sind geordnet nach dem Abstand von der Ewaldkugelwand in die *zeroth order Laue zone* (ZOLZ), *first order Laue zone* (FOLZ) usw.

Damit ist der Halbmesser der Ewald-Kugel $|\vec{k}| = 2\pi/\lambda = 8,85 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-1}$ etwa um den Faktor 40 größer als der Abstand der Stangen $|\vec{a}^*| = 2\pi a/A = 2,28 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Im Winkelausschnitt des RHEED-Schirms ist deshalb eine „Reihe“ nebeneinander befindlicher Stangen zu sehen. Die Schnittpunkte der Kugel mit den Stangen des reziproken Gitters erfüllen die Interferenzbedingung. Der RHEED-Schirm zeigt Intensität der Stangen mit Miller-Indizes hk in der Richtung der erlaubten Reflexionen \vec{k}'_{hk} (Abbildung 2.15). Für den idealen Fall sollten lediglich die Schnittpunkte der Stangen des reziproken Raumes mit der Ewaldkugel zu sehen sein. Durch mangelnde Periodizität der betrachteten Kristalloberfläche verbreitern sich jedoch die Stangen. Durch Energiedifferenzen innerhalb des Elektronenstrahls, durch die endliche Dicke des Elektronenstrahls und mangelnde Fokussierung wird die Kugelwand der Ewaldkugel verbreitert. Dazu kommen die thermische Aufweitung der reziproken Stangen und die prinzipielle quantenmechanische Unschärfe der Elektronen. Die Beugungsbedingung muss nicht genau erfüllt werden, um ein Signal zu erzeugen. Zusammen ergibt das anstelle von Durchstoßpunkten Durchstoßlinien, wie sie in Abbildung 2.15 zu sehen sind. Neben der Laue-Zone nullter Ordnung ist auch die Laue-Zone erster Ordnung zu sehen.

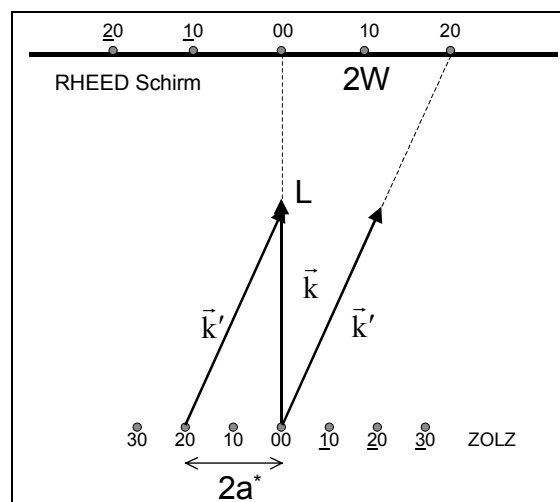


Abbildung 2.16. Bestimmung der Gitterkonstanten a mit Hilfe des Abstandes der RHEED-Streifen auf dem Schirm. Der reziproke Gitterabstand verhält sich zum Betrag des Elektronenstrahlwellenvektors wie Streifenabstand W zum Schirmabstand L von der Probe.

Um aus dem Abstand der Leuchtstreifen auf dem RHEED-Schirm die laterale Gitterkonstante a zu bestimmen, kommt man auf die von Laue-Bedingung zurück. Nach Gl.(2.22) und Abbildung 2.16 gilt im reziproken Raum beispielsweise für die Stange $\{20\}$

$$\left| (\vec{k}'_{20} - \vec{k}) \right| \cong 2\vec{a}_1^* \quad (2.25)$$

und darüber hinaus nach dem Strahlensatz

$$\frac{|\vec{k}|}{2\vec{a}_1^*} = \frac{L}{2W}. \quad (2.26)$$

Mit Gl.(2.23) und Gl.(2.24) folgt damit für die Gitterkonstante a_{GaIn} bei vom Schirm abgelesenen $W \approx 0,8$ cm

$$a = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{\lambda L}{W} = \frac{2 \cdot 0,071 \cdot 10^{-10} \text{ m} \cdot 33 \text{ cm}}{\sqrt{3} \cdot 0,8 \text{ cm}} = 3,4 \cdot 10^{-10} \text{ m} \quad (2.27)$$

Dies weicht angesichts der Meßmethode⁸ und dem unbekanntem Einfluss vorhandener Wechselfelder auf den Elektronenstrahl wenig vom erwarteten Wert $a_{GaIn} = 3,189 \text{ \AA}$ ab.

Der Weg des Elektronenstrahls über den Durchmesser der Reaktorkammer (~ 65 cm) bedeutet eine Ablenkung des Strahls von etwa 15 mm durch das Erdmagnetfeld bei der gewählten Beschleunigungsspannung von 30 kV [42]. Das Beugungsbild wird dadurch im Ganzen verschoben, was durch einstellbare Ablenkkfelder wieder ausgeglichen werden kann. An dieser Empfindlichkeit gegen das relativ kleine Erdfeld erkennt man aber, dass beispielsweise der Einfluss der Magnetfelder von Wechselströmen das Messergebnis verfälschen kann. Wichtig ist das unvermeidliche Magnetfeld des Heizfilamentes des Probenmanipulators. Das Filament ist so geformt, dass der Magnetfeldeinfluss minimiert wird. Die Bestimmung der Gitterkonstanten a während des Wachstums durch Messung des Abstandes der Beugungsmaxima auf dem RHEED-Schirm ist daher mit einem nicht ohne weiteres kalkulierbaren Fehler behaftet. Eigene Versuche ergaben zwar die korrekte Größenordnung für a (s.o.), Aussagen über z.B. laterale Verzerrung an der Wachstumsoberfläche konnte jedoch nicht gewonnen werden.

Manche Arbeitsgruppen nutzen RHEED-Intensitätssoszillationen zur Bestimmung der Wachstumsgeschwindigkeit des Kristalls. Während des idealen 2D-Wachstums geht bei einer Teilbedeckung der Oberfläche mit einer neuen Monolage die Intensität des abgelenkten Elektronenstrahls interferenzbedingt zurück. Ist die neue Monolage vollendet, ist die volle Intensität wieder erreicht. Derartige Beobachtungen waren an der vorhandenen MBE nicht zu machen. Dies mag einerseits auf nicht perfektes Wachstum im Frank-van der Merwe Modus zurückzuführen sein. Andererseits ist der Stickstoffhintergrunddruck ($\sim 10^{-5}$ Torr) während des Prozesses doch so groß, dass Intensitätssoszillationen im RHEED-Signal durch Streuung stark

⁸ Es wurde lediglich ein Zentimetermaß an den RHEED Schirm gehalten.

gedämpft werden. Zudem ist die Empfindlichkeit des vorhandenen RHEED Apparates durch jahrelange Nutzung und damit einhergehender Schirmbedampfung eingeschränkt.

2.2 Einzelschichtherstellung

Abgesehen von der Abfolge der Materialaufbringung sind die Arbeitsschritte zur Herstellung einer einzelnen Epi-Schicht auf dem Substrat und einer komplizierteren Heterostruktur bestehend aus vielen Epi-Schichten sehr ähnlich. Sie sollen am Beispiel von Einzelschichten erläutert werden.

2.2.1 GaN-Wachstum

Die verwendeten 2-Zoll-Saphirsubstrate der Firma CrysTec weisen nach Herstellerangaben eine Toleranz der c-Achsenorientierung bezüglich der Oberflächennormalen von $<0,3^\circ$ auf. Die Oberflächenrauigkeit ist $<0,25$ nm Ra und die Dicke der Scheiben 330 μm . Ein eingesägter *flat* parallel zur (11 $\bar{2}$ 0) Richtung gibt die Orientierung des hexagonalen Kristalls an. Die transparenten Wafer werden auf der Rückseite mit einer ca. 1 μm dicken Titanschicht bedampft, um Wärmestrahlungsabsorption der Strahlungsheizung des Manipulators in der UHV-Kammer zu ermöglichen. Nach der Ti-Bedampfung werden die Wafer viergeteilt und vor Einführung in das Vakuumsystem gereinigt. Die Standardprozedur unter Reinraumbedingungen dafür ist ein fünfminütiges Kochen der $\frac{1}{4}$ -2-Zoll-Substrate in Ethanol, gefolgt von einem fünfminütigen Bad in Ammoniak und dem zehnminütigen Abkochen in 2-Propanol. Die Substrate werden dann mit Stickstoff trockengeblasen und eingeschleust. Hier folgt der letzte Reinigungsschritt, ein einstündiges Ausgasen bei ca. 800°C. Schließlich wird das Substrat in die Prozesskammer eingeführt.

Als erster Prozessschritt des Wachstums folgt die Hochtemperaturnitridierung. Hierbei wird das Substrat bei ca. 750°C dem Plasmastrom der Plasmaquelle ausgesetzt. Der Stickstoffdurchfluss wird höher gewählt (1.0 sccm) als beim späteren Wachstum, um den Effekt zu intensivieren. Zum einen wird durch das Plasma die Oberfläche ein weiteres Mal gereinigt. Zum anderen tragen Stickstoffradikale dazu bei, die Al₂O₃-Oberfläche durch Lösen des Sauerstoffs in AlN umzuwandeln (Abbildung 2.17). Dies verbessert wesentlich das Anwachsen der als nächstes aufzutragenden Pufferschicht. Wird hierzu anstelle eines Plasmas bei der *gas-source*-MBE und der MOCVD Ammoniak als N-Quelle verwendet, läuft der Prozess deutlich effektiver ab. Es entsteht in kurzer Zeit eine geschlossene Monolage AlN, welche die Ga-Polarität des Epi-Films festlegt. Im Fall der PA-MBE entscheidet wegen unzureichender AlN-Bedeckung der Oberfläche nach der Nitridierung erst der Puffer, welche

Polarität angenommen wird. Ein GaN-Puffer hat Stickstoffpolarität zur Folge, ein AlN-Puffer produziert Ga-, oder besser, Metallpolarität im folgend deponierten AlN-, AlGaN- oder GaN-Film.

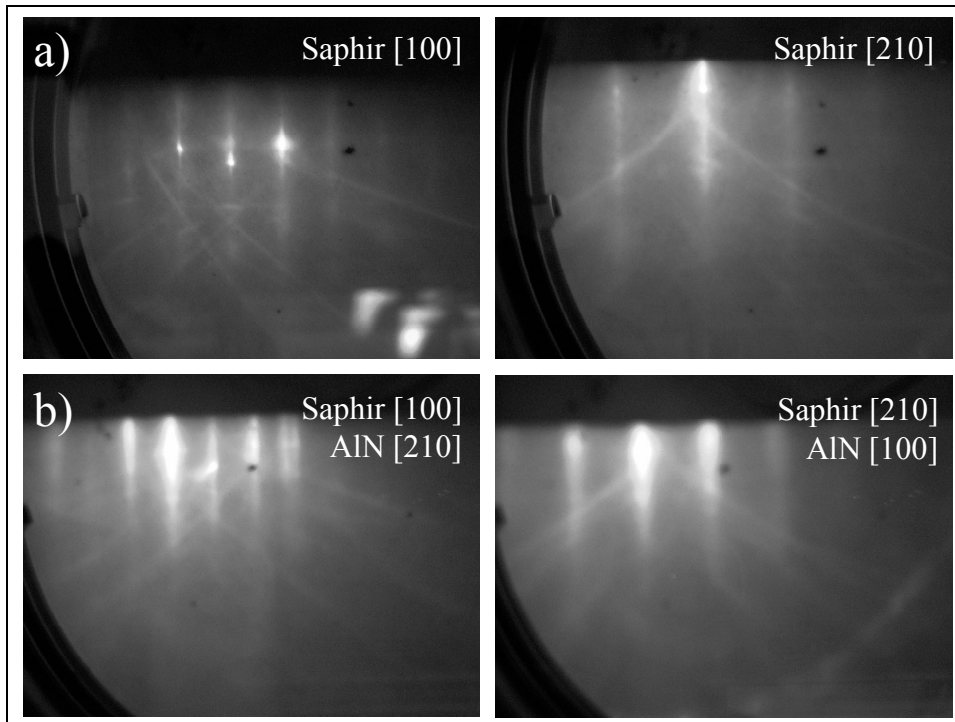


Abbildung 2.17. Nitridierung des Saphirs. Das AlN Gitter ist um 30° gegen das Saphir Gitter verdreht. a) RHEED Bild des ausgeheizten Substrats. b) RHEED Bild einer erfolgreichen Nitridierung. In der [210] Orientierung des AlN entspricht ein AlN Stangenabstand ca. 3 Saphir Stangenabständen der [100] Richtung. Die Abstände in Saphir [210] und AlN [100] Richtung sind nahezu gleich. Auf dem RHEED Schirm ist eine von Innen nach außen zunehmende Aufspaltung der Linien zu erkennen.

Über die Wahl der Nitridierungstemperatur gibt es unterschiedliche Auffassungen. Einige Autoren sind überzeugt, eine Nitridierung bei niedriger Temperatur habe positive Effekte für die Materialqualität der eigentlichen Epi-Schicht [43,44]. Hier wurden keine entsprechenden Untersuchungen angestellt, weil die Wachstumsergebnisse mit der Hochtemperaturnitridierung konkurrenzfähige Ergebnisse lieferten. Es muss jedoch bemerkt werden, dass die Nitridierung, deren Erfolg am RHEED-Schirm abgelesen wurde, trotz nominell gleicher Plasmabedingungen (Stickstofffluss, OED-Wert, eingekoppelte ECR-Leistung) für verschiedene Proben verschieden lang dauerte. Auffällig war dabei, dass nach mehrtägigem Stillstand der Anlage (z.B. nach dem Wochenende) die Nitridierung deutlich mehr Zeit in Anspruch nahm (>1 Std.) als an üblichen Prozesstagen (~ 30 min). Um einen gleichmäßigen Ablauf der Prozesse zu gewährleisten wurde die Nitridierung der Probe nach Möglichkeit jeweils am Ende des Vortages vorgenommen, so dass die Reaktorkammer am

gleichen Tag bereits einen Prozess gesehen hatte. Ein genauer Grund für dieses Verhalten konnte nicht festgestellt werden. Die frische Materialbelegung der Reaktorkammer nach einem Prozess scheint aber eine begünstigende Wirkung auf die Nitridierungsdauer zu haben. Nach erfolgreicher Nitridierung wird die Probe auf die Wachstumstemperatur (meistens 690°C für GaN) für den Puffer und die Epi-Schicht abgekühlt. Frühe Versuche mit sogenannten Niedertemperatur-Puffern wie sie für die MOCVD verwendet werden [45,46] um das laterale Wachstum der folgenden Epi-Schicht zu verbessern, führten zu keiner messbaren Materialverbesserung. Da das Wachstum bei der MBE nicht im thermodynamischen Gleichgewicht stattfindet und die Wachstumstemperatur niedrig gewählt ist ($650\text{-}800^{\circ}\text{C}$), und damit deutlich unterhalb der MOCVD Wachstumstemperatur ($\sim 1000^{\circ}\text{C}$) liegt, ist die laterale Beweglichkeit der Atome bzw. Moleküle beim Einbau deutlich reduziert. Das laterale Kristallwachstum ist entsprechend gehemmt.

Für die Einzelschichtproduktion wurden relative dünne ($\sim 15\text{ nm}$) AlN- oder GaN-Puffer verwendet. Der Puffer soll die Gitterfehlpassung zwischen Substrat und Epi-Schicht reduzieren. Dies wird erreicht, allerdings nur um den Preis massiver Kristallgitterfehlerbildung ($10^{10}\text{-}10^{12}\text{ TDs/cm}^2$) an der Grenzfläche zum Substrat.

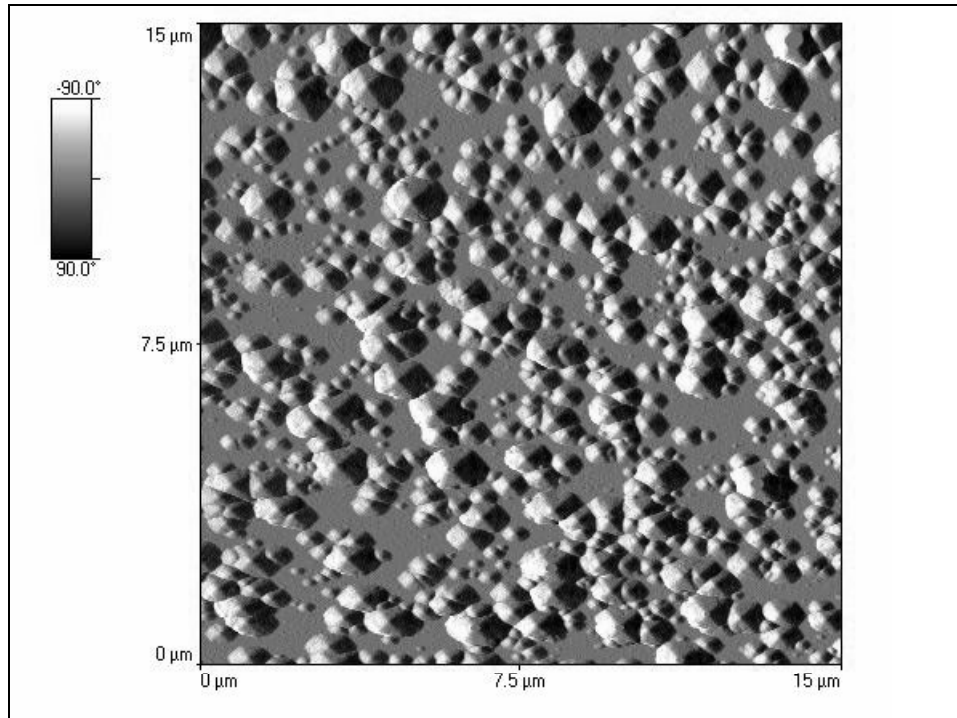


Abbildung 2.18. AFM Bild eines etwa 20 nm dicken GaN Puffers auf nitridiertem Saphir. Man sieht das beginnende Zusammenwachsen der Nukleationspyramiden. Die Farbskala gibt die Winkelorientierung der Pyramidenfacetten bezüglich der Oberflächennormalen an.

Die meisten sich fortpflanzenden Gitterfehler können an der Grenzfläche zum anschließend deponierten Epi-Film gestoppt werden, bzw. löschen sich beim Zusammenwachsen der sich zunächst bildenden Kristallpyramiden des Puffers aus (Abbildung 2.18; siehe auch Abschnitt 2.3.1). Der Epi-Film enthält dann noch 10^{10} - 10^{11} TDs/cm². Das ist immer noch eine extrem hohe Dichte, jedoch für GaN-Schichten (ohne spezielle Maßnahmen zur Reduzierung) üblich. Strategien zur TD-Reduzierung werden in Kapitel 5.1 vorgestellt. Bei der Pufferdeposition ist die verminderte Wachstumsrate bis zu einer Dicke von ca. 20 nm zu beachten [47]. Bis zu dieser Dicke wachsen die Nukleationspyramiden des Puffers nahezu unabhängig voneinander. Die Wahrscheinlichkeit des Materialeinbaus hängt nach der Kapillaranziehungstheorie vom Energieverhältnis der Oberflächen- zur Volumenenergie der Pyramiden ab. Oberhalb einer kritischen Pyramidengröße, etwa dann, wenn das Zusammenwachsen beginnt, stabilisiert sich das Wachstum mit höherer Geschwindigkeit. Der Wachstumsgeschwindigkeitsunterschied beträgt etwa 1/3. Der Effekt ist unabhängig vom Substrat und dem wachsenden Material. Nur bei der Homoepitaxie tritt er nicht auf, da sich hier auch gar keine Pyramiden ausbilden. GaN-Epi-Schichten, wie sie zum Einfahren der Riber MBE 32-Anlage nach Kammeröffnungen als Referenzschichten hergestellt wurden, wurden üblicherweise bei 690°C gewachsen, mit einem Ga-Fluss von (unkorrigiert abgelesen) $2,1 \cdot 10^{-6}$ Torr. Die Plasmaquellenparameter wurden dann so angepasst, dass sich eine Wachstumsrate von ca. 9 nm/min ergab, was erfahrungsgemäß gute und sehr gute Materialqualität verspricht.

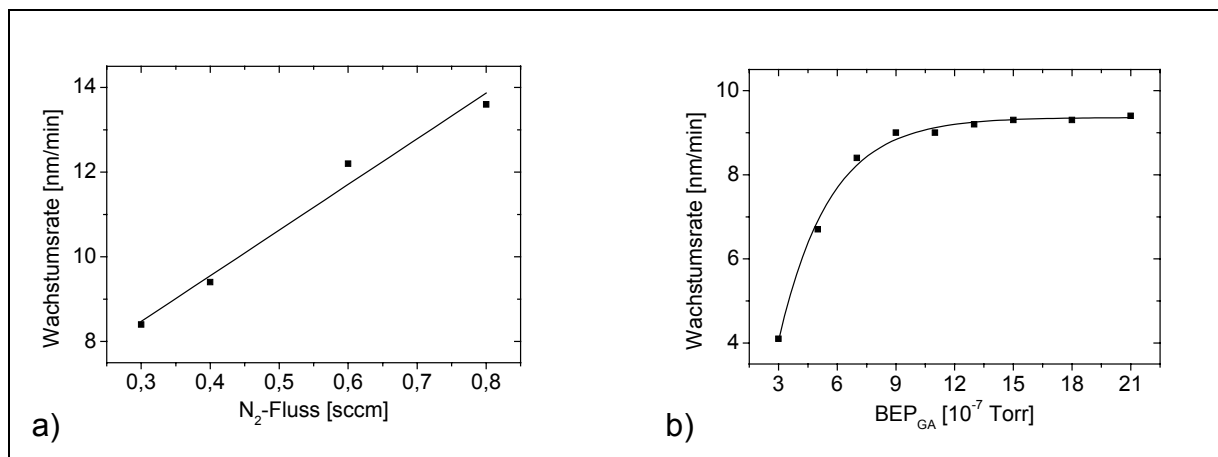


Abbildung 2.19. GaN-Wachstumsrate in Abhängigkeit vom a) N₂-Fluß der Plasmaquelle und b) Ga-Fluss [10].

Der Arbeitspunkt Plasmaquelle lag hier bei 0,4 sccm. Für diese Arbeit wurde nach einer Reparatur der Arbeitspunkt neu auf 0,7 sccm eingeregelt, um wieder die Wachstumsraten nach b) zu erhalten.

Die Materialbeschaffenheit des epitaktischen GaN-Films hängt wesentlich vom III/V-Verhältnis (Stickstoff zu Metall Verhältnis) der Ausgangsstoffe ab. Heying et al. beschreiben

im Detail, dass es wünschenswert ist, in einem metallreichen Regime zu arbeiten, ohne dass jedoch bereits Tröpfchenbildung an der Wachstumsgrenze einsetzt [48]. Wichtig für das laterale zweidimensionale Wachstum ist danach eine gleichmäßige, „aufschwimmende“ Metallbedeckung der Probe während des Wachstums. Dieser Punkt kann bei gegebenem N_2 -Fluß am Kniepunkt der Wachstumsratenkurve nach Abbildung 2.19b gefunden werden. Die Sättigung der Wachstumsrate setzt gezwungenermaßen dort ein, wo die vollständige Bedeckung der Probe während des Prozesses erreicht ist.

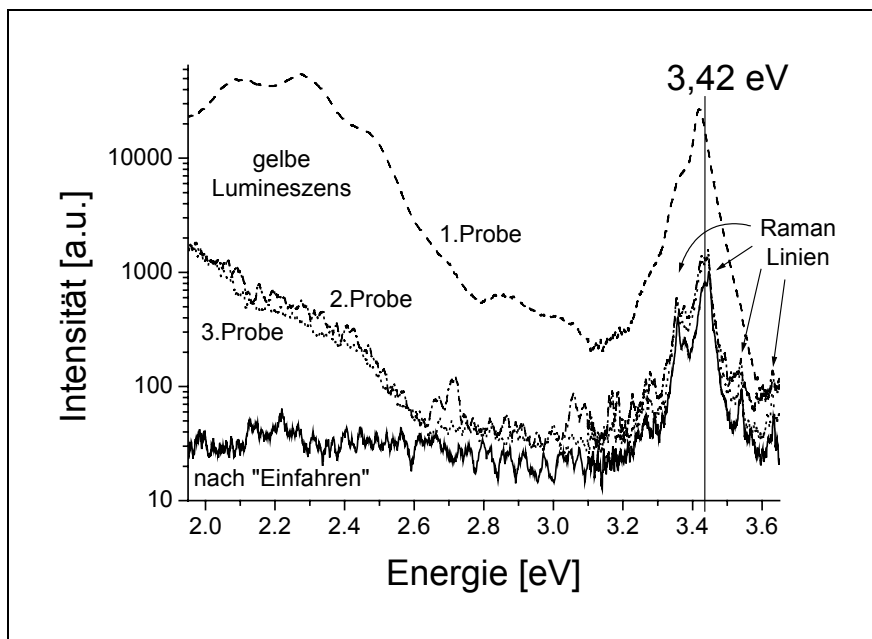


Abbildung 2.20. Optimierung des PL-Spektrums Ga-polarer, ca. $1\mu\text{m}$ dicker GaN-Einzelschichten nach einer Kammeröffnung. Die ersten drei gewachsenen Proben zeigen gelbe Lumineszens. Nach dem „Einfahren“ der Reaktorkammer und der Optimierung der Wachstumsparameter ist keine gelbe Lumineszens mehr vorhanden.

Prozessbegleitend fanden Raumtemperatur (RT)- Photolumineszenz (PL)- Messungen statt (Abbildung 2.20). Die Wachstumsoptimierung wurde beendet, wenn das PL geringe gelbe Lumineszens aufwies, und die Halbwertsbreite des Bandkantenpeaks für Ga-polare Proben auf unter 5 nm abgesunken war (beste Werte lagen bei 3,5 nm). Der Hauptbeitrag zum Bandkantenpeak kommt von freien Exitonen. Ein intensiver, breiter Bandkantenpeak weist auf eine große Anzahl freier Ladungsträger hin. Diese stammen bei der ersten Probe in Abbildung 2.20 aus Gitterfehlern, die auch für die gelbe Lumineszens verantwortlich zeichnen. Die gelbe Lumineszens wird mit Stickstoffvakanzanzen im Kristall in Zusammenhang gebracht [49]. Fehlende gelbe Lumineszens und geringe, intrinsische Hintergrunddotierung sind dagegen der Grund für den Verlauf des Spektrums der optimierten GaN-Schicht. Bei

geringer intrinsischer Hintergrunddotierung fällt das Bandkantensignal niedrig aus, und Raman-Linien aus resonanter Raman-Streuung, die durch den im PL-Versuchsaufbau verwendeten HeCd-Laser angeregt wird, werden sichtbar. Das Auftreten dieser Linien ist vom PL-Signal vollkommen unabhängig. Die Position der Raman-Linien ist für alle Proben nahezu identisch, da die Frequenz des angeregten LO-Phonons nur schwach von der Materialzusammensetzung abhängt. Mehrere Repliken eines Phonons mit einem Raman-shift von ca. 88 meV sind in Abbildung 2.20 und Abbildung 2.21 sichtbar.

Mit der Wahl eines GaN-Puffers wird die N-Polarität des folgenden GaN-Films festgelegt. Mit AlN-Puffer folgt Ga-Polarität. Die Wahl des Puffers hat Auswirkungen auf Kristalleigenschaften der nachfolgenden Schicht. Die PL-Spektren nach Abbildung 2.21 zeigen einen deutlichen Unterschied. Die verglichen mit der AlN-Pufferprobe größere Gitterfehlpassung zwischen dem GaN-Puffer und dem Saphir-Substrat der N-polaren Probe führt zu einer größeren Anzahl Gitterfehler. Sicheres Anzeichen dafür ist die gelbe Lumineszenz. Auch ist die Halbwertsbreite der Bandkantenemission der N-polaren Probe größer (4,9 nm) als die der Ga-polaren Probe (4,0 nm).

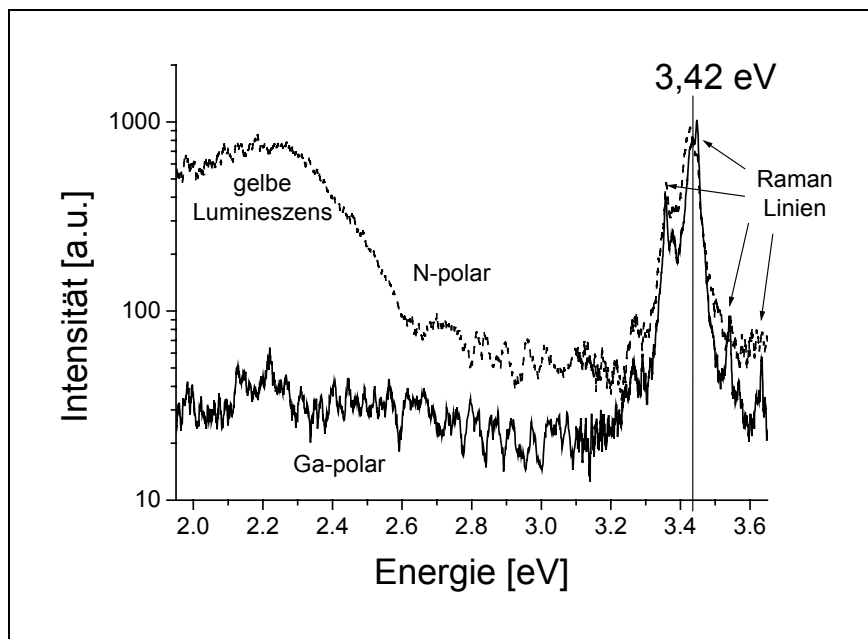


Abbildung 2.21. PL-Spektren kurz nacheinander unter gleichen Bedingungen gewachsener Ga- und N-polarer GaN-Einzelschichten.

Für die Transistorherstellung bedeutet die erhöhte Hintergrundladungsträgerkonzentration von N-polarem Material, dass die Realisierung sogenannter invertierter^h HEMT-Strukturen schwierig ist [10]. Für die in dieser Arbeit angestrebten optischen Strukturen ist aber vielmehr die Oberflächenrauigkeit von entscheidender Bedeutung. Nach eigenen Erfahrungen ergeben sich dabei keine Unterschiede zwischen den Polaritäten, obwohl die Oberflächenmorphologie deutlich unterschiedlich ausfällt (Kapitel 5). Typisch für verschiedene Polaritäten sind auch unterschiedliche Oberflächenrekonstruktionen. Nach ausführlichen polarisationsselektiven KOH-Ätzexperimenten [11] konnten 2-fach Rekonstruktionen im (210) Azimut (1x2, 2x2, 3x2 Rekonstruktionen) Ga-polaren Schichten zugeordnet werden. 3-fach Rekonstruktionen (3x3, 3x6, 6x6) finden sich auf N-polaren Schichten.

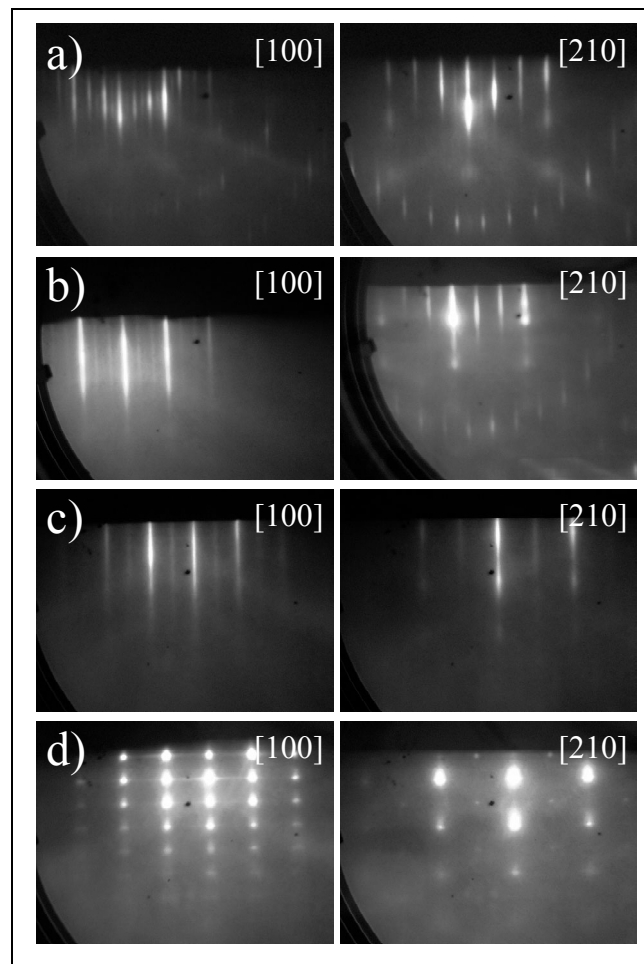


Abbildung 2.22. Verschiedene Oberflächenrekonstruktionen von GaN-Einzelschichten. a) N-polare 6x6 Rek., b) N-polare 3x3 Rek., c) Ga-polare 2x2 Rek., d) ausgeprägtes dreidimensionales Wachstum ohne Rekonstruktion.

^h Bei üblichen HEMT Strukturen liegt das durch den piezoelektrischen Effekt an der GaN/AlGaN Grenzfläche entstehende zweidimensionale Elektronengas (2DEG) im dicken GaN-Puffer, unterhalb der Grenzfläche. Die invertierte Struktur hat das 2DEG oberhalb der Grenzfläche, und sollte so leichter zu kontaktieren sein.

Abbildung 2.22 zeigt eine Auswahl der beobachteten Oberflächenrekonstruktionen. Wachstumsparameterkorrelationen bezüglich der Vielfachen der Rekonstruktionen konnten nicht festgestellt werden. Werden die Wachstumsparameter ungünstig gewählt (zu stickstoffreich, zu hohe oder zu niedrige Substrattemperatur), findet kein zweidimensionales Wachstum mehr statt. Statt dessen bilden sich einzelne Kristallite, die der RHEED-Strahl durch nicht zur Oberfläche parallele Facetten durchstrahlen kann. Das Resultat ist ein dreidimensionales, punktiges Beugungsbild nach Abbildung 2.22d. Die durch das hexagonale Gitter vorgegebenen Linienabstände bleiben durch die einheitliche, vom Substrat vorgegebene Orientierung der Kristallite erhalten.

Ist das GaN-Einzelschichtwachstum wie beschrieben eingefahren, können auf dieser Basis Wachstumsparameterabweichungen eingeführt werden um kompliziertere Strukturen herzustellen. Die erzielten Ergebnisse zu AlGaN-Einzelschichten, dünnen AlN-Zwischenschichten zur TD-Reduzierung finden sich, ebenso wie Ergebnisse zu DBR-, MQW- und VCSEL-Proben, in den Kapiteln 5 und 6. Untersuchungen zur GaN-Dotierung werden im nächsten Abschnitt vorgestellt.

2.2.2 GaN-Dotierung

Einfache GaN-Einzelschichten sind in der Regel ungewollt n-dotiert (*unintentionally doped*). Beim Wachstum auftretende Kristallgitterfehler wirken wie Donatoren. Der Hauptverdächtige ist hierbei wie bei der gelben Lumineszens des PL-Spektrums die Stickstoffvakanz.

Polarität	Si Zelle T [C°]	Dicke [nm]	PL E _g [nm]	PL Intensität [cts]	PL FWHM [nm]	Beweglichkeit [cm ² /Vs]	n [10 ¹⁷ cm ⁻³]
Ga	-	892	361.20	8.9E+02	4.0	1	4.6
Ga	900	808	360.60	7.8E+02	4.0	-	-
Ga	1000	950	361.30	1.6E+04	5.3	142	2.3
Ga	1100	794	362.10	2.4E+05	8.9	157	63
N	-	829	361.90	8.8E+02	4.9	50	3.8
N	900	815	362.70	1.8E+03	5.7	22.1	7.2
N	950	830	362.70	1.4E+03	5.6	27	2.9
N	1000	826	362.90	4.5E+03	5.6	22	4.6
N	1050	818	362.80	3.8E+04	6.8	211	9.7
N	1100	821	363.30	1.6E+05	8.4	142	44
N	1200	797	361.30	3.7E+06	13.5	61.5	2000

Tabelle 2.4. Eigenschaften einer Reihe Si-dotierter GaN-Einzelschichten.

Je nach Materialqualität liegt die intrinsische Hintergrunddotierung zwischen 10^{15}cm^{-2} (beste MOCVD-Proben) und 10^{18}cm^{-2} . Typische Werte für am Lfl ohne spezielle Pufferoptimierung hergestellte Proben liegen im 10^{17} er Bereich sowohl für N-polare als auch für Ga-polare Schichten. Für die weitere n-Dotierung wird als Donator Silizium benutzt, weil es eine geringe Aktivierungsenergie aufweist und sich als leicht in den Kristall einzubauen erwiesen hat. Es ist eine Reihe von N-polaren und Ga-polaren GaN:Si Einzelschichten hergestellt worden, um eine Dotierungseichkurve zu erstellen (Tabelle 2.4). Die Ladungsträgerbeweglichkeiten und Mobilitäten wurden per Raumtemperatur-Hall-Messung bestimmt.

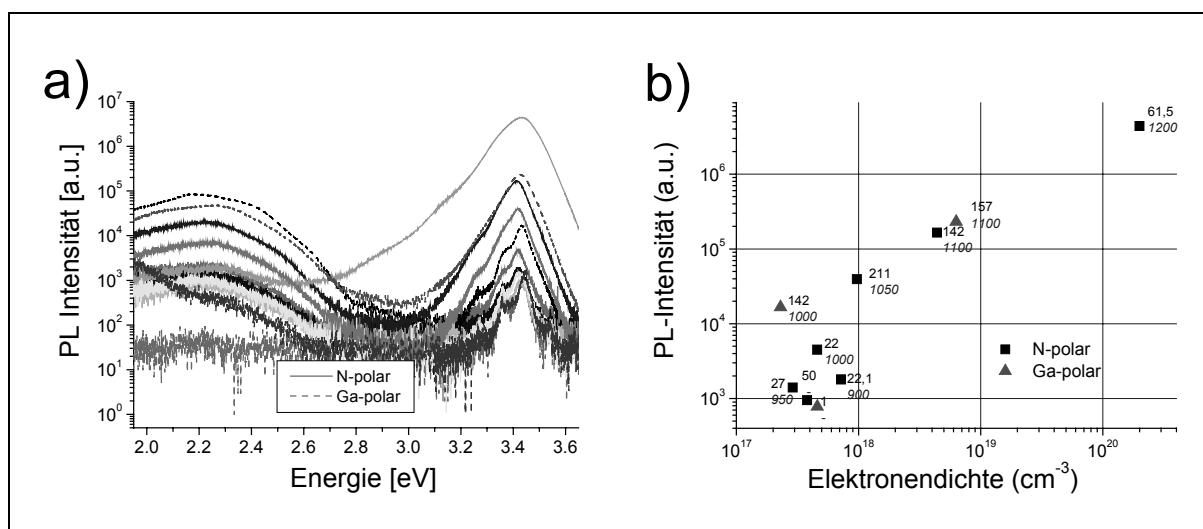


Abbildung 2.23. a) PL-Spektren der untersuchten GaN:Si Einzelschichten. Größere Intensität bedeutet höheres Dotier-Niveau. b) Zusammenfassung der Datenpunkte aus Tabelle 2.4. Die obere Zahl gibt die Elektronenbeweglichkeit an, die kursive Zahl die Si-Zellentemperatur.

Alle Schichten weisen etwa die gleiche Schichtdicke auf. Die zugehörigen PL-Spektren zeigt Abbildung 2.23a. Mit zunehmendem Dotierniveau steigt nicht nur die PL-Intensität, weil zusätzliche Ladungsträger zur Verfügung stehen, sondern es häufen sich auch Kristallgitterfehler durch die Anwesenheit der Fremdatome, was durch den Anstieg der gelben Lumineszenz belegt wird. Die N-polaren Proben zeigen im Schnitt eine geringere Bandkantenenergie E_g und eine größere Halbwertsbreite.

Die Daten der Tabelle 2.1 sind in Abbildung 2.23b dargestellt. Man erkennt den Zusammenhang zwischen Ladungsträgerdichte und Intensität an der Bandkante. Sehr deutlich ist die Anhängigkeit zwischen Si-Zellentemperatur und Ladungsträgerkonzentration bzw. PL-

Intensität in der Probe (Abbildung 2.24). Hieraus ergeben sich Eichkurven für die gezielte Dotierung im elektronischen Bauelementewachstum (HEMTs, MOSFETs usw.) [10].

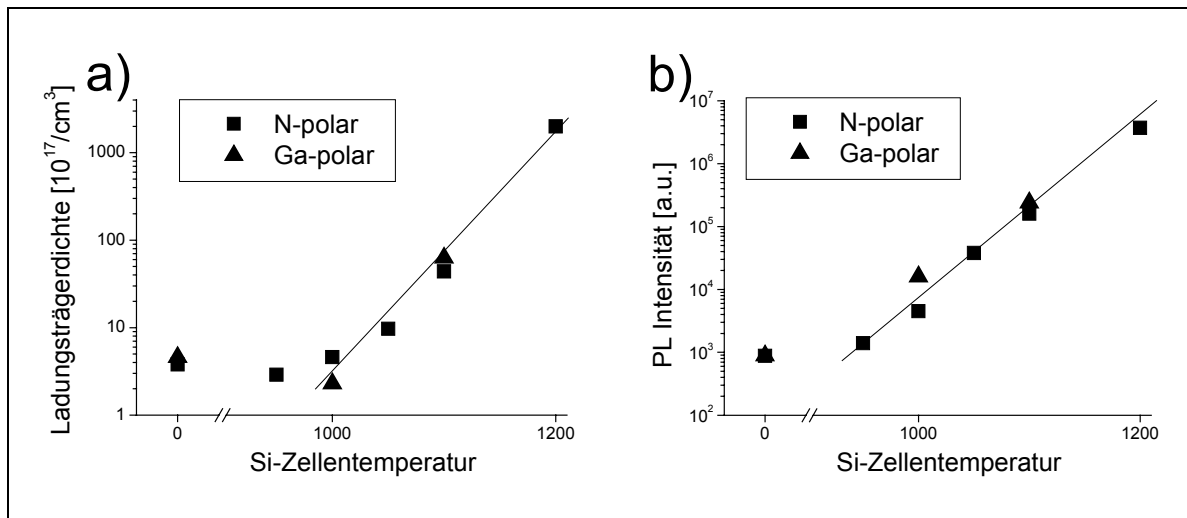


Abbildung 2.24. Si-Dotierung von GaN-Einzelschichten. a) Abhängigkeit der Elektronenladungsträgerkonzentration von der Si-Zellentemperatur, b) Zusammenhang zwischen PL-Intensität und Si-Zellentemperatur.

Die n-Dotierung mit Si stellt keine große technische Herausforderung dar. Anders die p-Dotierung. Üblicherweise wird Mg als Akzeptor im GaN-Kristall verwendet. Teilweise wird auch Be, C oder Zn verwendet, allerdings mit mäßigem Erfolg. Mg wird normalerweise aus einer üblichen Knudsen-Zelle verdampft. Wegen der geringen Mobilität des Mg-Atoms ist der Einbau in den Kristall nicht besonders effektiv. Hinzu kommt die große Akzeptoraktivierungsenergie von ca. 250 meV. Damit trägt bei Raumtemperatur nur etwa jedes 100ste Mg-Atom zur Löcherleitung bei, und riesige Dotierkonzentrationen $>10^{20}\text{cm}^{-3}$ müssen erreicht werden, was den GaN-Kristall wesentlich schädigt. Ein möglicher Ausweg könnte ein effektiverer Einbau der Mg-Atome auf Kristallgitterplätze sein. Ursprünglich wurde zu diesem Zweck eine spezielle Mg-Ionen-Effusionszelle von Oxford Applied Research beschafft. Die Idee war, durch die Nachionisierung der abgestrahlten Mg-Atome per Heißelektronenkathode die Energie und damit die Beweglichkeit der Atome auf der Wachstumsoberfläche zu erhöhen. Gleichzeitig könnte durch Anlegen einer Spannung an die Probe eine leichte Ionenimplantation in der Reaktorkammer erfolgen (Abbildung 2.25).

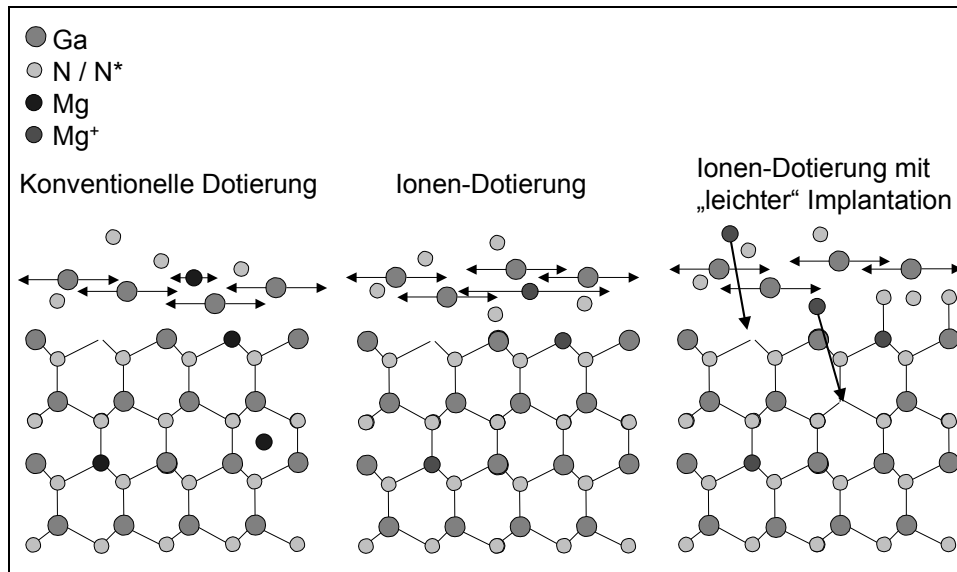


Abbildung 2.25. Modell zur Mg^+ Dotierung zur Erlangung von p-GaN. Die Pfeile deuten die Beweglichkeit der verschiedenen Spezies an.

Wegen eines Konstruktionsfehlers der Mg-Ionenquelle konnten leider nur vorläufige Experimente unternommen werdenⁱ. Es wurden mit Ionisierung keine besseren Resultate erzielt als ohne, was aber nicht verwunderlich ist, da die MG-Quellenparameter nicht ausgelotet werden konnten. Die besten erreichten Werte sind $5,0 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ Löcherbeweglichkeit bei einer Ladungsträgerkonzentration von $1,6 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Bei vielen Proben wurde jedoch lediglich eine Kompensation der intrinsischen n-Leitung erreicht.

Trotz des geringen Erfolges und wenig auswertbarer Daten zeigen die PL-Spektren der GaN:Mg Proben interessante Details (Abbildung 2.26). Die Abwesenheit der gelben Lumineszenz deutet darauf hin, dass innerhalb der verbotenen Zone wirkende Rekombinationszentren durch die Mg-Dotierung kompensiert werden. Die elektrische Wirkung von Gitterfehlern wird gewissermaßen aufgehoben. Während bei Raumtemperatur lediglich die Zunahme der Intensität einer für die Mg-Dotierung typischen blauen Lumineszenz festgestellt werden kann, gibt eine Tieftemperaturmessung bei 4,2 K genauere Auskunft über deren Struktur (Abbildung 2.26b). Beginnend am oberen Ende des Spektrums ist bei 3.471 eV ein erster Peak einer gebundenen Exiton-Rekombination (*bound exciton*) zu erkennen. Ob das Exiton einem Akzeptor oder Donator zugerechnet werden muss, ist allein vom PL nicht zu entscheiden. Der Peak bei 3,41 eV könnte einem an einem Gitterfehler gebundenen Exiton zugerechnet werden. Die wirklich interessante Struktur betrifft die blaue

ⁱ Ohne eingeschaltete Ionisation kondensierte Mg an den elektrischen Anbauten der Zelle und machte die Zelle schließlich durch „Verstopfung“ unbrauchbar.

Lumineszens. Hier handelt es sich um Donator-Akzeptor-Paar Rekombinationen (DAP) bei 3,277 eV und deren Phonon-Replika. Die 3 Replika treten im Abstand von jeweils 90 meV auf. Die blaue Lumineszenz geht also auf die Anwesenheit der Mg-Akzeptoren zurück. Schließlich findet sich noch ein „tiefer“ Übergang, der vermutlich auf die Wechselwirkung des Dotierstoffes mit einer Stickstoffgitterleerstelle zurückzuführen ist, die als Donator wirkt.

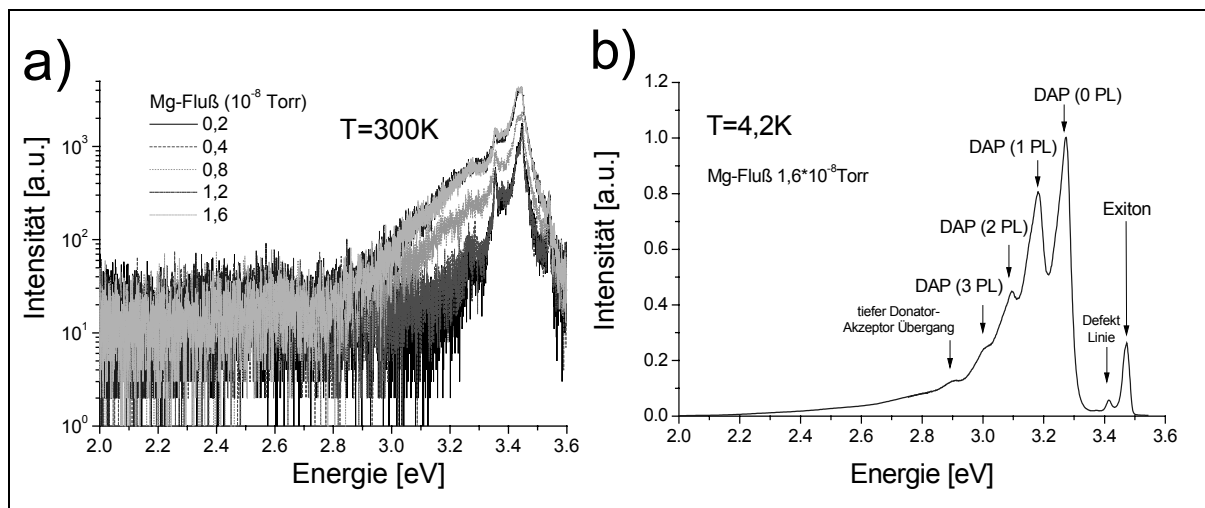


Abbildung 2.26. a) Raumtemperatur PL-Spektren verschieden p-dotierter GaN:Mg Proben. b) Tieftemperatur PL-Spektrum einer Probe mit höchster Mg-Dotierung (4,2 K).

Prinzipiell ist mit den Dotierungsversuchen gezeigt, dass bipolare Strukturen auf GaN-Basis herstellbar sind. Vielfältige elektronische Anwendungen von Dioden bis bipolaren Leistungstransistoren sind möglich. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit wird jedoch die unipolare, optische Anwendung betrachtet. Die hergestellten VCSEL-Strukturen kommen (vorerst) ohne elektrische Kontaktierung aus.

2.3 Diskussion der Kristallqualität

Für die anzustrebende industrielle Fertigung Nitrid-basierter elektronischer und optoelektronischer Halbleiterbauelemente ist die Homogenität der prozessierten Wafer von herausragender Bedeutung. Während erste Si-Prozessstraßen 12-Zoll-Wafer gleichmäßig bearbeiten, werden grüne, blaue und weiße Nitrid-Leuchtdioden auf 10 mm Wafern gefertigt [50]. Diese Einschränkung ist nicht nur das Resultat mangelnder Verfügbarkeit entsprechender SiC- und Saphir-Substrate. Vielmehr ist die Prozesstechnik noch nicht in der Lage, die Materialabscheidungsverfahren gleichmäßig genug zu gestalten. Neben dieser lateralen Inhomogenität stellt besonders die hohe Anzahl an Gitterfehlern auf der nanoskopischen Ebene ein Problem dar.

2.3.1 Gitterfehler

Der Grund für die Bildung von Gitterfehlern im Kristall ist die energetische Anpassung des Kristalls an äußere Zwänge. Die Heteroepitaxie führt durch Gitterfehlranpassung zu Verzerrungen im epitaktischen Film. Die durch das Substrat bestimmte Zug- oder Schubspannung wird durch Bildung von Gitterfehlern reduziert. Mit Ausnahme der Stickstoffvakanz sind Punktgitterfehler recht selten und haben kaum Auswirkung auf das Verhalten des Kristalls. Im Gegensatz dazu agieren Versetzungslinien (*threading dislocations*; TD), die sich durch den Kristall fortpflanzen, als Streu- und Rekombinationszentren, und haben so Einfluss auf elektrische und optische Parameter und auf die Periodizität des Materials.

In epitaktischen c -Achsen-GaN-Filmen kommen drei verschiedene Arten von TDs vor. Sie unterscheiden sich durch ihren Burger-Vektor: Vielfache des Burger-Vektors $\vec{b} = 1/3(11\bar{2}0)$ kennzeichnen a -Schraubenversetzungen und a -Stufenversetzungen. c -Schraubenversetzungen und c -Stufenversetzungen weisen einen Burger-Vektor mit Vielfachen von $\vec{b} = (0001)$ auf. Für Mischformen gilt $\vec{b} = 1/3(11\bar{2}3)$. Die a -Schraubenversetzung (*basal screw dislocation*) und die c -Stufenversetzung (*basal edge dislocation*) laufen durch die Basalebene, während die a -Stufenversetzung (*prism edge dislocation*) und die c -Schraubenversetzung (*prism screw dislocation*) sich in c -Richtung fortpflanzen. Innerhalb der linearen elastischen Theorie ist die Energie einer einzelnen TD je Länge gegeben mit [51]

$$E = A_0 \ln(R/r_c) + E_c. \quad (2.28)$$

Der erste Term beschreibt das durch die TD mit Kern (*core*)-Radius r_c hervorgerufene Spannungsfeld mit der Reichweite R . E_c ist die im Kern der TD gespeicherte Energie. Der theoretische Vorfaktor A_0 ist

$$A_0 = \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \quad (2.29)$$

für Stufenversetzungen und

$$A_0 = \frac{\mu b^2}{4\pi} \quad (2.30)$$

für Schraubenversetzungen. Hier ist b der Betrag des Burger-Vektors und ν die Poisson-Zahl (Kapitel 4.2, Gl.4.15). Die Größe μ ist für jeden TD-Typ unterschiedlich und wird von den Elastizitätskonstanten bestimmt [52].

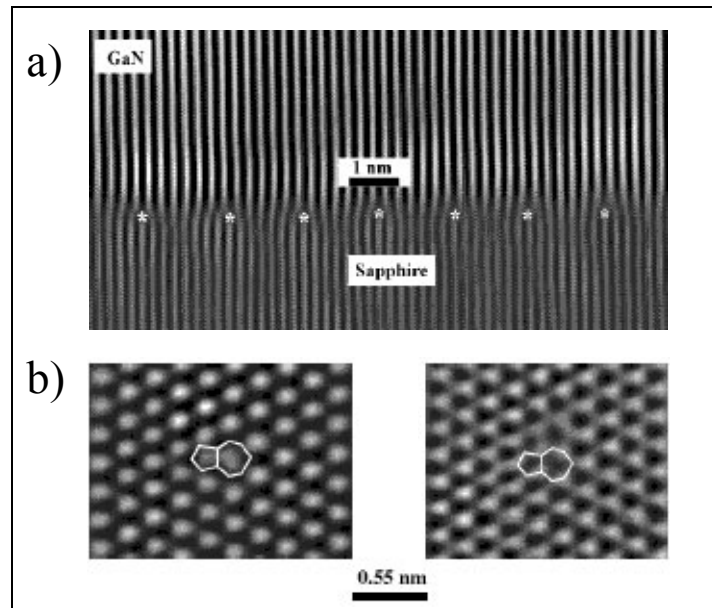


Abbildung 2.27. TEM Aufnahme von a) einer GaN-Saphir Grenzfläche mit c -Stufenversetzungen, b) der GaN-Basalebene mit einer a -Stufenversetzung mit $5/7$ core (vgl. Abbildung 2.28)[53].

Für das hexagonale GaN-System sind die Variablen der Gleichungen Gl.(2.28-30) von Bere und Serra berechnet worden [55]. Aus deren semi-empirischem Ansatz^j berechnete Bildungsenergien der verschiedenen Versetzungstypen sind in Tabelle 2.5 aufgelistet [55,54]. Durch die Gitterfehlانpassung zwischen Substrat und Puffer entstehen zunächst c -Stufenversetzungen (Abbildung 2.27a) und a -Schraubenversetzungen.

Defektart	core	core Durchmesser	A_0	E_c	E
		[nm]	[eV/nm]	[eV/nm]	[eV/nm]
a-Stufe	5/7	1,3	0.77	15	24
	4	1,3	0.77	17	26
	8	1,3	0.77	17	26
a-Schraube		1,3	0.56	12	18
c-Stufe		1,7	2.16	37	56
c-Schraube		1,3	1.46	28	43

Tabelle 2.5. Je Längeneinheit in den verschiedenen TDs gespeicherte Energie. Die letzte Spalte gibt die Summe von $core$ - und Spannungsfeldenergie außerhalb des $cores$ der TD innerhalb eines Zylinders mit Durchmesser 4 nm an [55].

^j Die Energien bestimmen sich aus der Berechnung eines jeweils 28800 Atome großen Modells, das in Richtung der TD periodisch fortgeführt wird, und in senkrechter Richtung mit festen Randbedingungen unter Berücksichtigung der interatomaren Potentiale nach Stillinger-Weber relaxiert.

Da sich beide nur in lateraler Richtung weiterbewegen, sind sie für das Wachstum elektrischer und optischer Bauteile unerheblich, denn die aktive Struktur befindet sich üblicherweise in einem Abstand von der Substratgrenzfläche. c -Schraubenversetzung und a -Stufenversetzungen, die entlang der c -Achse durch den Kristall laufen (Abbildung 2.28), entstehen bei der Koaleszenz der Pufferpyramiden (Abbildung 2.18). Hierbei treffen die Prismenebenen aufeinander, und Gitterfehler innerhalb der Prismenebenen (Familie der $(1\bar{1}00)$ -Ebenen) sind die Folge. Teilweises Übereinanderschieben von Basalebenebenen resultiert in einer c -Schraubenversetzung, ein Halbebeneneinschub nach Abbildung 2.28d-f führt zu einer a -Stufenversetzung. Nach Tabelle 2.5 tritt die a -Stufenversetzung wegen ihrer deutlich geringeren Bildungsenergie dabei deutlich häufiger auf als die c -Schraubenversetzung. Die a -Stufenversetzung hat drei verschiedene stabile Zentren (*core*) mit ähnlicher Energie. Die Versetzung verläuft innerhalb der $(1\bar{1}00)$ -Ebenen und wird ohne weitere Materialgrenzfläche bis zur Probenoberfläche vorstoßen. Sollten mehrere epitaktische Schichten abgeschieden werden, führen die an den Grenzflächen auftretenden Spannungen zu einer Umlenkung der TDs. Mischformen können entstehen. Bei einer großen Anzahl von TDs können sich verschieden abgelenkte TDs treffen und gegenseitig auslöschen oder in nur noch einer Versetzungslinie weiterwandern. Dieser Effekt wird bei der Einführung dünner Zwischenschichten zur Reduzierung der TD-Dichte benutzt (Kapitel 5.1).

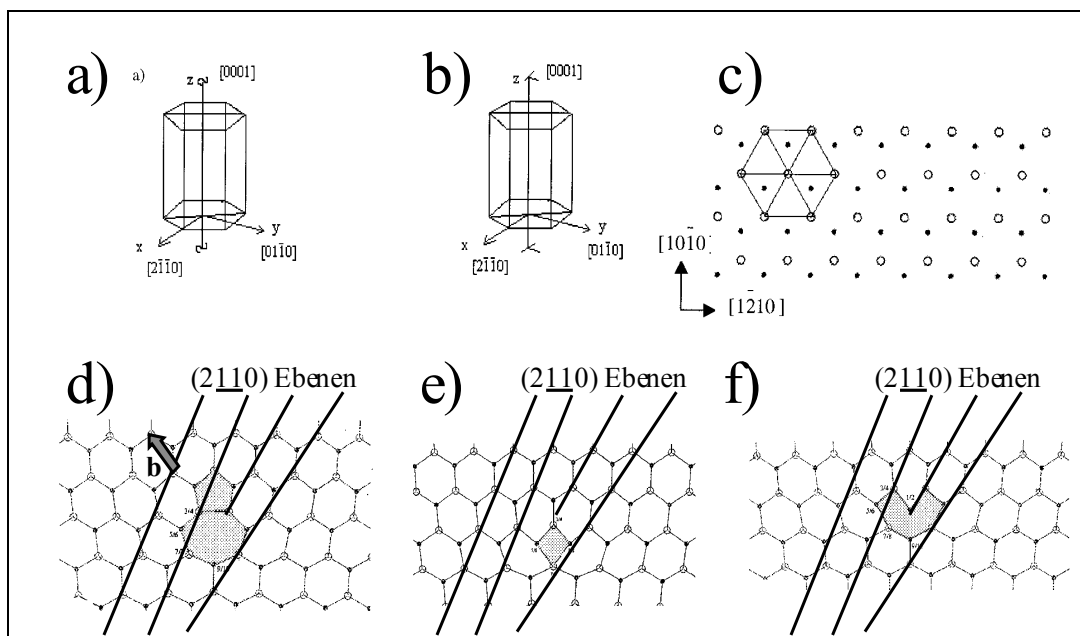


Abbildung 2.28. TDs im hexagonalen GaN-Kristall. a) c -Schraubenversetzung entlang (0001) mit $\vec{b}=(0001)$, b) a -Stufenversetzung mit $\vec{b}=1/3(11\bar{2}0)$, c) ungestörte Basalebene des Kristalls, d) $7/5$ core, e) 4 core und f) 8 core Formen der a -Stufenversetzung in der Basalebene [55].

Für die später durchgeführte Berechnung der kritischen Schichtdicke (Kapitel 6.1) sind in der Basalebene der Grenzfläche verlaufende Versetzungen entscheidend. Dies sind genau die umgelenkten Anteile der zunächst in (0001)-Richtung verlaufenden TDs. Sie laufen in der Grenzfläche als 60° Mischversetzungen weiter, um sich dann oberhalb der Grenzfläche wieder senkrecht fortzupflanzen [56]. Die „gekrümmten“ Versetzungen, bzw. deren in der (0001)-Ebene verlaufender Anteil, nehmen einen Teil der durch die Gitterfehlpassung der heteroepitaktischen Schichten entstehenden biaxialen Spannung auf.

2.3.2 Laterale Inhomogenität

Die laterale Homogenität hergestellter Proben hängt von der Geometrie der Reaktorkammer und des Substrats ab. Grundvoraussetzung für gleichmäßiges Kristallwachstum ist der in Abschnitt 2.1.1 nachgewiesene gleichmäßige Materialfluss auf die Probe. Zum zweiten bedarf es einer einheitlichen Heizung des Substrats und möglichst weniger Randeffekte an den Kanten des Substrats. In dieser Arbeit wurden relativ kleine, $\frac{1}{4}$ 2-Zoll Saphirsubstrate verwendet. Für die Produktion von Multiheterostrukturen hat das den Vorteil, dass der gewachsene Kristall nicht so schnell Risse (*micro-cracks*) zeigt, wie dies bei einem größeren Substratformat der Fall wäre, weil sich nicht gleichermaßen viel Spannung akkumulieren kann. Andererseits wird das Verhältnis von Umfang zu Fläche mit kleiner werdendem Substrat größer. Randeffekte haben also einen größeren Einfluss.

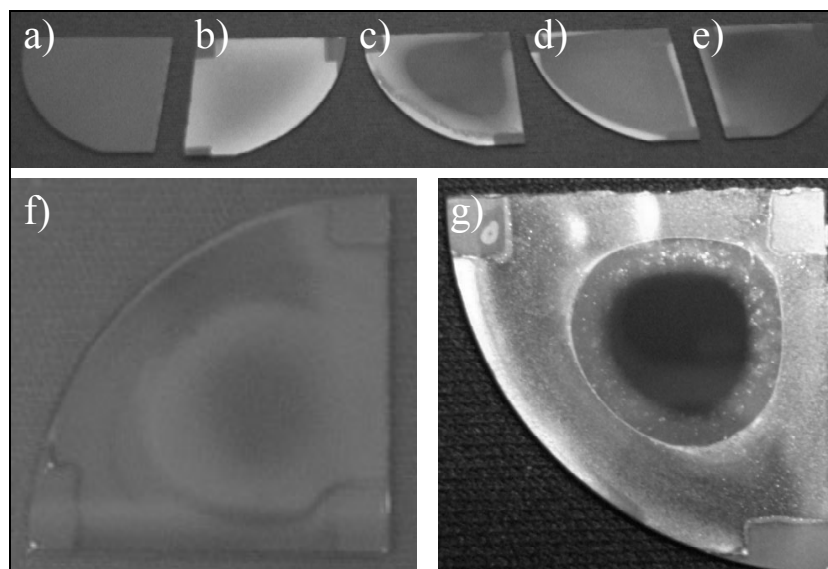


Abbildung 2.29. Prozessierte $\frac{1}{4}$ 2-Zoll Saphir-Wafer. a) Saphir mit Ti-Rückseitenbeschichtung, b)-e) ca. $1\mu\text{m}$ dicke GaN-Einzelschichten, f) relativ homogene $\sim 3\mu\text{m}$ dicke DBR Probe g) inhomogene $\sim 1,5\mu\text{m}$ dicke DBR Probe.

Abbildung 2.29 zeigt einige hergestellte Proben. Die Reihe der Bilder b) bis e) verdeutlicht den Effekt des Temperaturgradienten. Pyrometermessungen ergaben eine gegenüber der Probenmitte um 10°C verminderte Temperatur am Probenrand. Sollen metallreiche Wachstumsbedingungen für die Wafermitte eingestellt werden, werden sich am kühleren Rand Metalltröpfchen sammeln. Nach Abbildung 2.19b wird nun der Metallfluss gesenkt ohne dass sich die Wachstumsrate wesentlich verringert. Das Ziel ist eine homogene Probenmorphologie, wie sie im eingefahrenen Zustand der Reaktorkammer erreicht wird (Abbildung 2.29e). Bei „guten“ Multiheterostrukturen erkennt man drei Wachstumsbereiche auf der Probe: die Mitte, der äußere Rand und ein Zwischenbereich lassen sich mit bloßem Auge voneinander abgrenzen (Abbildung 2.29g). Das Wachstumparameterfenster wird für DBR-Strukturen deutlich kleiner als für Einzelschichten. Es müssen mindestens zwei verschiedene Materialkompositionen bei gleichen Wachstumsbedingungen deponiert werden. Es kommt zu Verspannungen an den Grenzflächen der Einzelschichten durch Gitterfehlpassung. Bei dickeren Proben bilden sich dadurch Risse (*micro cracks*). Die meisten Risse entstehen im Zentrum der Probe, da hier die Spannung am größten ist. Vom Zentrum entfernt können Gitterfehler am Rand der Probe die Spannung abbauen. So kommt es, dass sich bei einigen DBR- und VCSEL-Proben Al-Tröpfchen in der Mitte gesammelt haben, weil das ankommende Material an Rissen „hängengeblieben“ ist. Am kühleren Rand kondensieren Ga-Tröpfchen. Lichtmikroskopische Aufnahmen und AFM-Bilder bestätigen, dass der morphologisch beste Bereich (keine Risse, geringste Oberflächenrauigkeit) der Multiheteroproben im Gradientengebiet zwischen der Mitte und dem Rand liegt. Optische Reflektionsmessungen liefern hier ebenfalls die besten Werte (Kapitel 6). Wandern die Wachstumparameter während sehr langer Prozesse, entstehen unbrauchbare Strukturen. Ein zu großer Al-Metallfluss sorgte bei der in Abbildung 2.29g gezeigten Probe für die extreme Metallisierung. Aber auch hier ist die strenge Dreiteilung der Probe in Mitte, Gradientengebiet und Rand zu beobachten, wenn auch der Rand deutlich mehr Raum einnimmt.

3 DBR-Design mittels spektroskopischer Ellipsometrie

Die spektroskopische Ellipsometrie (SE) nimmt ihre Anfänge bereits in der zweiten Hälfte des 19. Jahrhunderts [57,58]. Sie zeigte sich geeignet, alle Arten von Festkörpern, seien es Metalle, Isolatoren oder Halbleiter innerhalb der Eindringtiefe des verwendeten Lichts zu charakterisieren [59]. Besonders interessant ist die Möglichkeit, SE während der Materialherstellung bei verschiedenen epitaktischen Verfahren *in-situ* zu verwenden, um den Wachstumsprozess zu überwachen. In der vorliegenden Arbeit wurde jedoch zugunsten der präziseren *ex-situ* Untersuchung darauf verzichtet^a.

Die betrachteten GaN- und AlGaN-Halbleiterschichten sind bis zur Energie der Bandlücke transparent. In diesem Bereich lassen sich durch SE Informationen über alle aufgetragenen, epitaktischen Schichten einer Probe beibringen. Allerdings ergibt sich keine ein-eindeutige Zuordnung: Die erfassten Spektren müssen durch ein geeignetes Modell gefittet werden, was nicht unbedingt korrekte Werte physikalischer Größen liefern muss. Das ergibt sich aus der Tatsache, dass die meisten theoretischen Modelle Vereinfachungen voraussetzen, die nur in einfachen, sehr gut beherrschten Materialsystemen (z.B. Si, SiO₂) ohne wesentlichen Einfluss auf den Vergleich mit der Messung bleiben. Als Test für ein parametrisches Modell (z.B. Cauchy, Sellmeier [66,67]) wird zumeist die physikalische Schichtdicke der Struktur, die aus der optischen Weglänge bestimmt werden muss, genutzt. Stimmen Modell und Kontrollmessung (z.B. durch SEM) überein, darf dem Modell, bei nicht zu vielen Parametern, vertraut werden. Die Interpretation der Spektren, besonders bei den vorliegenden Multiheterostrukturen, bleibt somit schwierig.

Im weiteren soll zunächst das Messprinzip der SE dargelegt werden. Dann werden die verschiedenen, verwendeten Fitmodelle (Cauchy, Sellmeier, Tanguy) vorgestellt, und schließlich an Messungen beispielhaft die Kombination der Einzelschichtmodelle zu einem Multilagenmodell erläutert.

3.1 Messprinzip der spektroskopischen Ellipsometrie

In der Maxwell'schen Theorie der klassischen Elektrodynamik werden die elektrischen und damit optischen und magnetischen Eigenschaften eines Mediums durch die

^a Der Zusammenhang zwischen Messungen bei der hohen Wachstumstemperatur und Raumtemperatur ist wegen unterschiedlichen thermischen Verhaltens unterschiedlicher Materialien nicht trivial. Die Ellipsometerkalibrierung unter Vakuumbedingungen leidet unter der Bedampfung der notwendigen Viewports. Zudem müssen die Viewports selber in die Berechnung des Probenspektrums einbezogen werden.

materialabhängigen Größen dielektrische Funktion ε , magnetische Permeabilität μ und elektrische Leitfähigkeit σ beschrieben. Sie gehen in die Theorie über die Grundgleichungen

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\vec{B} \\ \vec{\nabla} \times \vec{H} &= \vec{j} + \vec{D} \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{D} &= \rho \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0\end{aligned}\tag{3.1}$$

und die Materialgleichungen

$$\begin{aligned}\vec{D} &= \varepsilon \varepsilon_0 \vec{E} \\ \vec{B} &= \mu \mu_0 \vec{H} \\ \vec{j} &= \sigma \vec{E}\end{aligned}\tag{3.2}$$

ein. Mit Blick auf die Anwendung in der Ellipsometrie reicht es aus, nichtmagnetische ($\mu=1$), isotrope Medien zu betrachten. Die dielektrische Funktion ist dann

$$\varepsilon(\lambda) = \varepsilon_1(\lambda) + i\varepsilon_2(\lambda).\tag{3.3}$$

Für ein Dielektrikum ist $\varepsilon_2 = 0$. Die Lösung der durch die Maxwell Gleichungen Gl.(3.1) gegebenen Wellengleichung ist

$$E(z, t) = E_0 e^{i(qz - \omega t)}, \quad \text{mit} \quad q = \frac{\omega n}{c_0} = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}.\tag{3.4}$$

Hier ist $c_0 = (\varepsilon_0 \mu_0)^{-1/2}$ die Phasengeschwindigkeit der transversal polarisierten, sich in z -Richtung ausbreitenden Welle im Vakuum, $c = c_0 (\varepsilon \mu)^{-1/2}$ die Phasengeschwindigkeit im Medium, $n = c_0 / c$ der Brechungsindex des Mediums und $\omega = 2\pi / \lambda$ die Kreisfrequenz der Welle mit Wellenlänge λ . Wird das Dielektrikum durch ein leitendes Medium ersetzt, verschwindet ε_2 nicht, und der Brechungsindex $\tilde{n} = n + ik$ muss zur Lösung der Gleichungen Gl.(3.1) komplex werden. Aus Gl.(3.4) wird

$$E(z, t) = E_0 e^{i(qz - \omega t)} e^{-\frac{\omega k}{c_0} z}.\tag{3.5}$$

Der Imaginärteil des Brechungsindex, k , heißt Extinktionskoeffizient und bestimmt, wie groß die Absorption des Mediums ist. Nach der Eindringtiefe d_p ist die Intensität einer einfallenden Lichtwelle auf e-ten Teil abgefallen:

$$d_p = \frac{\lambda}{4\pi k}.\tag{3.6}$$

Brechungsindex, Extinktionskoeffizient und dielektrische Funktion stehen über Gl.(3.2) und Gl.(3.4) in folgender Beziehung:

$$\begin{aligned}
 n &= \sqrt{\frac{1}{2} \left(\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} + \varepsilon_1 \right)} \\
 k &= \sqrt{\frac{1}{2} \left(\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} - \varepsilon_1 \right)} \\
 \varepsilon_1 &= n^2 - k^2 \\
 \varepsilon_2 &= 2nk.
 \end{aligned} \tag{3.7}$$

Der Polarisationszustand einer Welle nach Gl.(3.5) wird durch das Verhältnis der Realteile zweier orthogonaler Teilwellen ausgedrückt, in die sie sich zerlegen lässt:

$$\begin{aligned}
 \vec{E} &= \vec{E}_x + \vec{E}_y \\
 \text{Re}[\vec{E}_x] &= E_{x0} \cos(qz - \omega t) \\
 \text{Re}[\vec{E}_y] &= E_{y0} \cos(qz - \omega t + \Delta_{e.m.}).
 \end{aligned} \tag{3.8}$$

Die Polarisation der elektromagnetischen Welle beschreibt das Zeitverhalten der Orientierung des \vec{E} -Vektors an einem festen Ort. Aus Gl.(3.8) ergibt sich nach Entfernen der Zeitabhängigkeit

$$\frac{E_x^2}{E_{x0}^2} + \frac{E_y^2}{E_{y0}^2} - 2 \frac{E_x E_y}{E_{x0} E_{y0}} \cos \Delta_{e.m.} = \sin^2 \Delta_{e.m.}, \tag{3.9}$$

was eine gekippte Ellipse im Koordinatenursprung beschreibt. Für $\Delta_{e.m.}=0, \pi$ geht Gl.(3.9) in eine Gerade über, die Welle ist linear polarisiert; für $\Delta_{e.m.}=\pi/2, 3\pi/2$ ergibt sich eine Kreisgleichung, das Licht ist zirkular polarisiert. Die durch das Hauptachsenverhältnis definierte Elliptizität $e = \arctan b/a$ einer Ellipse ist hier gegeben durch

$$\psi_{e.m.} = \arctan \frac{E_{y0}}{E_{x0}}. \tag{3.10}$$

Der Polarisationszustand einer elektromagnetischen Welle lässt sich also vollständig mit den beiden als Ellipsometerwinkel bezeichneten Größen $\psi_{e.m.}$, hervorgehend aus dem Verhältnis der realen Amplituden der orthogonalen Zerlegung $\vec{E} = \vec{E}_x + \vec{E}_y$, und $\Delta_{e.m.}$, dem Phasenversatz zwischen \vec{E}_x und \vec{E}_y , beschreiben. Dividiert man die komplexen Amplituden

$$\frac{E_y}{E_x} = \tan \psi_{e.m.} \exp(i\Delta_{e.m.}) \tag{3.11}$$

erhält man eine vollständige Polarisationsdarstellung. Wird nun eine Lichtwelle an einer Grenzfläche reflektiert, ergibt sich der neue Polarisationszustand der reflektierten Welle aus der Multiplikation mit komplexen Reflexionskoeffizienten (Fresnel-Koeffizienten) r_p und r_s :

$$\begin{aligned} E_p^{\text{reflektiert}} &= r_p E_p^{\text{einfallend}} \\ E_s^{\text{reflektiert}} &= r_s E_s^{\text{einfallend}} \end{aligned} \quad (3.12)$$

Die Vektorenzerlegung nach Gl.(3.8) erfolgt dabei parallel und senkrecht zur Einfallsebene des Lichts. Ist $\vec{E}^{\text{einfallend}}$ bekannt und wird die Polarisation von $\vec{E}^{\text{reflektiert}}$ festgestellt, lässt sich

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \tan \psi \exp(i\Delta) \quad (3.13)$$

bestimmen [60]. Gl.(3.13) ist die Grundgleichung der Ellipsometrie. Analog zu Gl.(3.11) ist der Ellipsometerwinkel ψ ein Maß für die Änderung des Amplitudenquotienten. Δ gibt den Unterschied der Phase im Vergleich der elektromagnetischen Welle vor und nach der Reflektion an der Grenzfläche an. Die ellipsometrische Messgröße ρ beinhaltet also den Einfluss der untersuchten Probe auf die reflektierte Welle. Aus geeigneten Dispersionsmodellen für die Probe müssen nun die Reflexionskoeffizienten abgeleitet und mit der Messung verglichen werden.

Bei der SE wird nach Abbildung 3.1 durch den Polarisator im Winkel P zur Einfallsebene linear polarisiertes Licht unter einem gegebenen Einfallswinkel ϕ auf die zu untersuchende Oberfläche der Probe geleitet.

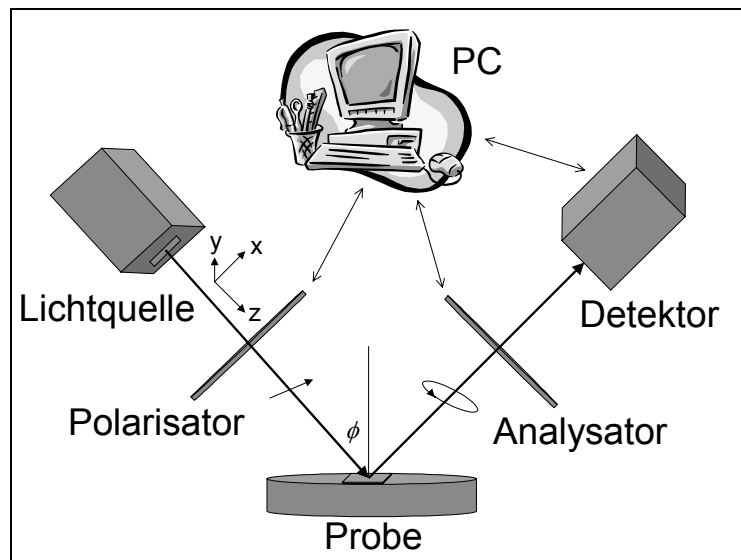


Abbildung 3.1. Ellipsometeraufbau: Der PC steuert den Polarisatorwinkel P , den Analysatorwinkel A (Winkel jeweils zwischen Polarisationsrichtung des Polarisators/Analysators und y -Achse) und liest das Siliziumdetektorarray aus. Das Koordinatensystem ist entlang des Lichtweges mit Einfallswinkel ϕ gewählt. Der i.A. elliptische Polarisationszustand des von der Probe reflektierten Lichts wird mit Hilfe des rotierenden Analysators bestimmt.

Die Polarisation und Intensität des dann i.A. elliptisch polarisierten, reflektierten Lichts wird durch einen Analysator (Polarisator im Winkel A zur Einfallsebene) und Detektor aufgenommen, und der Quotient der Fresnel-Koeffizienten $\rho=r_p/r_s$ in Abhängigkeit von der Lichtwellenlänge λ bestimmt. Die Änderung der Polarisation hängt von den optischen Eigenschaften der untersuchten Probe ab.

Bei dem verwendeten Sentech SE800 handelt es sich um ein photometrisches Ellipsometer mit rotierendem Analysator im PSSA- (*polarizer, sample, step scan analyzer*) Betrieb [61]. Der Messvorgang lässt sich daher wie folgt beschreiben. Beliebige polarisiertes Licht wird durch den vierkomponentigen Stokes-Vektor \vec{S} dargestellt:

$$\vec{S} = \begin{pmatrix} I_0 \\ I_x - I_y \\ I_{\frac{\pi}{4}} - I_{-\frac{\pi}{4}} \\ I_r - I_l \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix}. \quad (3.14)$$

Dabei ist $I_0 = |\vec{E}|^2$ die Gesamtintensität der betrachteten Lichtwelle. I_x und I_y sind die Intensitäten in den Richtungen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung z , $I_{\pi/4}$ und $I_{-\pi/4}$ die Intensitäten in Ebenen $\pm 45^\circ$ gedreht zur x -Achse, und schließlich I_r und I_l Intensitätsanteile der rechts- oder linksorientierten, zirkularen Polarisation. Der Grad der Polarisation des Lichtes wird nach

$$p = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}}{S_0} \quad (3.15)$$

definiert. Für unpolarisiertes Licht ist $p=0$, für vollständig polarisiertes Licht ist $p=1$. Der hinter der Lichtquelle (75 W Xenon-Lampe) des Ellipsometers im Winkel $P=45^\circ$ zur Einfallsebene angebrachte Glan-Taylor-Kalkspatpolarisator erzeugt idealerweise einen um 45° zur x -Richtung gekippten, polarisierten Stokes-Vektor

$$\vec{S} = I_0 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (3.16)$$

Diese Lichtwelle trifft auf die Probe und wird entsprechend deren durch die Ellipsometerwinkel gegebenen Polarisationseigenschaften über die Mueller-Matrix^b

^b Die Matrix ergibt sich aus Gl.(3.12) und Gl.(3.13) bei Anwendung auf das Quadrat des Wellenvektors in der durch den Stokes-Vektor Gl.(3.14) vorgegebenen Zerlegung.

$$S^M = \begin{pmatrix} 1 & -\cos 2\psi & 0 & 0 \\ -\cos 2\psi & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sin 2\psi \cos \Delta & \sin 2\psi \sin \Delta \\ 0 & 0 & -\sin 2\psi \sin \Delta & \sin 2\psi \cos \Delta \end{pmatrix} \quad (3.17)$$

beeinflusst. Die wellenlängenabhängigen Ellipsometerwinkel $\psi(\lambda)$ und $\Delta(\lambda)$ sind das Ergebnis der Messung. Die Messung wird ausgeführt, indem bei verschiedenen Drehwinkeln A des Analysatorkristalls relativ zur Einfallsebene die Intensität des vom Detektor aufgenommenen Lichts im Spektralbereich festgestellt wird. Der Effekt des Analysatorkristalls auf den Stokes-Vektor wird beschrieben durch die Mueller-Matrix des linear polarisierenden Glan-Taylor-Kalkspats A^M , die von den den Analysatorwinkel A berücksichtigenden Mueller-Drehmatrizen eingefaßt ist:

$$D_{-A}^M A^M D_A^M = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos 2A & -\sin 2A & 0 \\ 0 & \sin 2A & \cos 2A & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.18)$$

$$\times \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos 2A & \sin 2A & 0 \\ 0 & -\sin 2A & \cos 2A & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Natürlich kann auch der Polarisatorwinkel P frei eingestellt werden. Dies geschieht nicht während einer Messung, kann aber im Rahmen der Justierung zu einem besseren Signalkontrast führen, da senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht besser, d.h. mit größerer Intensität, reflektiert wird als in x -Richtung polarisiertes Licht. Die gesamte Wirkung der Komponenten Polarisator, Probe und Analysator auf das von der Lichtquelle stammende, unpolarisierte Licht, das durch den Stokes-Vektor $\vec{S}_0 = (I_{Quelle}, 0, 0, 0)$ repräsentiert wird, ist

$$\vec{S}_d = D_{-A}^M A^M D_A^M S^M D_{-P}^M A^M D_P^M \vec{S}_0. \quad (3.19)$$

Da der Detektor nicht polarisationsempfindlich ist, wird die durch die erste Komponente des Vektors \vec{S}_d gegebene Intensität gemessen. Berechnung von Gl.(3.19) führt auf

$$S_{d0}(A) \propto 1 - \cos 2\psi \cos 2P + \cos 2A(\cos 2P - \cos 2\psi) + \sin 2A \sin 2P \sin 2\psi \cos \Delta. \quad (3.20)$$

Mit Hilfe der Fourier-Zerlegung^c

^c Die ellipsometrische Messung ist nur von der relativen Intensität \vec{S}_d / I_0 abhängig. Die Stabilität der Lichtquelle ist für die Datenerfassung nicht entscheidend.

$$S_{a_0}(A) = I_0(1 + a_2 \cos 2A + b_2 \sin 2A) \quad (3.21)$$

kann über deren Koeffizienten

$$a_2 = \frac{-\cos 2\psi + \cos 2P}{\tan^2 \psi \cos^2 P + \sin^2 P - \cos 2\psi \cos 2P} \quad (3.22)$$

$$b_2 = \frac{\sin 2\psi \sin 2P \cos \Delta}{\tan^2 \psi \cos^2 P + \sin^2 P - \cos 2\psi \cos 2P}$$

die effektive dielektrische Funktion der Probe ermittelt werden. Aus geometrischen Überlegungen ergibt sich der Zusammenhang der Fourier-Koeffizienten a_2 und b_2 der gemessenen Intensität mit dem Kippwinkel Q (Abbildung 3.2) der vom Detektor aufgenommenen Ellipse [62]:

$$Q = \frac{1}{2} \arctan\left(\frac{b_2}{a_2}\right) + \frac{\pi}{2} \Theta(-a_2) \text{sign}(b_2). \quad (3.23)$$

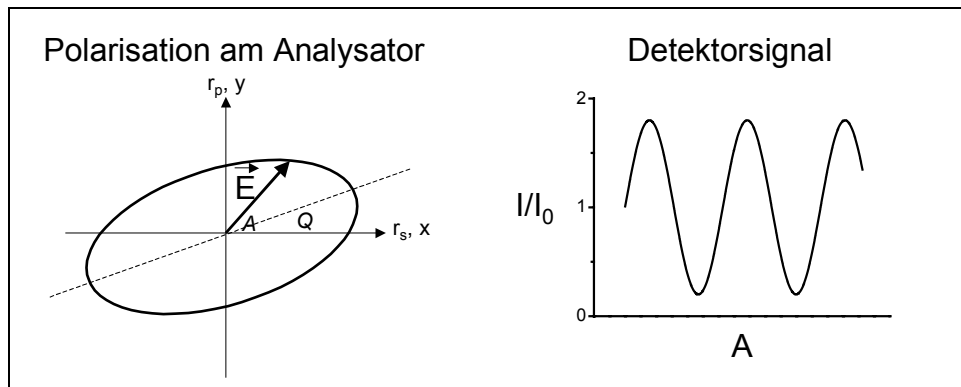


Abbildung 3.2. Während der Analysatorrotation (Winkel A) wird das Quadrat des Vektors \vec{E} am Detektor gemessen. Aus der Position der Maxima und Minima der aufgenommenen Intensitätskurve lassen sich die Positionen der Hauptachsen der Polarisationsellipse und damit der Kippwinkel Q bestimmen.

$\Theta(x)$ ist die Heavyside-Funktion, $\text{sign}(x)$ hat den Betrag 1 und übernimmt das Vorzeichen des Arguments. Nun lässt sich wieder mit Blick auf die Ellipsengeometrie der Quotient der Ellipsenhauptachsen (kleine Halbachse/große Halbachse) r_{ab} durch die Fourier-Komponenten a_2 und b_2 ausdrücken:

$$r_{ab} = \frac{\sqrt{1 - a_2^2 - b_2^2}}{1 + \sqrt{a_2^2 + b_2^2}}. \quad (3.24)$$

Sind Kippwinkel Q und Hauptachsenverhältnis r_{ab} der Ellipse bekannt, kann man das Verhältnis der bezüglich der Einfallsebene parallelen und senkrechten Komponenten der Reflektivitäten ρ unter Berücksichtigung des vorgegebenen Polarisatorwinkels P angeben:

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \frac{\cot Q - ir_{ab}}{1 + ir_{ab} \cot Q} \tan P. \quad (3.25)$$

Beim Vergleich mit Gl.(3.13) wird klar, dass es sich um eine alternative Ausdrucksweise zu den Ellipsometerwinkeln handelt. Es interessiert hier jedoch nur die Messgröße ρ . Über die Fresnel-Gleichungen [63]

$$r_s^2 = \left(\frac{\cos \phi - \sqrt{\langle \varepsilon \rangle - \sin^2 \phi}}{\cos \phi + \sqrt{\langle \varepsilon \rangle - \sin^2 \phi}} \right)^2$$

$$r_p^2 = \left(\frac{\langle \varepsilon \rangle \cos \phi - \sqrt{\langle \varepsilon \rangle - \sin^2 \phi}}{\langle \varepsilon \rangle \cos \phi + \sqrt{\langle \varepsilon \rangle - \sin^2 \phi}} \right)^2 \quad (3.26)$$

hängt die, durch die dielektrischen Funktionen der Einzelschichten bestimmte, effektive dielektrische Funktion $\langle \varepsilon(\lambda) \rangle$ der untersuchten Probe von der Messgröße $\rho(\lambda)$ und dem Einfallswinkel ϕ ab:

$$\langle \varepsilon(\lambda) \rangle = \sin^2 \phi + \sin^2 \phi \tan^2 \phi \left(\frac{1 - \rho(\lambda)}{1 + \rho(\lambda)} \right)^2. \quad (3.27)$$

Wie mit Gl.(3.7) gezeigt, hängt der komplexe Brechungsindex $\tilde{n}^2 = \varepsilon(\lambda) = (n + ik)^2$ mit der dielektrischen Funktion eines gegebenen Materials zusammen. Ziel der Spektrens simulation der Ellipsometrie ist neben der jetzt bestimmten Dispersion (n und k) für die epitaktischen Einzelschichten aber auch die Bestimmung der Dicke der Schichten, aus denen die Probe aufgebaut ist.

3.2 Theorie der Spektrens simulation

In den vorigen Abschnitten wurde der prinzipielle Zusammenhang zwischen optischen Parametern der Probe und Meßgrößen des Ellipsometers dargelegt. Solange es sich um eine unendlich dicke, einkristalline Probe mit perfekter Oberfläche handelt, ist die durch die Messung nach Gl.(3.27) gefundene, effektive dielektrische Funktion gleich derjenigen des Materials der Probe. Das Vorhandensein von Oberflächenrauigkeit, nicht reinem Material sowie Materialübergänge bei Multiheterostrukturen mit endlicher Schichtdicke komplizieren den Verlauf der dielektrischen Funktion und machen eine genauere Betrachtung notwendig. Es muss ein Modell der Probe gefunden werden, das über eingegebene Parameter den Verlauf der effektiven dielektrischen Funktion nachzeichnet. Dann muss aus diesen Parametern auf den physikalischen Aufbau der Einzelschichten geschlossen werden können, und Dispersionsrelationen für die Einzelschichten und deren Dicken bestimmt werden. In einem

fortgeschrittenen Fit sollten auch die genannten Inhomogenitäten nachmodelliert werden können.

3.2.1 Modellierung eines Schichtstapels

Entspräche die effektive dielektrische Funktion nach Gl.(3.27) der tatsächlichen, handelte es sich also um ein halbumendliches, homogenes Medium, ließe sich die dielektrische Funktion mit nur einer Fitfunktion beschreiben. In der Regel findet man jedoch Multiheterostrukturen vor. Zunächst betrachte man aber ein Einschichtmodell. Die Fresnel-Koeffizienten aus Gl.(3.26) lassen sich so darstellen^d:

$$\begin{aligned} r_{01s} &= \frac{\tilde{n}_0 \cos \phi_0 - \tilde{n}_1 \cos \phi_1}{\tilde{n}_0 \cos \phi_0 + \tilde{n}_1 \cos \phi_1} \\ r_{01p} &= \frac{\tilde{n}_1 \cos \phi_0 - \tilde{n}_0 \cos \phi_1}{\tilde{n}_1 \cos \phi_0 + \tilde{n}_0 \cos \phi_1}. \end{aligned} \quad (3.28)$$

Dies sind die komplexen Reflexionskoeffizienten für die Reflexion an einer Oberfläche des semi-infiniten Mediums 1 an der Grenze zum semi-infiniten Medium 0. Der Brechungswinkel ϕ_1 kann nach Snellius^e durch das Verhältnis der Brechungsindizes der Grenzmedien ausgedrückt werden. ϕ_0 ist der durch das Ellipsometer vorgegebene Einfallswinkel. Wird jetzt eine Schicht endlicher Dicke zwischen die semi-infiniten Medien eingefügt, gibt es neben der einfachen Reflexion an der Oberfläche auch unendlich viele Reflexionen von der Unterseite der eingefügten Schicht. Die Summation der Teilwellen führt auf eine geometrische Reihe. Die Reflexionskoeffizienten $r_{tot,s/p}$ des Einschichtsystems sind dann

$$\begin{aligned} r_{tot,s} &= \frac{r_{01s} + r_{12s} \exp\left(-i2 \frac{2\pi}{\lambda} d_1 \sqrt{\tilde{n}_1^2 - \tilde{n}_0^2 \sin^2 \phi_0}\right)}{1 + r_{01s} r_{12s} \exp\left(-i2 \frac{2\pi}{\lambda} d_1 \sqrt{\tilde{n}_1^2 - \tilde{n}_0^2 \sin^2 \phi_0}\right)} \\ r_{tot,p} &= \frac{r_{01p} + r_{12p} \exp\left(-i2 \frac{2\pi}{\lambda} d_1 \sqrt{\tilde{n}_1^2 - \tilde{n}_0^2 \sin^2 \phi_0}\right)}{1 + r_{01p} r_{12p} \exp\left(-i2 \frac{2\pi}{\lambda} d_1 \sqrt{\tilde{n}_1^2 - \tilde{n}_0^2 \sin^2 \phi_0}\right)}. \end{aligned} \quad (3.29)$$

^d In dieser Form zeigen die Winkel ϕ den Zusammenhang mit der Ableitung der Reflexionskoeffizienten von den Grenzflächenbedingungen der Maxwell'schen Feldvektoren an (Stetigkeit der Normalkomponenten von \vec{D} und \vec{B} , Stetigkeit der Tangentialkomponenten von \vec{E} und \vec{H}).

^e $n_j \sin \phi_j = n_{j+1} \sin \phi_{j+1}$

Die physikalische Schichtdicke d_l geht periodisch ein, weil der Term $d_l \sqrt{\tilde{n}_1^2 - \tilde{n}_0^2 \sin^2 \phi_0}$ im Argument der Exponentialfunktionen in Gl.(3.29) nur bis auf ein Vielfaches von $\lambda/2$ bestimmt ist. Für einen Fit muss also ein Schätzwert für die Schichtdicke vorliegen. Werden weitere Schichten eingefügt, wird der Übergang zu einem Matrixformalismus sinnvoll, der aus Gl.(3.28) und (3.29) abgeleitet werden kann [60,64]. Für jede neu eingeschobene Schicht gibt es wiederum unendlich viele Reflexionen, die die Multiplikation mit einer neuen geometrischen Reihe nötig machen. Diese vielfache Multiplikation kann mit einem Matrizenprodukt ausgeführt werden. Ein Stapel mit N Schichten ergibt zwischen den beiden semi-infiniten Medien die Faktoren [60]

$$M_{p/s} = \prod_{j=0}^N M_{j,p/s} = \begin{pmatrix} m_{11p/s} & m_{12p/s} \\ m_{21p/s} & m_{22p/s} \end{pmatrix} \quad (3.30)$$

jeweils für parallel (p) und senkrecht (s) zur Einfallrichtung polarisierte Reflektivitäten. Jede Matrix M_j in Gl.(3.30) beschreibt eine Reflexion an einem Materialübergang von Schicht $j-1$ zu Schicht j :

$$M_{j,p} = \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n}_j d_j \cos \phi_j\right) & i \frac{\cos \phi_j}{\tilde{n}_j} \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n}_j d_j \cos \phi_j\right) \\ i \frac{\tilde{n}_j}{\cos \phi_j} \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n}_j d_j \cos \phi_j\right) & \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n}_j d_j \cos \phi_j\right) \end{pmatrix} \quad (3.31)$$

$$M_{j,s} = \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n}_j d_j \cos \phi_j\right) & \frac{i}{\tilde{n}_j \cos \phi_j} \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n}_j d_j \cos \phi_j\right) \\ i \tilde{n}_j \cos \phi_j \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n}_j d_j \cos \phi_j\right) & \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda} \tilde{n}_j d_j \cos \phi_j\right) \end{pmatrix}$$

Man beachte, dass die Absorption der einzelnen Schichten des Stapels über den komplexen Brechungsindex $\tilde{n} = n + ik$ berücksichtigt ist. Weiterhin hängt M_j vom jeweiligen Einfallswinkel ϕ_j des Lichts an der Grenzfläche von Schicht $j-1$ zu Schicht j , der optischen Weglänge durch die Schicht $n_j d_j \cos \phi_j$, sowie der gewählten Wellenlänge λ ab. Der wichtige Fitparameter d_j gibt wieder die physikalische Schichtdicke an.

Nun müssen noch die umgebenden Medien des Schichtstapels berücksichtigt werden und man kommt zurück auf Gl.(3.28) mit Luft mit Brechungsindex \tilde{n}_0 an der oberen Seite, und das als unendliche Halbebene angenommene Substrat mit Brechungsindex \tilde{n}_s an der Unterseite. Die Fresnel-Koeffizienten sind dann mit den Komponenten der Matrizenmultiplikation gegeben mit [60,64]:

$$r_p = \frac{m_{11p} \frac{\tilde{n}_0}{\cos \phi_0} - m_{22p} \frac{\tilde{n}_s}{\cos \phi_s} + m_{12p} \frac{\tilde{n}_0}{\cos \phi_0} \frac{\tilde{n}_s}{\cos \phi_s} - m_{21p}}{m_{11p} \frac{\tilde{n}_0}{\cos \phi_0} + m_{22p} \frac{\tilde{n}_s}{\cos \phi_s} + m_{12p} \frac{\tilde{n}_0}{\cos \phi_0} \frac{\tilde{n}_s}{\cos \phi_s} + m_{21p}} \quad (3.32)$$

$$r_s = \frac{m_{11s} \tilde{n}_0 \cos \phi_0 - m_{22s} \tilde{n}_s \cos \phi_s + m_{12s} \tilde{n}_0 \cos \phi_0 \tilde{n}_s \cos \phi_s - m_{21s}}{m_{11s} \tilde{n}_0 \cos \phi_0 + m_{22s} \tilde{n}_s \cos \phi_s + m_{12s} \tilde{n}_0 \cos \phi_0 \tilde{n}_s \cos \phi_s + m_{21s}}. \quad (3.33)$$

Für jede Wellenlänge λ gibt es 2 Meßparameter (die äquivalenten Paare ψ, Δ ; a_2, b_2 ; r_p, r_s). Für einfache, isotrope Medien mit konstantem Brechungsindex n und konstantem Extinktionskoeffizienten k würden also bei N Schichten $N+2$ Meßpunkte ausreichen^f. Reale n und k sind jedoch Funktionen der Wellenlänge λ . Deshalb muss durch parametrisierte Fitfunktionen die Anzahl der zu bestimmenden Variablen reduziert werden.

3.2.2 Optische Dispersion nach dem Tanguy-Modell

Gehen wir zunächst von nur einer epitaktischen Schicht auf einem Substrat aus, z.B. GaN auf Saphir. Im aufgenommenen Spektrum nach Abbildung 3.3 erkennt man unterhalb der Bandkante Schichtdickenoszillationen, oberhalb der Bandkante jedoch einen deutlich gedämpften Verlauf.

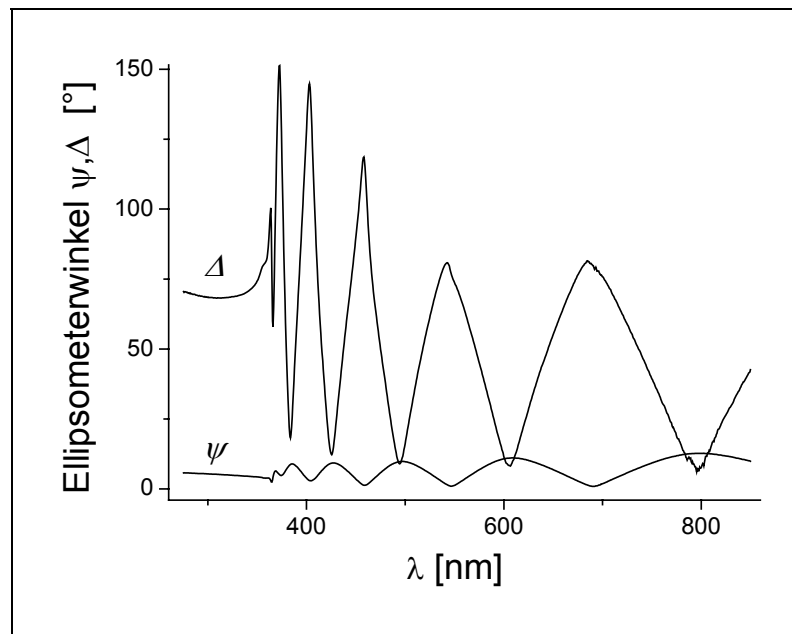


Abbildung 3.3. Typisches Spektrum einer GaN Einzelschicht auf Saphir. Die Schichtdickenoszillationen im langwelligen, transparenten Bereich enden abrupt an der Bandkante.

^f n, k für die Nullte bis N te Schicht und n, k des Substrats ergeben $2N+4$ Unbekannte. Diese können mit $N+2$ Meßpunkten mal 2 Datenpunkten bestimmt werden.

Die Eindringtiefe des Lichts von nur einigen nm lässt oberhalb der Bandkante keine Reflexion an der GaN/Saphir Grenzschicht zu. Dadurch wird die Ellipsometrie bei absorbierenden Medien sehr stark oberflächensensitiv. Dünne Oxidfilme können die Messung in diesem Bereich verfälschen bzw. müssen im Fitmodell berücksichtigt werden. Um Oberflächenoxide weitmöglichst zu vermeiden, sind Messungen im Rahmen dieser Arbeit unmittelbar nach Entnahme der Proben aus der Vakuumkammer durchgeführt worden. Die Meßzeit von ca. 1 min ist schnell genug um eine Momentaufnahme der fortschreitenden Oxidation zu machen[§]. Die GaN (AlGaN-) Oberfläche verändert sich an Luft jedoch zügig (Abbildung 3.4).

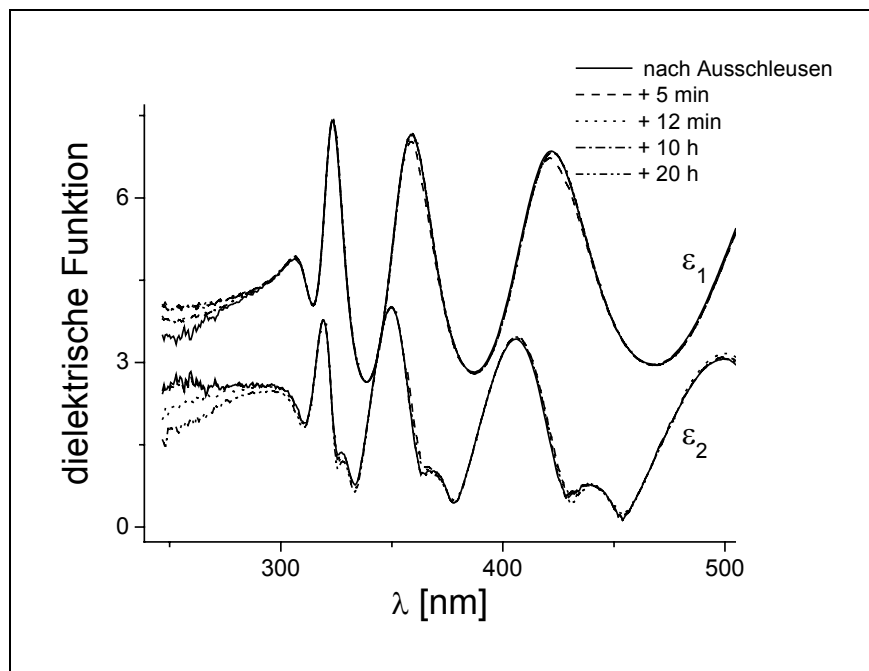


Abbildung 3.4. Zeitliche Veränderung der effektiven dielektrischen Funktion einer AlGaN-Schicht ($E_g=4,05$ eV) nach dem Ausschleusen aus der Vakuumkammer. Oberhalb der Bandkante ist die Eindringtiefe des Lichts sehr gering; der starke Einfluss des sich bildenden, dünnen Oxids ist deutlich sichtbar. Unterhalb der Bandkante wird das ganze Volumen des Kristalls vermessen. Es gibt nahezu keine Veränderung.

Dispersionsrelationen haben die Aufgabe, den Verlauf $\tilde{n}(\lambda)$ zu parametrisieren, um so das eigentliche Fitten der aufgenommenen Spektren zu ermöglichen. Dabei werden die Parameter des Dispersionsmodells den gemessenen Gegebenheiten angepaßt. Es gibt viele unterschiedliche Modelle für transparente und absorbierende Medien [65]. Es sollen hier nur die wichtigsten angewandten Modelle vorgestellt werden: das weit verbreitete Cauchy-

[§] Beim Durchfahren des Spektrums kommt es nicht zu einer dickeren oder dünneren Oxidmessung für verschiedene Wellenlängen.

Modell, das Sellmeier-Modell für transparente Schichten und das deutlich aufwendigere Tanguy-Modell für die Einbeziehung der Absorption an und oberhalb der Bandlücke.

Cauchy-Modell

Die bekannteste unter den Dispersionsbeziehungen ist das Cauchy-Modell, bei dem n mit einem Polynom 4. Ordnung mit geraden Potenzen genähert wird. Das Polynom

$$n(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^2} + \frac{C}{\lambda^4} \quad (3.34)$$

ist eine rein empirische Näherung des Brechungsindex. Im transparenten Bereich des Spektrums ist das Cauchy-Modell geeignet, die Schichtdicken innerhalb der betrachteten Probe zu bestimmen. Eine mögliche Ergänzung durch die Absorptionsbeschreibung [66]

$$k(\lambda) = k_0 e^{\beta \left(\frac{1}{\lambda} + \frac{1}{\lambda_0} \right)} \quad (3.35)$$

liefert für die vorliegenden Proben jedoch nur unbefriedigende Ergebnisse.

Sellmeier-Modell

Die Sellmeier-Dispersionsrelation wurde bei AlN-Schichten angewendet. Die Bandkante liegt mit 6,12 eV deutlich über der Meßgrenze von ~4,5 eV des Ellipsometers. Einflüsse der Bandkantenabsorption sind im Meßbereich vernachlässigbar und die AlN Schichten werden deshalb als transparent angenommen. Der Extinktionskoeffizient k ist Null. Der Brechungsindex n wird mit

$$n^2(\lambda) = A + B \frac{\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_0^2} \quad (3.36)$$

beschrieben [67]. Das ist die Beschreibung eines Oszillators mit Resonanzfrequenz λ_0 und Stärke B . Die Summe $A + B = n_\infty^2$ entspricht wegen Gl.(3.7) der dielektrischen Konstanten ε_∞ im niederenergetischen Limit. Auch das Sellmeier-Modell ließe sich theoretisch um Gl.(3.35) ergänzen, was jedoch für AlN ebenfalls nicht sinnvoll ist.

Tanguy-Modell

Die Dispersionsrelation nach Tanguy ist wegen der Berücksichtigung der Absorption oberhalb der Bandkante ungleich komplizierter als die Sellmeier-Formel Gl.(3.36) und wurde in dieser Arbeit erstmals für den Dispersionskurvenfit von AlGaN und GaN verwendet. Die Herleitung der Tanguy Formel soll hier nachgezeichnet werden, um zu zeigen, dass physikalische Grundlagen und nicht empirische Vorgaben das Modell bestimmen [68,69].

Wir gehen aus von der bekannten Kramers-Kronig-Relation (KKR) für die dielektrische Funktion $\varepsilon(E) = \varepsilon_1(E) + i\varepsilon_2(E)$ in Form eines komplexen Cauchy-Hauptwertintegrals mit Hauptwert Ξ [70]

$$\varepsilon_1(E) - 1 = \frac{2}{\pi} \Xi \int_0^{\infty} \frac{dE' E' \varepsilon_2(E')}{E'^2 - E^2}. \quad (3.37)$$

Die Beiträge zum KKR-Integral lassen sich nach Stern [71] in drei, nach Energieregionen unterschiedene, Bestandteile aufteilen:

$$\varepsilon_1 - 1 = \varepsilon_{1, \text{Reststrahlen}} + \varepsilon_{1, \text{Bandkante}} + \varepsilon_{1, \text{fundamental}}. \quad (3.38)$$

Der erste Summand, $\varepsilon_{1, \text{Reststrahlen}}$, beschreibt die Absorption durch Gitterschwingungen im fernen Infrarot. Für den betrachteten sichtbaren bis ultravioletten (VIS-UV) Meßbereich darf dieser Beitrag im Bereich 10^{-3} vernachlässigt werden. Der zweite Summand, $\varepsilon_{1, \text{Bandkante}}$, beinhaltet Absorptionsbeiträge an der Bandkante am kritischen Punkt M_0 durch direkten Übergang (E_g) und Übergänge mit *spin-orbit-splitting* ($E_g + \Delta_0$). Zusätzlich sind excitonische Übergänge zu beachten. Innerhalb von Halbleitern mit relativ großer Bandlücke, wie die betrachteten, werden Excitonen am sinnvollsten durch schwach gebundene Elektron-Loch-Paare, sogenannte Wannier-Excitonen, beschrieben. Die vorgenannten Vorgänge werden im Rahmen des Kane-Formalismus zur Berechnung der Halbleiterbandstruktur erfaßt [72]. Der isotrope (8x8) $\vec{k} \cdot \vec{p}$ -Kane-Hamilton-Operators beinhaltet dabei sowohl die üblichen semiempirischen $\vec{k} \cdot \vec{p}$ -Vorgaben als auch die durch den Parameter Δ_0 gekennzeichnete Spin-Bahn-Wechselwirkung. C. Tanguy hat nun auf der Grundlage eines isotropen Mediums in der effektiven Massen-Näherung bei parabolischen Bändern unter Einschluß von Spin-Bahn-Wechselwirkung und Wannier-Excitonenabsorption die Bandkantenabsorption hergeleitet. Für Details sei auf Ref. [68] verwiesen. Die dielektrische Teilfunktion $\varepsilon_{1, \text{Bandkante}}$ lautet

$$\varepsilon_{\text{Bandkante}}(E) = \frac{A\sqrt{R}}{(E + i\Gamma)^2} \{g[\xi(E + i\Gamma)] + g[\xi(-E - i\Gamma)] - 2g[\xi(0)]\} \quad (3.39)$$

mit den Definitionen

$$g[\xi] = 2 \ln \xi - 2\pi \cot(\pi\xi) - 2\psi(\xi) - \frac{1}{\xi}, \quad (3.40)$$

wobei $\psi(z) = \frac{d}{dz} \ln \Gamma(z)$ die Digamma-Funktion ist, und

$$\xi(z) = \sqrt{\frac{R}{E_g - z}}. \quad (3.41)$$

In Gl.(3.39) und Gl.(3.41) ist R die Rydbergkonstante (Bindungsenergie) des Exzitons in Elektronenvolt (eV). Der Zusatz $i\Gamma$ zur Elektronenenergie E als Argument von ξ führt eine Energieniveaubreiterung (*energy broadening*) ein, die ebenfalls in eV bemessen wird. Der Vorfaktor

$$A = \frac{2\pi q^2}{\epsilon_0 \hbar^3} (2\mu)^{\frac{3}{2}} P^2 \quad (3.42)$$

beinhaltet die reduzierte Exzitonenmasse $\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h}$ in welche die effektiven, isotropen Elektronen- und Lochmassen m_e und m_h des $\vec{k} \cdot \vec{p}$ -Ansatzes eingehen. Außerdem ist A proportional zum Quadrat des Kane-Impulses P des Elektrons im Einelektronenbändermodell. In Richtung der Symmetrieachse des zu modellierenden Schichtstapels (c-Achse des Kristalls) gilt

$$P^2 = \left| -i \frac{\hbar}{m_0} \langle hcb | p_z | vb \rangle \right|^2. \quad (3.43)$$

Die Wellenvektoren $|hcb\rangle$ und $|vb\rangle$ geben Zustände im *higher conduction band* bzw. *valence band* wieder. Der Kane-Impuls beschreibt also die Wechselwirkung zwischen einem Elektron im Valenzband und Leitungsbändern jenseits der Bandkante. Der Parameter A geht in das Tanguy-Modell mit der Einheit (eV)^{3/2} ein.

Die dritte Komponente der dielektrischen Funktion nach Gl.(3.38) beschreibt die fundamentale Absorption bei hohen Energien jenseits der Bandkante. Mit diesem Umstand vereinfacht sich das zuvor komplexe KKR-Integral Gl.(3.37) zu

$$\epsilon_{1,fundamental}(E) = \frac{2}{\pi} \int_{E_m}^{\infty} \frac{dE' E' \epsilon_{2,fundamental}(E')}{E'^2 - E^2}, \quad (3.44)$$

wobei $E_m \gg E_g$. Damit verschwindet die Polstelle des Integrals, da lediglich der Beitrag der dielektrischen Funktion im Bereich der Bandkante und darunter betrachtet werden soll ($E_g \approx E$ bzw. $E_g \geq E$). Es kann gezeigt werden, dass das Integral Gl.(3.44) mit Hilfe von Padé Approximationen [73] der Form

$$\epsilon_{1,fundamental}(E) = \sum_{i=1}^N \frac{a_i}{b_i - E^2} \quad (3.45)$$

gelöst werden kann, wobei alle a_i, b_i reell und positiv sind und in (eV)² angegeben werden. Wird die gleiche Genauigkeit 10^{-3} verlangt wie zu Beginn bei der Vernachlässigung des Infrarotterms $\epsilon_{1,Reststrahlen}$, kann man sich auf den ersten Summanden von Gl.(3.45)

beschränken. Beachtet man nun, dass $E^2 = \hbar^2 \left(\frac{2\pi c}{\lambda} \right)^2$, wobei c die Lichtgeschwindigkeit ist,

hat man durch Vergleich mit Gl.(3.36) bis auf die dortige Konstante A eine Variante der üblichen Sellmeier-Formel gefunden^h. Insgesamt ist der Realteil der dielektrischen Funktion

$\varepsilon_1 = 1 + \varepsilon_{1,\text{fundamental}} + \varepsilon_{1,\text{Bandkante}}$ damit

$$\varepsilon_1(E) = 1 + \frac{a}{b - E^2} + \frac{A\sqrt{R}}{(E + i\Gamma)^2} \{g[\xi(E + i\Gamma)] + g[\xi(-E - i\Gamma)] - 2g[\xi(0)]\}. \quad (3.46)$$

Über die KKR Gl.(3.37) lässt sich der Imaginärteil berechnen. Damit sind nach Gl.(3.7) auch Brechungsindex n und Extinktionskoeffizient k der modellierten Schicht festgelegt. Die für den Fit notwendigen Parameter sind die Oszillatorposition \sqrt{b} und Oszillatorstärke \sqrt{a} der fundamentalen Absorption, der dem Quadrat des Kane-Impulses proportionale Faktor A , die Exzitonenbindungsenergie R , die Energieniveaubreiterung Γ und die Bandkantenenergie E_g . Bis auf das *energy-level-broadening* und die Oszillatorstärke sind diese Parameter der Messung außerhalb der SE zugänglich. Es wird sich zeigen, dass die erzielten Resultate teilweise deutlich von den Literaturvorgaben abweichen. Das liegt an den Annahmen des Modells, die sich im hexagonalen (eben nicht isotropen), noch produktionsbedingt nicht idealem GaN/AlGaN Materialsystem nicht unbedingt aufrecht erhalten lassen. Das Tanguy-Modell wird dennoch zum Fitten der vorliegenden SE Spektren herangezogen, da indirekte Aussagen über die Materialqualität an der Abweichung der Parameter von den wirklichen physikalischen Größen abgelesen werden können. Einem rein parametrischen Modell ohne physikalischen Bezug, wie es teilweise in der Literatur Anwendung gefunden hat [87,89,90], fehlt trotz korrekter Dispersionsspektren dieser Vorzug, und es mangelt auch an der Anschaulichkeit des Fits.

3.2.3 Probeninhomogenität

Mit der Sellmeier-Formel nach Gl.(3.36) lässt sich die optische Dispersion isotroper, transparenter Schichten modellieren. In der vorliegenden Arbeit wurde die Sellmeier-Formel für AlN verwendet. Mit dem Tanguy-Modell nach Gl.(3.46) kann man die optische Dispersion eines isotropen Halbleiters mit schwach gebundenen Wannier-Exzitonen

^h In der Tat ist die Padé Approximation der KKR der mathematische Grund dafür, warum im transparenten Bereich des SE Spektrums eine Superposition von Oszillatoren nach Gl.(3.45) anwendbar ist. Mehrere Interpretationen des Padé Spektrums wie der Drude-Lorentz Oszillator, der Leng-Lorentz Oszillator oder eben die Sellmeier-Formel lassen sich als eigenständige Fitmodelle finden [65].

nachbilden. Der Tanguy-Fit wurde für GaN- und AlGaIn-Schichten verwendet. Das Substrat, Saphir, wurde mit Dispersionssmessdaten $n(\lambda)$, $k(\lambda)$ eines unbedampften Wafers in die Simulation eingebracht. Die Verknüpfung der Eigenschaften der Schichten zu einem gemeinsamen SE-Spektrum geschieht wie in Abschnitt 3.2.1 beschrieben. Ein idealer Schichtstapel kann also simuliert werden. Nicht berücksichtigt sind bisher allerdings Oberflächenrauigkeit, Grenzflächenrauigkeiten, Schichtdickenvariationen, spektrales Auflösungsvermögen des Ellipsometers, Materialeinschlüsse oder chemische Mischung. Auch diese Fälle können in die Spektrensimulation mit einbezogen werden.

Effektive Medien

Rauigkeiten und Materialmischungen werden durch Mittelung der Dispersionsdaten der angrenzenden Schichten im Rahmen verschiedener Effektivmedium-Theorien (EMT) erreicht. Voraussetzung für die üblicherweise genutzten EMTs mit elektrostatischer Näherung ist, dass separate Bereiche im Wirtsmaterial klein gegenüber der Wellenlänge sind, aber dennoch in ihren dielektrischen Eigenschaften nicht beeinflusst werden. Die einfachste Methode ist die arithmetische Mittelung der dielektrischen Funktionen der in der Schicht vorkommenden Materialien

$$\varepsilon_e = \sum_{i=1}^N f_i \varepsilon_i. \quad (3.47)$$

Hier sind ε_e die effektive dielektrische Funktion, ε_i die dielektrischen Funktionen der beteiligten Medien und f_i die zugehörigen Füllfaktoren mit $\sum_{i=1}^N f_i = 1$. Diese Formel kann z.B.

unter Annahme einer chemischen Verbindung der Materialien zur Anwendung kommen. Für das betrachtete AlGaIn-Materialsystem ist diese Form der Mischung allerdings ungeeignet, da die Bandkantenverschiebung aufgrund der einfachen Summation unberücksichtigt bleibt.

An den Grenzflächen der Medien 1 und 2 addieren sich parallel bzw. senkrecht zum elektrischen Feld die dielektrischen Funktionen folgendermaßen [64]:

$$\varepsilon_e = f_1 \varepsilon_1 + f_2 \varepsilon_2 \quad (\textit{parallel}) \quad (3.48)$$

$$\frac{1}{\varepsilon_e} = \frac{f_1}{\varepsilon_1} + \frac{f_2}{\varepsilon_2} \quad (\textit{senkrecht}) \quad (3.49)$$

Hier sind $f_1 + f_2 = 1$ wieder die anteiligen Füllfaktoren der gemischten Medien. Aus diesen beiden Gleichungen und der Verallgemeinerung auf (zwei) kleine Einschlüsse in einem Wirtsmaterial bekommt man [74]

$$\varepsilon_e = \frac{\gamma\varepsilon_1\varepsilon_2 + (1-\gamma)\varepsilon_h(f_1\varepsilon_1 + f_2\varepsilon_2)}{(1-\gamma)\varepsilon_h + \gamma(f_1\varepsilon_2 + f_2\varepsilon_1)}, \quad (3.50)$$

unter Berücksichtigung der Einschlussgeometrie γ , wobei ε_h die dielektrische Funktion des die eingeschlossenen Medien 1 und 2 umfassenden Wirtsmediums (*host*) ist. In gebräuchlicherer Form, unter Verallgemeinerung auf N Einschlüsse, wird Gl.(3.50) zu

$$\frac{\varepsilon_e - \varepsilon_h}{\varepsilon_e + \left(\frac{1}{\gamma} - 1\right)\varepsilon_h} = \sum_{i=1}^N f_i \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_h}{\varepsilon_i + \left(\frac{1}{\gamma} - 1\right)\varepsilon_h}. \quad (3.51)$$

Die Füllfaktoren f_i geben den Bruchteil des Einschlusses des Materials mit komplexem Brechungsindex ε_i im Wirtsmaterial mit Brechungsindex ε_h an. Die gesuchte effektive dielektrische Funktion der Mischschicht ist ε_e . Für die Grenzfälle paralleler Grenzflächen nach Gl.(3.48) ist $\gamma = 0$, für senkrechte Grenzflächen nach Gl.(3.49) gilt $\gamma = 1$. Für die betrachteten Fälle im AlGaIn-Materialsystem reicht die Mischung zweier Medien, Wirt und Einschluss, aus. γ wurde mit $1/3$ für kugelförmige Mikropartikel angesetzt. Damit vereinfacht sich Gl.(3.51) zum Maxwell-Garnett Modell [75]

$$\frac{\varepsilon_e - \varepsilon_h}{\varepsilon_e + 2\varepsilon_h} = f_1 \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_h}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon_h}. \quad (3.52)$$

Dieses Modell zeigt sich empirisch geeignet Einschlüsse bis zu einem Volumenanteil von ca. $f_i=0,2$ zu beschreiben. Haben die Füllfaktoren von Wirtsmedium und Einschlussmedium etwa die gleiche Größe, kann man selbstkonsistent $\varepsilon_e = \varepsilon_h$ setzen und erhält aus Gl.(3.51) das Bruggemann-Modell [76]

$$0 = \sum_{i=1}^N f_i \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_h}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_h}. \quad (3.53)$$

Gl.(3.53) zeigt sich sehr geeignet Oberflächenrauigkeiten zu beschreiben. Typischerweise werden dabei die Füllfaktoren mit $f_i=0,5$ angesetzt, so dass sich im wichtigen Fall einer Grenzfläche eines Schichtstapels

$$0 = \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_e}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon_e} + \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_e}{\varepsilon_2 + 2\varepsilon_e} \quad (3.54)$$

ergibt.

Bei der Verwendung der Gl.(3.50-4.54) ist darauf zu achten, dass die Größe von Einschlüssen nicht unterhalb der Lichtwellenlänge liegt, sonst kommt es zu Streueffekten, die die Polarisation des Lichtes ändern und so zu Intensitätsverlust im Detektor führen. Das Modell wird unbrauchbar. Weiterhin sollte nach der aufwendigeren EMT nach Bergmann [77]

$$\frac{\varepsilon_e}{\varepsilon_e - \varepsilon_i} \gg 1 \quad (3.55)$$

gelten, damit die einfacheren, vorgenannten Modelle anwendbar sind. Dies ist erfüllt, da die beteiligten dielektrischen Funktionen im betrachteten GaN/AlGaN Materialsystem die gleiche Größenordnung und einen ähnlichen Verlauf haben.

Schichtdickenvariation & Instrumentenlimitation

Weil ausreichende Lichtintensität am Detektor für die Messung vorhanden sein muss, kann der Beleuchtungsfleck des Ellipsometers nicht beliebig klein sein. Wenn es durch unregelmäßiges Wachstum der Probe innerhalb einer Schicht Dickenunterschiede gibt, werden durch die Ausdehnung des Beleuchtungsflecks (ca. 4x2 mm²) phasenverschobene Lichtwellen aufgenommen. Für diesen Fall berechnet die Sentech Spectrarray Software des Ellipsometers SE800 das Signal mehrerer Schichtstapel mit unterschiedlicher Dicke einer Schicht. Der Software wird die Anzahl und Höhe von Stufen auf der Oberfläche vorgegeben. Daraus ergibt sich eine intensitätsändernde Interferenz.

Die Ausdehnung des Beleuchtungsflecks beinhaltet ein weiteres Problem. Der Einfallswinkel $\phi = 70^\circ$ variiert um seinen Mittelwert mit ca. $\Delta\phi = \pm 1,5^\circ$. Wiederum resultiert Interferenz am Detektor. Dies kann ebenfalls von der Software berücksichtigt werden.

Schließlich hat der Detektor des Ellipsometers eine endliche Auflösung. Er besteht aus einer Matrix von 1024 Si-Dioden. Jede Diode deckt einen Bereich von ca. 1,2 nm des aufzunehmenden Spektrums ab. Auch diese Datenunschärfe kann im Programm berücksichtigt werden.

Man beachte, dass die drei vorgenannten Effekte nur relativ kleine Änderungen am Simulationsergebnis hervorrufen. Andererseits ist eine vielfache Berechnung des Schichtstapels notwendig, um die auftretenden Interferenzen nachzubilden. Das erhöht die Rechenzeit erheblich. Das übliche Vorgehen beim Fit besteht daher darin, nach bestmöglicher Anpassung der Dispersionsmodellparameter die instrumentalen Limitierungen zuzuschalten, was bei gutenⁱ Spektren nahezu keine Verbesserung mehr bringt.

ⁱ Ein gutes Spektrum in diesem Sinne liegt vor, wenn das Modell die Probe in ausreichender Weise für einen guten Fit mit kleinem *mean squared error* (MSE) Wert beschreibt. Die Probe muß dazu von hoher Qualität sein, da das Modell immer nur ideale Strukturen beschreibt.

3.3 GaN- und AlGaN-Einzelschichtspektrensimulation

Die im vorigen Abschnitt behandelte Theorie soll jetzt in die Praxis umgesetzt werden. Es werden erstmals Fitparameter für das Tanguy-Modell für GaN- und AlGaN-Einzelschichten vorgestellt. Die Ergebnisse werden mit Literaturdaten anderer Modelle verglichen. Die korrekte Bestimmung der Dispersion der GaN- und AlGaN-Einzelschichten von Referenzproben ist für das DBR Design von entscheidender Bedeutung. Nach dem erfolgreichen Fit der Einzelschichten werden Schichtstapelsimulationen (Bragg-Reflektoren und MQWs) angesetzt, um deren optische Eigenschaften zu bestimmen. Auf diese Weise wird auch das Design der DBRs mit den tatsächlich produzierten Spiegeln verglichen.

Für die Bewertung des Fits werden aus den gemessenen Ellipsometerwinkeln ψ und Δ nach Gl.(3.22) die Fourier-Koeffizienten $a_2^{exp}(\lambda)$ und $b_2^{exp}(\lambda)$ der detektierten Intensität berechnet^j. Sie werden mit den aus den Dispersionsmodellen des Schichtensystems der Probe berechneten theoretischen Werten $a_2^{th}(\lambda)$ und $b_2^{th}(\lambda)$ verglichen. Die *figure of merit* ist die *mean squared error* (MSE) Funktion:

$$MSE = \frac{1}{N - L - 1} \sum_{i=1}^N \left[\left(a_2^{th}(\lambda_i) - a_2^{exp}(\lambda_i) \right)^2 + \left(b_2^{th}(\lambda_i) - b_2^{exp}(\lambda_i) \right)^2 \right]. \quad (3.56)$$

N ist die Anzahl der bzgl. der Wellenlänge λ äquidistant gemessenen Datenpunkte, L ist die Anzahl der Fitparameter. Im Simplexverfahren wird von einem geschätzten Startwert ausgehend die MSE Funktion minimiert [78].

3.3.1 GaN-Einzelschicht

Wie in Abschnitt 3.2.2 erwähnt, gründet sich das Tanguy-Modell auf physikalische Eigenschaften der Bandstruktur des zu untersuchenden Materials. Eingehende Parameter sind durch Messung zugänglich. Idealerweise sollte der Fit also durch Eingabe von Referenzwerten ein annehmbares Resultat für die Dispersionsrelation liefern. Die auf Literaturangaben gegründeten Werte dieser Parameter und die an die Messung angepassten Werte liefert Tabelle 3.1. Die Bandkantenenergie E_g wird durch PL Messung vorgegeben und nicht gefittet. Die übrigen gefundenen Fitparameter weichen z.T. erheblich von den Vorgaben ab. So ist die Exzitonen-Rydberg-Konstante R des Fits etwa halb so groß wie in der Literatur

^j Man könnte natürlich auch ψ und Δ direkt fitten. Allerdings ist in der Software *Spectraray* keine Gewichtung der Datenpunkte in Gl.(3.56) möglich. Da Δ aber i.A. deutlich größere Werte annimmt, und damit absolut größere Schwankungen aufweist als ψ , wäre eine Überbewertung von Δ die Folge. Die Werte der Fourier-Koeffizienten a_1 und b_1 liegen wesentlich näher beieinander.

angegebene Messwerte. Im Gegenzug ist der dem Quadrat des Kane-Impulses proportionale Faktor A ca. viermal so groß wie aus Literaturdaten errechnet.

Größe	Theoretischer Wert	Tanguy-Fit GaN	Tanguy-Fit GaAs [69]
E_g	3,42 eV [20]	3,42 eV	1,42 eV
R	20 meV [20]	10 meV	4 meV
Γ	-	10 meV	6 meV
A	$4,4 (\text{eV})^{3/2}$ [69,20,79]	$20 (\text{eV})^{3/2}$	$2,6 (\text{eV})^{3/2}$
a	-	$170 (\text{eV})^2$	$126 (\text{eV})^2$
b	$49 (\text{eV})^2$ [80]	$55 (\text{eV})^2$	$13 (\text{eV})^2$

Tabelle 3.1 Literaturwerte und gefittete Werte des Tanguy-Modells für eine GaN-Einzelschicht. Die Referenzen für theoretische Werte von A und b beziehen sich auf zur Berechnung benötigte Zahlenwerte (s. Text). Zum Vergleich sind Fitwerte für GaAs gegeben [69].

In der dritten Komponente $\varepsilon_{1,\text{bandkante}}$ der Tanguy-Formel Gl.(3.46) sieht man, dass A als Vorfaktor der R -abhängigen Terme erscheint. Eine Reihenentwicklung in R zur näheren Betrachtung des Verhaltens von A ist nur möglich, wenn das Argument $\xi = \sqrt{R/(E_g - E)} < 1$ ist. Diese Bedingung kann nur im transparenten Teil des Spektrums erfüllt werden. Der deutlichste Einfluss von $\varepsilon_{1,\text{bandkante}}$ und damit der möglichen Entwicklung in R , ist jedoch unzweifelhaft in Bandkantennähe zu suchen. Hier aber divergiert ξ . Die Steigung von $\varepsilon_{1,\text{bandkante}}$ an der Polstelle $E=E_g$ wird, gedämpft durch $i\Gamma$, von R beeinflusst. Der absolute Beitrag zur gesamten dielektrischen Funktion wird von A bestimmt. Dieses komplizierte Zusammenspiel von R , A und $i\Gamma$ wird weiterhin durch die Vereinfachungen des zugrunde liegenden Modells erschwert: die hexagonalen Gruppe III-Nitride sind nicht optisch isotrop. Gitterfehler und Korngrenzen sind nicht berücksichtigt. Kristallverspannungen finden keinen Eingang in die Berechnung. So kommt das Zahlenverhältnis von 4facher und 2facher Abweichung in A und R von den aus Literaturangaben berechneten Werten zustande. Das absolute Minimum der MSE-Funktion Gl.(3.56) wird für alle untersuchten GaN-Schichten sehr nah an den in Tabelle 3.1 genannten Werten gefunden.

Die Stärke des in Gl.(3.46) durch $\varepsilon_{1,\text{fundamental}}$ gegebenen Oszillators a bestimmt den Beitrag des Oszillators zur gesamten dielektrischen Funktion. Er fällt verglichen mit dem Wert für GaAs höher aus. Die durch den Parameter b beschriebene Position des Oszillators im Wellenlängenspektrum stimmt gut mit dem berechneten Wert überein. Als Anhalt für den

theoretischen Wert dient der erste kritische Punkt der dielektrischen Funktion. Diese Hauptabsorptionsstelle im Spektrum lässt sich näherungsweise mit dem Modell des Oszillators als (gedämpfte) Resonanzstelle nachbilden. Das Quadrat des in Ref. [80] gemessenen Wertes von $E_1=7,0$ eV liegt etwas unterhalb der gefitteten Oszillatorposition. Das kann durch Beiträge des nahegelegenen, nächsten kritischen Punktes im Spektrum bei $E_2=7,9$ eV erklärt werden^k. Die Berechnung von A nach Gl.(3.42) gestaltet sich schwieriger. Die vorkommenden effektiven Massen des Elektrons $m_e=0,2m_0$ und des Lochs $m_h=1-2m_0$ in hexagonalem GaN sind recht gut bekannt (m_0 Ruhemasse des Elektrons) [20]. Der Kane-Impuls P nach Gl.(3.43) beschreibt die Interbandkopplung zwischen Valenzband und höheren Leitungsbändern (d.h. oberhalb von E_g). In der Literatur wird anstelle von P oft der Energieparameter

$$E_p = \frac{2m_0}{\hbar^2} P^2 \quad (3.57)$$

angegeben. Je nach Berechnung liegen die Werte für E_p zwischen 18 und 25 eV ($\vec{k} \cdot \vec{p}$ -Methode [19,81,82,83], *linear combination of atomic orbitals* (LCAO)-Methode [79]). Messwerte liegen nur semi-empirisch vor [84]^l.

Die Kombination der Fitparameter führt auf die eigentlich gesuchte Größe, das Dispersionsverhalten $\varepsilon(\lambda)$ der GaN-Schicht. Das Tanguy-Modell erweist sich wegen der Abweichungen der Fitparameter von unabhängigen Messwerten für diese Parameter als nicht geeignet, über einzelne physikalische Eigenschaften, die direkt von den eingehenden Parametern abhängen, genaue Aussagen zu machen. Trotzdem wird mit dem Tanguy-Fit die zum Bragg-Spiegel und VCSEL Design benötigte Ergebnis erzielt: das Dispersionsverhalten und die Dicke der Einzelschicht werden zutreffend simuliert. Darüber hinaus gibt das Tanguy-Modell bessere Einsicht in die zugrunde liegenden physikalischen Vorgänge, als ein vollständig parametrisiertes Modell ohne realen Bezug.

Nun zum Fit unter Anwendung des Programms „Spectrarray“ der Firma Sentech [61]. Die durchzuführende Prozedur lässt sich in sechs Schritte unterteilen:

1. ψ , Δ -Spektrum nach Gl.(3.22) in a_2 , b_2 -Spektrum umrechnen.

^k Ein zweiter Oszillator in der Simulation bringt im Übrigen, wie nach der Diskussion in Abschnitt 3.2.2 zu erwarten, keine Verbesserung des Fits. Der zusätzliche Fitparameter führt lediglich zu weiteren lokalen MSE Minima die den Fitalgorithmus „verwirren“.

^l In der Referenz gibt es den Versuch eines Fits ($E_p=22,4$ eV) über ein semi-empirischen Verfahren per *optically detected magnetic resonance* (ODMR).

2. Cauchy-Fit im transparenten Bereich (400nm-850nm) mit einer Einzelschicht auf Saphir durchführen.
3. Dicke aus dem Cauchy-Fit und Werte aus Tabelle 3.1 als Startwerte für den Tanguy-Fit benutzen.
4. Oxidschicht zufügen, um das Signal oberhalb der Bandkante abzugleichen.
5. EMT-Schicht nach Bruggemann Gl.(3.53) aus Tanguy-GaN-Schicht und „inclusion“-Medium für die Pufferschicht der Probe ansetzen.
6. Evtl. Fitverbesserung durch Berücksichtigung von Grenzflächenrauigkeiten der Schichten der Probe und Instrumentenfehler.

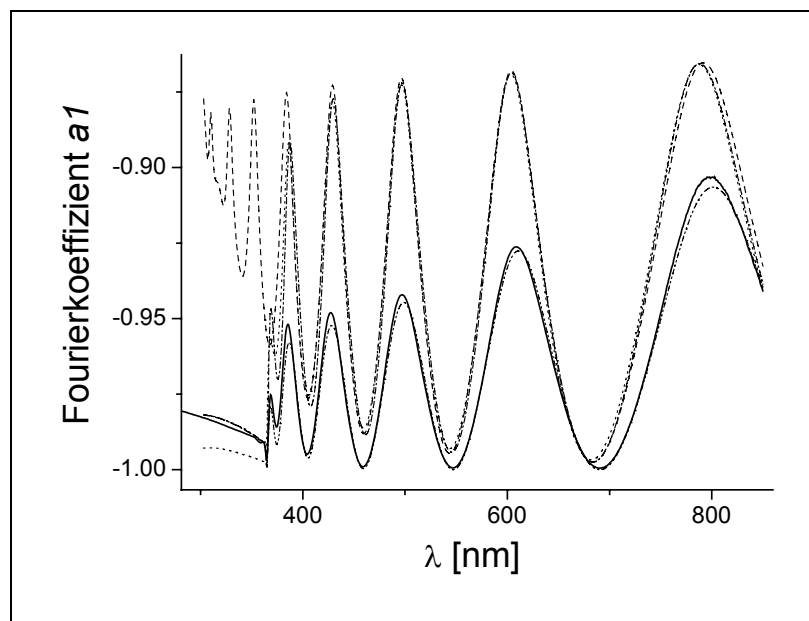


Abbildung 3.5. Das gemessene Spektrum des Koeffizienten a_1 wird in mehreren Schritten mit dem Ellipsometermodell angenähert. Die Einführung einer Oxidschicht korrigiert den Fit oberhalb der Bandkante. Unterhalb der Bandkante sorgt das Modell einer defektreichen Pufferschicht für die Dämpfung der Amplitude (Legende siehe nächste Abbildung).

In Abbildung 3.5 und Abbildung 3.6 sind Simulationsspektren für eine einfache Probe, bestehend aus Saphir-Substrat, GaN-Puffer und darauf deponierter GaN-Einzelschicht zu sehen. Die Cauchy-Fitparameter aus Gl.(3.34) sind nach den Angaben von Yu et al. $A=2,285$, $B=63,3$ und $C=516,1$ [85]^m. Damit wird die GaN-Schicht im Dreischichtmodell mit Saphirsubstrat und Luft als umgebenden Medien gefittet (Fit 1). Das Saphirsubstrat ist auf der

^m Die dort gegebene Sellmeier-artige („*Sellmeier-type*“) Beziehung mit ebenfalls drei Parametern ist mit Gl.(3.34) ohne Genauigkeitsverlust nachmodelliert worden.

Rückseite aufgeraut und mit Ti bedampft. Es gibt daher keine zu berücksichtigenden Rückseitenreflexe. Mit dem Cauchy-Ausgangswert für die epitaktische Schichtdicke d_{GaN} geht es in den nachfolgenden Tanguy-Fit (Fit 2).

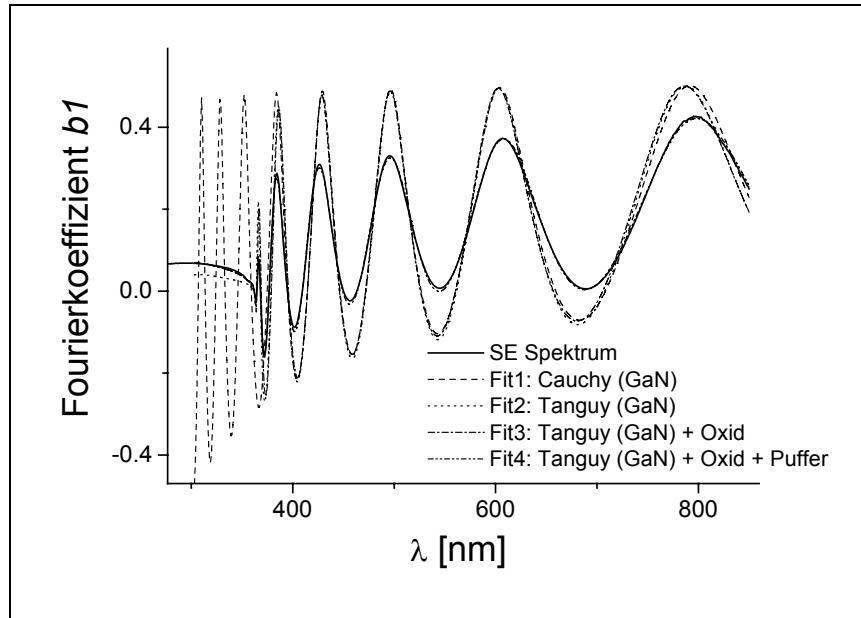


Abbildung 3.6. Auch der gemessene Fourier-Koeffizient b_2 des Intensitätsspektrums wird angenähert.

Der Tanguy-Fit berücksichtigt im Gegensatz zum vorhergehenden Cauchy-Fit die Bandkante. Für GaN-Schichten, wie die hier beschriebene, kann man den Wert für E_g einer PL-Messung entnehmen, oder direkt aus dem SE-Spektrum ablesen. Die übrigen Startwerte des Tanguy-Fits sind Tabelle 3.1 zu entnehmen. In nächsten Schritt wird eine Oxidschicht auf der GaN-Oberfläche in das Modell integriert. Diese passt, wie in Abschnitt 3.2.2 diskutiert, das Modell dem Spektrum oberhalb der Bandkante an (Fit 3). Das native Ga_2O_3 ist ein Halbleiter mit $E_g=4,4$ eV. Es wird im betrachteten Spektralbereich als transparent ($k=0$) mit konstantem Brechungsindex $n_{\text{ox}} \cong 1,885$ angesetzt [86]. Typische Oxiddicken für die SE-Messung direkt nach der Entnahme der Probe liegen bei 0,5-2,5 nm. In einem vorerst letzten Schritt wird der Puffer eingefügt. Es handelt sich um eine EMT-Schicht nach Bruggemann. Das Wirtsmaterial (Tanguy-GaN) ist dabei von absorbierenden Einschlüssen durchsetzt. Die Einschlüsse ähneln den bei der anfänglichen Koaleszenz der GaN-Inseln am Beginn des Wachstums entstehenden Korngrenzen und zahlreich auftretende TDs nach. Die eingeführte Absorption der Einschlüsse rührt ebenfalls vom Defektreichtum der Nukleationsschicht her: Elektronenleitung über Defektstellen ist problemlos möglich, und folglich kann auch Licht über den ganzen Spektralbereich absorbiert werden. Die Absorption der „inclusions“ ist mit einem konstanten

k -Wert gefittet worden. Diese gemachten Annahmen werden durch den Fit in eindrucksvoller Weise bestätigt: die Schichtdicke für die Pufferschicht stimmt sehr gut mit den Wachstumsvorgaben überein.

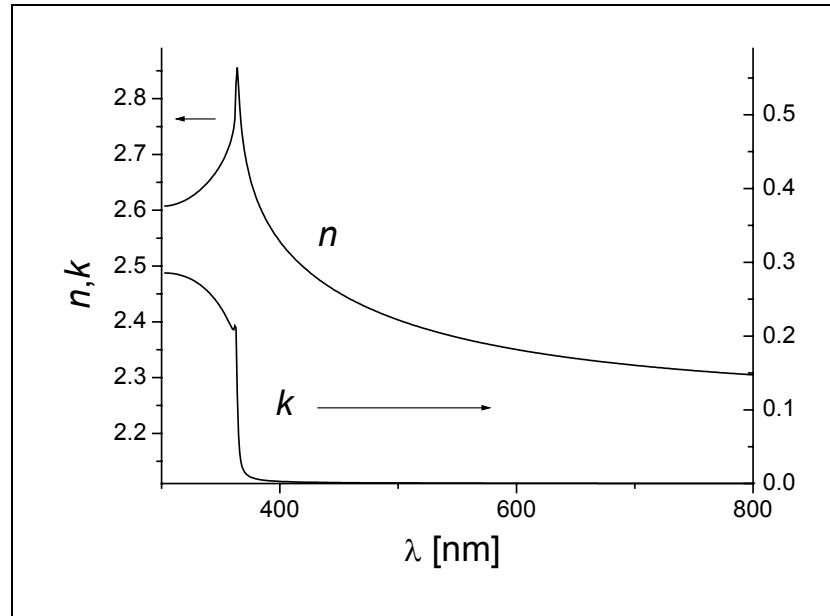


Abbildung 3.7. Dispersionskurven für Brechungsindex n und Extinktionskoeffizient k für eine GaN Schicht bestimmt aus dem letzten Fit der Abbildung 3.5 und Abbildung 3.6.

Im gegebenen Beispiel ist der MSE-Wert nach Gl.(3.56) im Intervall 270-850 nm auf 0,0027 abgesunken. Zusätzliche Fitparameter bringen keine Verbesserung mehr, daher macht es keinen Sinn, Oberflächen- und Grenzflächenrauigkeiten zu berücksichtigen, was für die exzellente Grenzflächenmorphologie der untersuchten Probe spricht.

Das gesuchte Ergebnis, die Dispersionsrelation der GaN-Schicht, ist in Abbildung 3.7 gezeigt. Der Exitonpeak ist sowohl im Brechungsindex n als auch im Extinktionskoeffizienten k klar zu erkennen. Der Vergleich mit Literaturquellen zeigt exzellente Übereinstimmung mit bisher veröffentlichten Spektren auf Grundlage anderer Modelle, die auf andere Weise den exitonischen Beitrag berücksichtigen [87,88,89,90].

3.3.2 AlGaN-Einzelschichten

Jetzt soll die Dispersionskurvenbestimmung des vorigen Abschnitts auf AlGaN-Schichten ausgedehnt werden. Der SE-Fit der AlGaN-Schichten verläuft prinzipiell nach dem gleichen Muster wie zuvor bei den GaN-Schichten. Da die Materialqualität der betrachteten, älteren

Probenⁿ allerdings nicht der des GaN entspricht, gestaltet sich der Fit schwieriger. Anstelle eines obenaufliegenden Oxids mit konstantem Brechungsindex muss eine komplette Cauchy-Lage genutzt werden, um dem Modell zusätzliche Fitparameter zur Verfügung zu stellen. Es gibt in der Literatur leider keine hinreichenden Aussagen zu AlGa_xN-Oxiden, die eine genauere Vorgabe ermöglichen würden. Die AlGa_xN-Schichten sind bei hoher Temperatur (750°C) auf bei niedrigerer Temperatur (690°C) gewachsenen GaN-Puffern abgeschieden worden. Details zur Produktion und eine weiterführende Diskussion zu den untersuchten AlGa_xN-Proben finden sich in Abschnitt 6.2. Hier soll lediglich das Dispersionsverhalten angesprochen werden. Für den Puffer wird wieder das Modell der GaN-Tanguy-Schicht mit Einschlüssen verwendet. Dabei wurden die in Tabelle 3.1 genannten Werte benutzt und nicht zum Fit freigegeben. Insgesamt führt dieses Vorgehen auf schlechtere *MSE*-Werte zwischen 0,0066 und 0,0130 als zuvor für die GaN-Einzelschichten. Bei diesen Werten wurde auf die Einführung weiterer Fitparameter durch Oberflächenrauigkeit oder Instrumentenfehler verzichtet, um den Fit nicht „davonlaufen“ zu lassen. Dennoch konnten für verschiedene Al_xGa_{1-x}N-Kompositionen Dispersionskurven nach Abbildung 3.8 bestimmt werden.

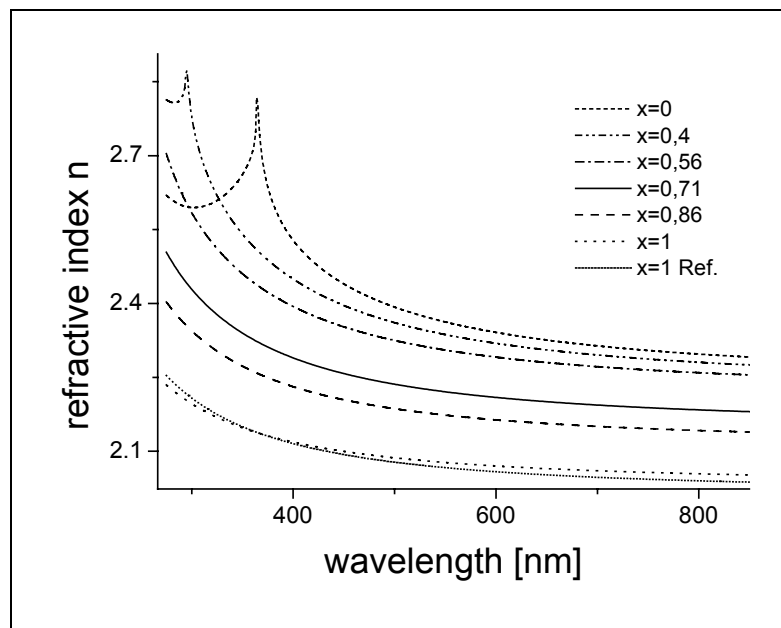


Abbildung 3.8. $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Dispersionskurven für verschiedene AlN-Anteile x . Die zum Vergleich dargestellte AlN-Dispersionskurve stammt von Joo et al. aus einem Sellmeier-Modell [91].

ⁿ Spätere, für das DBR Design verwendete Proben weisen eine durchweg bessere Kristallqualität auf. Das ist im wesentlichen der Pufferoptimierung zuzuschreiben. Nachfolgende Proben wurden allerdings nicht wieder mit solch hohen Al-Gehalten gewachsen, wodurch sich der Rückgriff in dieser Präsentation erklärt.

Die ersten beiden Kurven ($x=0,4$; $x=0,56$) scheinen zu nah am GaN-Fit zu liegen. Man würde in erster Näherung einen linearen Zusammenhang zwischen Brechungsindex n und Komposition x erwarten. Andere Untersuchungen finden denn auch ähnliche Kurven bereits für $x=0,15$ [89]. Andererseits beachte man die Übereinstimmung des Tanguy-Fits mit der aus der Literatur stammenden Sellmeier-Relation für $x=1$ [91]. Das Modell verhält sich also grundsätzlich richtig. Die Abweichungen im GaN-nahen Bereich mögen sich aus Wachstumsfehlern ergeben:

Ein nicht perfekter AlGaN-Mischkristall kann durch übermäßige Anzahl von Versetzungen, Korngrenzen, Kompositionsschwankungen und Verunreinigungen die für einen perfekten Kristall erwartete Dispersionskurve stark verändern. Nicht auszuschließen ist auch, dass es maschinenspezifische, d.h. systematische Einflüsse der verwendeten MBE Anlage gibt.

Um den Brechungsindexkontrast für eine gegebene Wellenlänge groß zu halten, sind AlN/AlGaN Spiegel produziert worden, und nicht GaN/AlGaN Strukturen, die nach Abbildung 3.8 bei gleichem Kompositionsunterschied einen kleineren Brechungsindexkontrast versprechen.

3.4 DBR-Design

Damit sich innerhalb eines Vielschichtsystems eine stehende optische Welle ausbilden kann, muss die Interferenzbedingung erfüllt sein. Jede Periode des DBRs muss eine halbe Resonanzwellenlänge, jede Halbperiode A oder B eine viertel Resonanzwellenlänge aufnehmen. Es muss gelten:

$$\frac{\lambda}{4} = n_{A/B} \cdot L_{A/B}. \quad (3.58)$$

Um die Bedingung Gl.(3.58) bei senkrechtem Einfall mit den Schichtdicken L_A und L_B eines zu wachsenden DBRs zu erfüllen, müssen die Wachstumsraten und die Brechungsindizes n_A und n_B bekannt sein. Unmittelbar vor der eigentlichen Spiegelproduktion wird zu diesem Zweck eine zweischichtige Referenzprobe gleicher Materialzusammensetzung wie bei der folgenden Spiegelherstellung gewachsen. Das Vorgehen soll am Beispiel der ersten auf diese Weise produzierten DBR-Probe A2 dargestellt werden (Kapitel 6.1).

Die Referenzprobe A1 wurde unmittelbar nach der Herstellung mit SE vermessen und entsprechend den vorigen Abschnitten nachgebildet (Abbildung 3.9). Für die in 30 Minuten aufgebrauchte AlN-Schicht wurde der Sellmeier-Fit verwendet. Für die in 15 Minuten deponierte AlGaN-Schicht wurde das Tanguy-Modell genutzt.

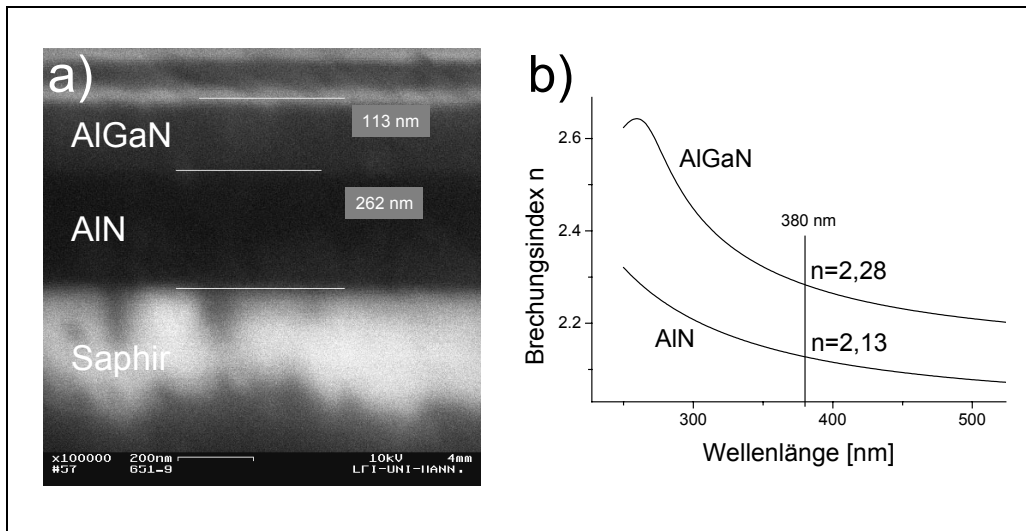


Abbildung 3.9. a) SEM Aufnahme der zweischichtigen DBR-Referenzprobe A1. b) Mit dem Tanguy-Modell extrahierte Dispersionskurven.

Die gefundenen Schichtdicken von 111 nm (AlGaIn) und 265 nm (AlN) stimmen sehr gut mit den später gemessenen, in Abbildung 3.9 gezeigten SEM-Werten überein. Ist nun der Brechungsindex bei der gewünschten Spiegelwellenlänge, hier 380 nm, bekannt, können die Halbperiodenschichtdicken nach Gl.(3.58) berechnet werden:

$$L_A = \frac{380\text{nm}}{4 \cdot 2,36} = 40,25\text{nm} \quad (3.59)$$

$$L_B = \frac{380\text{nm}}{4 \cdot 2,13} = 44,60\text{nm}$$

Mit den aus Schichtdicke und Depositionszeit bekannten Wachstumsraten bekommt man

$$t_A = \frac{40,25\text{nm}}{7,4 \frac{\text{nm}}{\text{min}}} = 5 : 26.4 \text{ min} \quad (3.60)$$

$$t_B = \frac{44,60\text{nm}}{8,3 \frac{\text{nm}}{\text{min}}} = 5 : 22.4 \text{ min}$$

die notwendigen Shutter-Öffnungszeiten für den Wachstumsprozeß. Nun lässt sich natürlich eine Design-Reflexionssimulation durchführen und mit der Messung an der gewachsenen Struktur vergleichen. Für die 5,5-Perioden-Probe A2 ergibt sich eine exzellente Übereinstimmung (Abbildung 3.10b).

Die 70°-Reflexionsmessung wurde mit dem Sentech SE800 durchgeführt. Die Reflexionsmessung unter 3°-Einfallswinkel wurde im Laserzentrum Hannover mit einem

Zweistrahlenspektrometer vorgenommen^o. Die Simulationen wurden mit dem Schichtmodell nach Abbildung 3.10a unter Verwendung der Software „Spectraray“ gemacht. Die spätere XRD-Messung an der DBR-Multiheterostruktur ergab nach der in Abschnitt 4.4 beschriebenen Auswertung leicht abweichende Halbperiodenlängen, die, in das Tanguy-Modell integriert, den Design-Fit verbessern. Für dickere Strukturen wird die Übereinstimmung zwischen Design und wahren Probengegebenheiten immer schwieriger, wie die genaueren Betrachtungen in Kapitel 6.1 zeigen werden. Grundsätzlich ist jedoch gezeigt, dass das DBR-Design mit Hilfe einer Referenzprobe und *ex-situ* SE-Analyse geeignet ist, brauchbare Nitrid-Halbleiterspiegel zu produzieren.

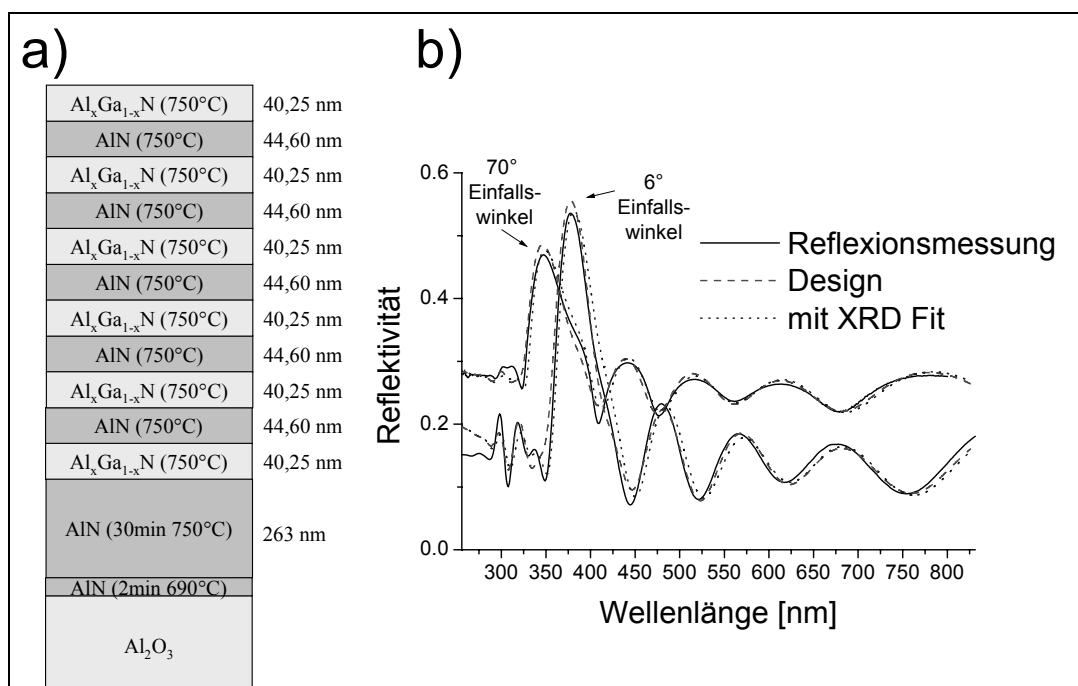


Abbildung 3.10. a) DBR-Design Probe A2 und b) Reflexionsmessungen und SE-Simulationen der DBR-Probe A2. Design- und mit XRD-Daten angepasste Simulationen unterscheiden sich kaum von der Messung.

^o Die Winkel wurden relativ zur Probenoberflächensenkrechten gemessen.

4 XRD-Analysemethoden für epitaktische Schichten und DBRs

Tritt Röntgenstrahlung in Materie ein, gibt es eine Vielzahl konkurrierender Effekte, die alle der Energiedissipation dienen. Der monochromatische, schmale Strahl des Diffraktometers wird transmittiert, gestreut und absorbiert. Innerhalb eines Kristalls regelmäßiger Atomanordnung kommt es zur Ausbildung von Beugungsbildern durch elastische Streuung. Diese wird durch die bekannte Bragg'sche Reflexionsbedingung beschrieben. Jede Kristallgitterebene trägt zum gesamten, reflektierten Signal bei:

$$m\lambda = 2d \sin \theta_B. \quad (4.1)$$

Die Bragg-Bedingung beschreibt die Gleichheit von ganzzahligem Wellenlängenvielfachen $m\lambda$ und dem Gangunterschied zwischen jeder Ebene $d \sin \theta_B$ für den Bragg-Winkel konstruktiver Interferenz θ_B und Ebenen des Abstandes d .

4.1 Reziproker Raum und Bragg-Bedingung

Das Röntgenbeugungsbild zeigt die Fourier-Transformierte der Elektronendichteverteilung innerhalb der Probe [92]. Die auf den Realraumvektor \vec{r} bezogene Elektronenanzahldichte $n(\vec{r})$ ist entlang der Kristallachsen periodisch:

$$n(\vec{r} + \vec{T}) = n(\vec{r}). \quad (4.2)$$

Dabei ist $\vec{T} = w_1 \vec{a}_1 + w_2 \vec{a}_2 + w_3 \vec{a}_3$ mit ganzzahligen w_i eine Translation von einem Gitterpunkt zu einem anderen. Mit gegebener Periodizität lässt sich die Fourier-Transformierte so ausdrücken:

$$n(\vec{r}) = \sum_{\vec{G}} n_{\vec{G}} \exp(i\vec{G} \cdot \vec{r}). \quad (4.3)$$

Die $n_{\vec{G}}$ sind die Fourier-Reihenoeffizienten. Die Elektronenanzahldichte ist nur an den Gitterplätzen nichtverschwindend. Die Vektoren

$$\vec{G} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3 \quad (4.4)$$

definieren die Gitterpunkte des reziproken Raums (Abbildung 4.1). Die ganzzahligen Faktoren h, k, l sind die Miller-Indizes der reziproken Gitterpunkte^a. Die Vektoren $\vec{b}_1, \vec{b}_2, \vec{b}_3$

^a Zur Beschreibung der Kristallrichtungen wird in diesem Kapitel (XRD) die Dreierschreibweise mit Gittervektoren nach Abbildung 4.1 genutzt. Die Diskussion der Kristallgitterfehler in Kapitel 2.3. und Kapitel 6.1 erfolgt dagegen in Viererschreibweise mit Gittervektoren nach Abbildung 2.28. Beide Schreibweisen sind äquivalent und werden der jeweiligen Anwendung in der Literatur entsprechend verwendet.

sind Basisvektoren des reziproken Gitters. Sie berechnen sich aus der Basis $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$ des realen Gitters zu

$$\vec{b}_i = \frac{2\pi}{V} (\vec{a}_j \times \vec{a}_k) \varepsilon_{ijk}. \quad (4.5)$$

Hier ist $V = \vec{a}_1 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)$ das Volumen der realen Einheitszelle des Gitters. Wird \vec{G} als Normalenvektor einer Ebenenschar aufgefasst, übernimmt die Ebene die Miller-Indizes. Der Abstand der einzelnen Ebenen ist

$$d = \frac{2\pi}{|\vec{G}_{hkl}|} \quad (4.6)$$

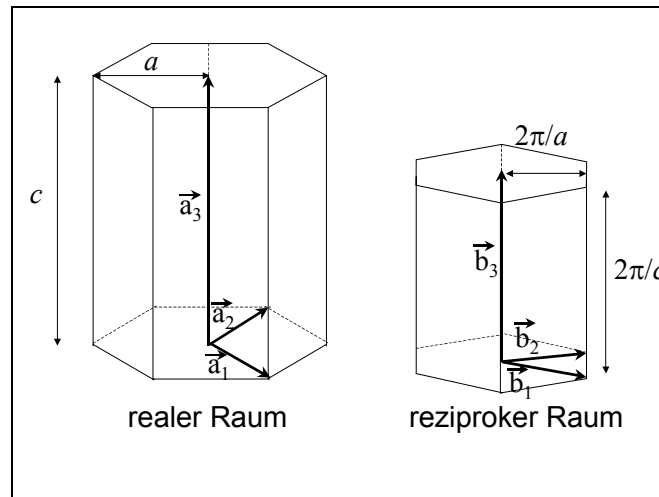


Abbildung 4.1. Die hexagonale Einheitszelle des reziproken Raums ist um 30° gegen die Einheitszelle des realen Raums gedreht. Die lateralen Einheitsvektoren schließen verschiedene Winkel ein.

Die Translationssymmetrie gilt auch im reziproken Raum. Mit Gleichungen Gl.(4.2) und Gl.(4.3) folgt

$$n(\vec{r} + \vec{T}) = \sum_{\vec{G}} n_{\vec{G}} \exp(i\vec{G} \cdot \vec{r}) \exp(i\vec{G} \cdot \vec{T}). \quad (4.7)$$

Unter Berücksichtigung der Definitionen von $\vec{G} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3$ und $\vec{T} = w_1\vec{a}_1 + w_2\vec{a}_2 + w_3\vec{a}_3$ gilt für das Produkt $\vec{G} \cdot \vec{T} = 2\pi m$ mit ganzzahligem m unter Verwendung der Definition der reziproken Basisvektoren Gl.(4.5). Damit wird aber $\exp(i\vec{G} \cdot \vec{T}) = 1$. Das ist die von Laue-Bedingung für konstruktive Interferenz, die genau dann erfüllt ist, wenn der Differenzvektor aus einfallender (\vec{k}) und reflektierter (\vec{k}') Röntgenwelle $\vec{K} = \vec{k} - \vec{k}'$ einem reziproken Gittervektor $\vec{K} = \vec{G}$ entspricht [94]. Die Definition des reziproken Gitters über die Fourier-

Analyse der Elektronendichteverteilung im Kristall steht in unmittelbarem Zusammenhang mit dem per Röntgenstrahlung erhältlichen Beugungsbild.

Mit der Energieerhaltung der elastischen Streuung, $|\vec{k}| = |\vec{k}'|$, und der Definition des Differenzvektors $\vec{K} = \vec{G} = \vec{k} - \vec{k}'$ folgt $|\vec{G} - \vec{k}| = |\vec{k}'|$. Wird der letzte Ausdruck quadriert erhält man $2\vec{k} \cdot \vec{G} + |\vec{G}|^2 = 0$. In einem unendlichen Kristall ist neben \vec{G} auch $-\vec{G}$ ein reziproker Gittervektor. Die von Laue-Bedingung kann also auch so ausgedrückt werden:

$$2\vec{k} \cdot \vec{G} = -|\vec{G}|^2. \quad (4.8)$$

Auf diese Gleichung kann man die Definition des Röntgenphotonenwellenvektors $|\vec{k}| = 2\pi / \lambda$ und Gleichung Gl.(4.6) für den Ebenenabstand d anwenden. Mit $\vec{K} = \vec{G}$ gilt die Beziehung $\vec{G} \cdot \vec{k} = |\vec{G}| |\vec{k}| \sin \theta$. Gleichung Gl.(4.8) transformiert sich in $2(2\pi / \lambda) \sin \theta = 2\pi / d_{hkl}$, oder vereinfacht in die eingangs gezeigt Bragg-Gleichung Gl.(4.1),

$$2d_{hkl} \sin \theta = m\lambda.$$

Der ganzzahlige Faktor m ist ein möglicher gemeinsamer Teiler der Miller-Indizes h, k, l der Bragg-Ebenen. Ist der Gangunterschied der Photonen mehrere (eben m) Wellenlängen groß, ist das äquivalent dem Einschub von m virtuellen Bragg-Ebenen zwischen die wirklichen Ebenen (h, k, l). Mit $d = 2\pi / |\vec{G}_{hkl}|$, $\vec{G} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3$ und der Definition der reziproken Gittervektoren nach Gleichung Gl.(4.5) lässt sich der Gitterabstand zwischen hexagonalen Ebenen eines Kristalls mit lateraler Gitterkonstanten a und vertikaler Gitterkonstanten c feststellen:

$$\frac{1}{d^2} = \frac{4}{3a^2} (h^2 + hk + k^2) + \frac{l^2}{c^2}. \quad (4.9)$$

4.2 Gitterverspannung und Gitterverzerrung

Die Spannung σ ist eine Kraft pro Fläche, die in einem Festkörper die Verzerrung ε hervorruft. Verzerrung kann auch durch innere Kräfte, z.B. Wärmedehnung hervorgerufen werden. Sechs unabhängige Spannungen wirken auf ein Volumenelement des Festkörpers (Abbildung 4.2), wenn das Material torsionsfrei angenommen werden kann, und die

Spannungen klein genug sind, um dem Hook'schen Gesetz zu genügen^b. Der Proportionalitätstensor ist das Elastizitätsmodul C .

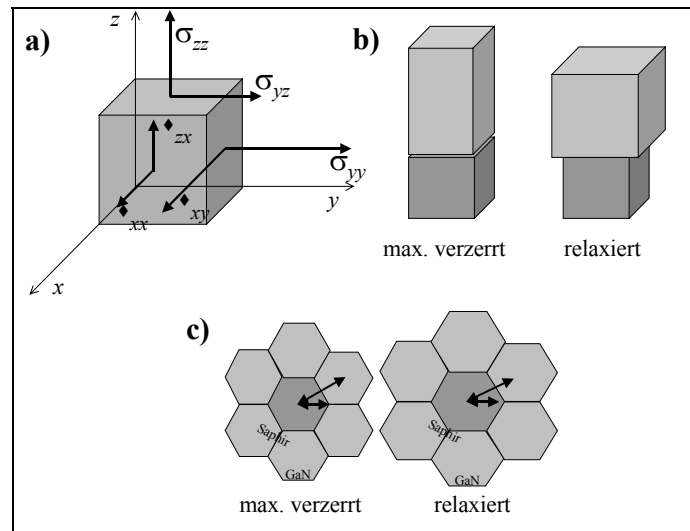


Abbildung 4.2. Spannung und Verzerrung. a) Drehmomentfreie Spannungen (Kraft je Fläche) wirken auf ein Volumenelement. b) Volumenelemente eines maximal verzerren und relaxierten epitaktischen Films i.A. und c) in Draufsicht der gegeneinander verdrehten Gitter für GaN auf Saphir.

Für die hexagonale Symmetrie ist eine 6-elementige Vektorschreibweise üblich. So wird das Hook'sche Gesetz $\vec{\sigma} = E\vec{\varepsilon}$ zu:

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} \\ \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} \\ \varepsilon_{xy} \end{pmatrix}. \quad (4.10)$$

Hierbei bedeuten σ_{xx} , σ_{yy} , σ_{zz} die Trennschpannungen (Normalspannungen) und σ_{yz} , σ_{zx} , σ_{xy} die Schubspannungen (Tangentialspannungen) nach Abbildung 4.2a am Volumenelement. Entsprechende Bezeichnungen gelten für die Verzerrungen ε_{ij} . In der hexagonalen Symmetrie unterscheiden sich die x und y Richtungen im Kristall nicht. Daher gibt es nur 6 verschiedene Elastizitätsmoduln C_{ij} . Für alle untersuchten Proben dieser Arbeit ist der ausgeübte Stress

^b Nach Hook sind kleine resultierende Verzerrungen den eingepprägten Spannungen proportional. Große Verzerrungen oder Zerstörung des Materialzusammenhalts durch Einwirkung großer Kräfte werden dadurch nicht beschrieben.

wachstumsbedingt biaxial, parallel zur Probenoberfläche. Es gibt keine Spannung in Wachstumsrichtung (z -Richtung):

$$\sigma_{zz} = C_{13}\varepsilon_{xx} + C_{13}\varepsilon_{yy} + C_{33}\varepsilon_{zz} = 0. \quad (4.11)$$

Wegen der Wachstumssymmetrie gibt es weiterhin in lateraler Richtung keinen Unterschied zwischen x und y Spannungen:

$$\sigma_{xx} = \sigma_{yy} \Leftrightarrow C_{11}\varepsilon_{xx} + C_{12}\varepsilon_{yy} + C_{13}\varepsilon_{zz} = C_{12}\varepsilon_{xx} + C_{11}\varepsilon_{yy} + C_{13}\varepsilon_{zz}. \quad (4.12)$$

Ohne z -gerichtete Spannung und ohne laterale Vorzugsrichtung gibt es keine Scherkräfte, die auf das Einheitsvolumen wirken könnten:

$$\sigma_{yz} = \sigma_{zx} = \sigma_{xy} = \varepsilon_{yz} = \varepsilon_{zx} = \varepsilon_{xy} = 0. \quad (4.13)$$

Der Ausdruck für die hexagonale, laterale Verzerrung eines epitaktischen, dünnen Filmes auf einem nicht verzerrten Substrat benötigt die Kenntnis der Gitterparameter in der Ebene a und in Wachstumsrichtung entlang der hexagonalen Symmetrieachse c . Das Substrat ändert seine Gitterparameter nicht. Der Film erfährt bedingt durch Gitterfehlpassung die Verzerrungen

$$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \frac{a_0^{\text{Substrat}} - a_0^{\text{epi}}}{a_0^{\text{epi}}} \quad \text{und} \quad \varepsilon_{zz} = \frac{c_{\text{verzerrt}}^{\text{epi}} - c_0^{\text{epi}}}{c_0^{\text{epi}}}, \quad (4.14)$$

wobei der Index 0 den vollkommen entspannten *bulk*-Wert meint. Mit Gleichungen Gl.(4.14) lassen sich die veränderten Gitterparameter eines vollständig verzerrten, epitaktischen Filmes berechnen. In diesem Extremfall übernimmt der Film den lateralen Gitterparameter des Substrats. Für GaN bedeutet das eine Stauchung von a , was eine entsprechende Elongation des Gitterparameters c zur Folge hat. Die Größe der relativen Änderung von c hängt von den materialspezifischen Elastizitätsmoduln (siehe Tabelle 1.2) in Gleichung Gl.(4.10) ab. Unter Nutzung der Bedingungen Gl.(4.11) und Gl.(4.12) wird die Definition der oft verwendeten, materialspezifischen, tetragonalen Verzerrung berechnet:

$$\varepsilon_t = -\frac{\varepsilon_{zz}}{\varepsilon_{xx}} = \frac{2C_{13}}{C_{33}} = \frac{2\nu}{1-\nu}. \quad (4.15)$$

Man kann anstelle der tetragonalen Verzerrung ε_t auch äquivalent die Poisson-Zahl ν angeben. Einsetzen von Gleichung Gl.(4.14) führt auf den korrigierten Wert für c im Falle maximaler Verzerrung:

$$\begin{aligned} c_{\text{verzerrt}}^{\text{epi}} &= c_0^{\text{epi}} (1 + \varepsilon_{zz}) \\ &= c_0^{\text{epi}} \left(1 - \frac{2C_{13}}{C_{33}} \varepsilon_{xx}\right) \\ &= c_0^{\text{epi}} \left(1 - \varepsilon_t \frac{a_0^{\text{Substrat}} - a_0^{\text{epi}}}{a_0^{\text{epi}}}\right) \end{aligned} \quad (4.16)$$

Für die experimentelle Analyse werden meistens die beiden Verzerrungen ε_{\perp} in Wachstumsrichtung und ε_{\parallel} in der lateralen Wachstumsebene bezogen auf den unveränderten Substratgitterparameter a angegeben:

$$\varepsilon_{\parallel} = \frac{a_0^{epi} - a_0^{Substrat}}{a_0^{Substrat}} \quad \text{und} \quad \varepsilon_{\perp} = \frac{c_0^{epi} - c_{\text{verzerrt}}^{epi}}{c_{\text{verzerrt}}^{epi}}. \quad (4.17)$$

In der einschlägigen Literatur zu findende Angaben für die biaxiale Verzerrung (*biaxial strain*) meinen ε_{\parallel} . Die Umrechnung der beiden Verzerrungsdefinitionen nach Gl.(4.14) und Gl.(4.17) folgt unmittelbar:

$$\varepsilon_{xx} = (\varepsilon_{\parallel} + 1) \frac{a_0^{Substrat}}{a_0^{epi}} - 1 \quad \text{und} \quad \varepsilon_{zz} = (\varepsilon_{\perp} + 1) \frac{c_{\text{verzerrt}}^{epi}}{c_0^{epi}} - 1. \quad (4.18)$$

4.3 Rekursive Auswertung der erweiterten x-Bond-Methode

Für den Fall, dass es sich bei den verzerrten Schichten um Mischkristalle handelt, muss die Analyse des vorhergehenden Kapitels um die Frage nach der Zusammensetzung des untersuchten Materials ergänzt werden. Für das in dieser Arbeit betrachtete $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ Mischsystem muss im Prinzip zunächst die Zusammensetzung x gefunden werden, um die mit 0 indizierten, relaxierten Bezugsgrößen der Gleichungen Gl.(4.10)-Gl.(4.14) zu bestimmen. Hierfür werden nach Vegard die Gitterkonstanten entsprechend x zwischen den AlN und GaN Werten linear interpoliert. Die erweiterte x-Bond Methode [93] wurde hier so weiterentwickelt, dass die notwendige, *gleichzeitige* Analyse von Zusammensetzung und Verzerrung einer epitaktischen Schicht erfolgen kann. Bisher ist dieses Problem nur unter unphysikalischer Verwendung gemeinsamer Verzerrungsparameter für GaN und AlGaN betrachtet worden.

Um die x-Bond-Methode anwenden zu können, bedarf es der extrem genauen Positionierung des Diffraktometergoniometers in Bezug auf die c -Achse des zu untersuchenden epitaktischen Films. Die perfekte Ausrichtung der Probe stellt sehr hohe Anforderungen an das XRD-System, die mit dem verwendeten Philips MRD Gerät jedoch erfüllt werden konnten [94]. Mit der korrekten Justierung werden Probenverkipfung und ein evtl. Fehlwinkel zwischen Substrat und Film bestimmt, bevor die eigentliche Messung beginnt. Zwischen den Scans eines x-Bond Scan-Sets dürfen keine Nachjustierungen gemacht werden. Für die spätere Auswertung mittels linearer Regression wurde ein x-Bond Set bestehend aus 8 Scans an

verschiedenen hkl -Ebenen^c benutzt, um eine ausreichende Menge an Datenpunkten zu gewinnen: zwei symmetrische $\theta/2\theta$ (002) Scans um den vertikalen Gitterparameter c zu bestimmen und 3 Paare asymmetrischer ω -Scans (*rocking curves*; RC), aus denen das Verhältnis c/a berechnet werden kann (Abbildung 4.3). Bei den in Kapitel 5 und 6 vorgestellten Ergebnissen wurden die geometrisch äquivalenten Gitterebenenpaare (024) und ($0\bar{2}4$), (014) und ($0\bar{1}4$) und schließlich (015) und ($0\bar{1}5$) verwendet.

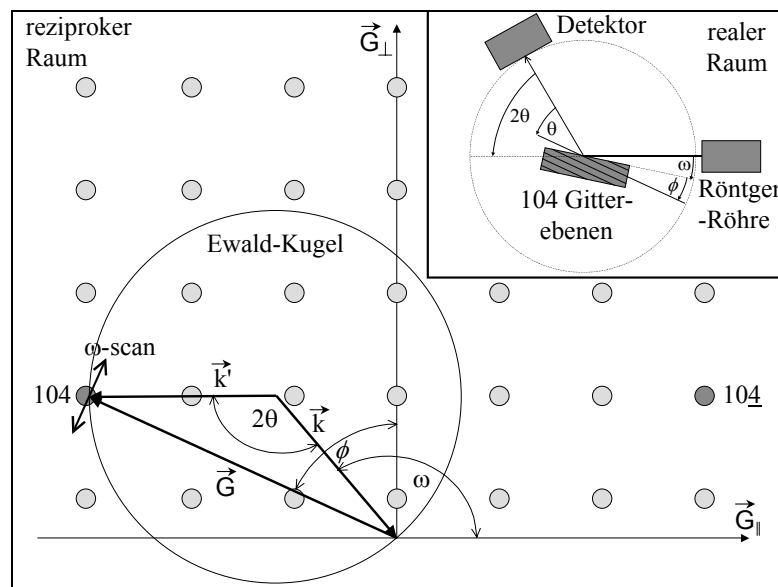


Abbildung 4.3. Scan-Symmetrie beim asymmetrischen x-Bond Scan im reziproken und realen Raum. Der symmetrische Scan verlief entlang der \vec{G}_\perp -Achse.

Im reziproken Raum entspricht der ω -Scan der Bewegung des reziproken Gittervektors $\vec{G} = \vec{k}' - \vec{k}$ entlang eines Kreises mit Mittelpunkt am Ursprung. \vec{k} ist der Wellenvektor des einfallenden Röntgenstrahls und \vec{k}' der Wellenvektor der reflektierten elektromagnetischen Welle. In Abbildung 4.3 ist der einfacheren Darstellung halber das geometrisch äquivalente Ebenenpaar (104) und ($10\bar{4}$) markiert. Wird die Position dieser beiden reziproken Gitterpunkte bestimmt, kann aus dem Tangens des Richtungswinkels ϕ des reziproken Gittervektors $\vec{G} = \vec{k}' - \vec{k}$ der Quotient aus dem $1/c$ Anteil \vec{G}_\perp und dem $1/a$ Anteil \vec{G}_\parallel gewonnen werden.

^c Natürlich können mehr Scans verwendet werden. Die beobachtete Reflexionsintensität der verschiedenen Gitterebenscharen bietet jedoch eine Beschränkung auf die stärksten Reflexionen.

So findet man unter Berücksichtigung des gemessenen reziproken Gitterpunktes den Quotienten c/a :

$$\frac{c}{a} = \tan \phi \sqrt{\frac{3}{4} \left(\frac{l^2}{h^2 + k^2 + hk} \right)} \quad (4.19)$$

Wären die relaxierten Werte c_0 und a_0 bekannt könnten sie mit den gemessenen Werten c und a verglichen werden, und die Verzerrung des Films wäre offenbar. Nun muss aber auch noch die Filmzusammensetzung x festgestellt werden. Mit Hilfe linearer Regression für den Ausdruck $X=c/a \cdot Y$ mit

$$X = \tan \phi \quad \text{und} \quad Y = \sqrt{\frac{3}{4} \left(\frac{l^2}{h^2 + k^2 + hk} \right)} \quad (4.20)$$

findet man den Quotienten c/a aus den sechs Datenpunkten der 3 Ebenenpaare. Üblicherweise wird in erster, linearer Näherung die Zusammensetzung x des $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ Films bestimmt nach

$$x \cong \frac{e_{\perp} + \varepsilon_t e_{\parallel}}{f_c + \varepsilon_t f_a}, \quad (4.21)$$

wobei analog zu Gl.(4.14) die Größen $e_{\perp} = \frac{c_{\text{AlGaN}} - c_{\text{GaN}}}{c_{\text{GaN}}}$ und $e_{\parallel} = \frac{a_{\text{AlGaN}} - a_{\text{GaN}}}{a_{\text{GaN}}}$ die

Verzerrung des Mischkristalls relativ zum relaxierten *bulk*-GaN angeben, und

$f_c = \frac{c_{\text{AlN}} - c_{\text{GaN}}}{c_{\text{GaN}}}$ und $f_a = \frac{a_{\text{AlN}} - a_{\text{GaN}}}{a_{\text{GaN}}}$ die vertikalen und lateralen Gitterfehlanspassungen

zwischen AlN und GaN angeben. Der von der a auf die c -Achse rückwirkende Stress wird in Gl.(4.21) über die tetragonale Verzerrung ε_t nach Gl.(4.15) berücksichtigt. Die Bestimmung der Zusammensetzung nach Gl.(4.21) setzt voraus, dass der Quotient c/a und die tetragonale Verzerrung identisch sind für AlN und GaN und seine relaxierten $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ Mischformen.

Wenn man nun aber auch noch eine lineare Abhängigkeit zwischen Zusammensetzung x und c/a sowie ε_t einbezieht, erhält man eine rekursive Gleichung, wenn man Gl.(4.21) mit

$\left(\frac{c_{\text{GaN}}}{a_{\text{GaN}}} \right)$ multipliziert:

$$x \cong \frac{e_{\perp} \cdot \left(\frac{c}{a} \right)_{\text{GaN}} + \frac{c - c_0}{c_0} \cdot \frac{a_0}{a - a_0} \cdot e_{\parallel} \cdot \left(\frac{c}{a} \right)_{\text{GaN}}}{f_c \cdot \left(\frac{c}{a} \right)_{\text{GaN}} + \frac{c - c_0}{c_0} \cdot \frac{a_0}{a - a_0} \cdot f_a \cdot \left(\frac{c}{a} \right)_{\text{GaN}}}. \quad (4.22)$$

In der Näherung der konstanten tetragonalen Verzerrung entsprechen c_0 und a_0 den relaxierten GaN-Werten c_{GaN} und a_{GaN} . Der Term $\frac{a_0}{c_0} \cdot \left(\frac{c}{a}\right)_{\text{GaN}}$ verschwindet. Jetzt sei ε_t nicht mehr konstant: c_0 und a_0 müssen jetzt mit relaxierten AlGaN-Werten c_{AlGaN} und a_{AlGaN} des Mischkristalls identifiziert werden. Gleichung (4.22) wandelt sich in den genaueren Ausdruck

$$x = \frac{e_{\perp} \cdot \left(\frac{c}{a}\right)_{\text{GaN}} + \frac{c - c_{\text{AlGaN}}}{a - a_{\text{AlGaN}}} \cdot e_{\parallel} \cdot \left(\frac{c}{a}\right)_{\text{GaN}}}{f_c \cdot \left(\frac{c}{a}\right)_{\text{GaN}} + \frac{c - c_{\text{AlGaN}}}{a - a_{\text{AlGaN}}} \cdot f_a \cdot \left(\frac{c}{a}\right)_{\text{GaN}}} \quad (4.23)$$

Die jeweils zweiten Terme in Zähler und Nenner können mit $\frac{a_{\text{AlGaN}}}{c_{\text{AlGaN}}} \cdot \left(\frac{c}{a}\right)_{\text{AlGaN}} = 1$ erweitert werden. Innerhalb der Grenzen der linearen Vegard-Beziehung lautet damit die exakte Gleichung für die Kristallzusammensetzung x :

$$x = \frac{e_{\perp} \cdot \left(\frac{c}{a}\right)_{\text{GaN}} + \varepsilon_{\text{tetr}}(x) \cdot e_{\parallel} \cdot \left(\frac{c}{a}\right)_{\text{AlGaN}}}{f_c \cdot \left(\frac{c}{a}\right)_{\text{GaN}} + \varepsilon_{\text{tetr}}(x) \cdot f_a \cdot \left(\frac{c}{a}\right)_{\text{AlGaN}}} \quad (4.24)$$

mit

$$\varepsilon_{\text{tetr}}(x) = \frac{c - c_{\text{AlGaN}}}{c_{\text{AlGaN}}} \cdot \frac{a_{\text{AlGaN}}}{a - a_{\text{AlGaN}}} = \frac{2C_{13\text{AlGaN}}}{C_{33\text{AlGaN}}} \quad (4.25)$$

Gl.(4.24) kann durch eine selbstkonsistente, rekursive Tabellenkalkulationsanweisung einschließlich der linearen Extrapolation der Elastizitätsmoduln C_{ij} [26] zwischen GaN und AlN gelöst werden. Die gleichzeitige Feststellung von Verzerrung und Zusammensetzung ist erreicht, wenn jetzt noch die gemessenen Gitterkonstanten mit den relaxierten Werten

$$\begin{aligned} c_{\text{AlGaN},0} &= c_{\text{AlN},0} + x(c_{\text{GaN},0} - c_{\text{AlN},0}) \\ a_{\text{AlGaN},0} &= a_{\text{AlN},0} + x(a_{\text{GaN},0} - a_{\text{AlN},0}) \end{aligned} \quad (4.26)$$

analog Gl.(4.14) verglichen werden:

$$e_{\perp} = \frac{c_{\text{AlGaN}} - c_{\text{AlGaN},0}}{c_{\text{AlGaN},0}} \quad \text{und} \quad e_{\parallel} = \frac{a_{\text{AlGaN}} - a_{\text{AlGaN},0}}{a_{\text{AlGaN},0}} \quad (4.27)$$

4.4 Übergitterspektrenanalyse

Bragg-Spiegel stellen für die Röntgenbeugungstheorie ein Übergitter dar. Die Abfolge der Halbperioden bestehend aus epitaktischen Schichten von AlN und AlGaN bildet dem Design folgend eine periodische Struktur, die per XRD sehr gut zu analysieren ist. Aus

Übergitterbeugungsbildern lassen sich weitreichende Rückschlüsse über die zugrunde liegenden Proben, hier DBRs, ziehen. Die Position der Peaks, ihre Halbwertsbreite (*full width at half maximum*, FWHM), und die relativen Intensitäten lassen auf Gitterkonstanten, Periodenlänge des Übergitters, Materialzusammensetzung bei Mischkristallen, Grenzschichtqualität und Verzerrung innerhalb der Halbperioden schließen [95].

4.4.1 Qualitative Betrachtung

Bei der Beugung eines Röntgenstrahls an einem Übergitter ergibt sich ein Beugungsbild, das aus der Faltung der zugrunde liegenden periodischen Strukturen hervorgeht. Die einzelnen Beiträge zum Gesamtbeugungsbild stammen nach Abbildung 4.4 von überlagerten Bragg-Ebenen verschiedenen Abstands: die Periodenlänge L , die mit N Perioden bestimmte Übergitterdicke NL , die Halbperiodendicken L_A (AlN-Schichtdicke) und L_B (AlGaN-Schichtdicke), sowie deren Einzelebenenabstand d_A (entsprechend c_{AlN}) und d_B (entsprechend c_{AlGaN}). Es wird die symmetrische Reflexion betrachtet. Symmetrische Reflexion liegt für Ebenenscharen mit Miller-Indizes $h=0, k=0$ und l beliebig vor.

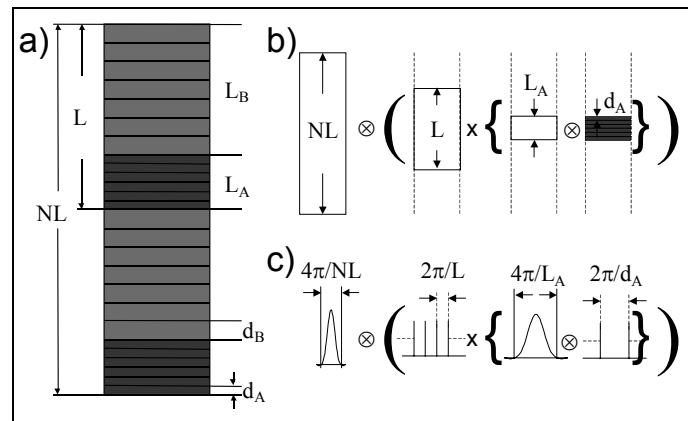


Abbildung 4.4. Zur Entstehung des Übergitterbeugungsbildes. Dargestellt ist a) die zugrundeliegende Übergitterstruktur eines DBRs und b) symbolisch die Faltungsoperationen der verschiedenen Periodizitäten und c) deren Fourier-Transformationen.

Die Fourier-Transformierte der Elektronenanzahldichte des Übergitters spannt den reziproken Raum auf. Die Fourier-Transformation der gerade beschriebenen Gitterstruktur stellt ein Beugungsbild des Gitters dar. Die Untergitter A (hier AlN) und B (hier AlGaN) müssen getrennt betrachtet werden, falls $d_A \neq d_B$. Der durch d_A (oder d_B) gegebene Gitterabstand definiert die Position der Bragg-Reflexion nullter Ordnung nach der Bragg-Bedingung Gl.(5.1). Die Fourier-Transformierte der Halbperiodendicke L_A (L_B) ist eine Gaußfunktion mit

Halbwertsbreite $4\pi/L_A$ ($4\pi/L_B$). Die Gaußfunktion ist die Einhüllende der Übergittersatellitenpeaks höherer Bragg-Ordnung. Die Satellitenpeaks entstehen durch die N Wiederholungen der Halbperiode L_A (L_B). Dadurch gibt es Interferenz zwischen den einzelnen Schichten A (B). Wie bei dem einfachen Fall der allgemeinen Wellenbeugung am Gitter, treten zwischen den Satellitenpeaks jeweils $N-2$ kleinere Intensitätsmaxima auf. Im Experiment sind diese allerdings nur für sehr hochwertige Heterostrukturen nachzuweisen [94]. Jeder einzelne Satellitenpeak muss noch mit der Fourier-Transformierten der Gesamtübergitterdicke NL gefaltet werden.

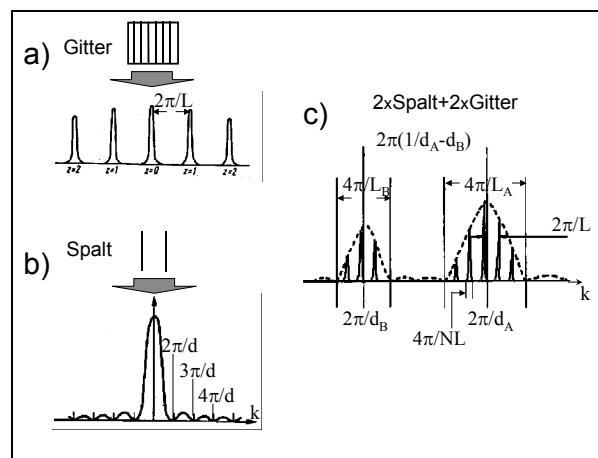


Abbildung 4.5. Zur Entstehung des Übergitterbeugungsbildes. Die Beugung am a) Gitter und b) am Spalt überlagern sich für ein Übergitter zweier Materialien verschiedener Gitterkonstanten zu zwei Übergitterbeugungsbildern mit unabhängigen nullten Bragg-Ordnungen.

Dabei handelt es sich wiederum um eine Gaußfunktion mit Halbwertsbreite $4\pi/NL$, welche die FWHM der Satellitenpeaks höherer Ordnung bestimmt. Für den Fall eng beieinander liegender Gitterkonstanten und vollständiger Verzerrung der Halbperioden untereinander überlagern sich die beiden Beugungsbilder der Untergitter A und B nach Abbildung 4.5 und es wird nur *ein* Beugungsbild auf Grundlage einer mittleren Gitterkonstanten d_{avg} entstehen. Das ist der Fall für alle vermessenen Proben.

4.4.2 Peak Positionen des Übergitterbeugungsbildes

Der nachfolgenden Analyse ist wiederum ein Übergitter nach Abbildung 4.4 vorausgesetzt. Die Periodenlänge ist $L=L_A+L_B$. Der gemittelte Bragg-Ebenenabstand für symmetrische Reflexe entspricht der gemittelten Gitterkonstanten der beiden Halbperioden

$$d_{avg} = \frac{d_A L_A + d_B L_B}{L(d_A + d_B)}. \quad (4.28)$$

Das Übergitter sei auf einem Substrat mit Ebenenabstand d_{Sub} für den gleichen, betrachteten Reflex abgeschlossen. Die Bragg-Bedingung Gl.(4.1) kann wie auf den Einzelebenenabstand auch auf die Periodenlänge des Übergitters angewendet werden:

$$m\lambda = 2L \sin \theta_m . \quad (4.29)$$

Hier ist m die Bragg-Ordnung des Satellitenpeaks, für den Gl.(4.20) erfüllt ist. Für einen anderen Bragg-Index n gilt Gl.(4.29) natürlich auch. Durch Differenzenbildung erhält man

$$2L \sin \theta_n = \lambda(n - m) + 2L \sin \theta_m . \quad (4.30)$$

Dabei sei nun n speziell die Anzahl der Monolagen innerhalb einer Periode $L=nd_{avg}$. Dann wird Gl.(4.1) zu

$$\lambda = 2d_{avg} \sin \theta_{d_{avg}} = 2\frac{L}{n} \sin \theta_n . \quad (4.31)$$

Die beiden Winkel θ sind identisch. Damit folgt mit Kombination der letzten beiden Gleichungen

$$L \frac{\lambda}{d_{avg}} = \lambda(n - m) + 2L \sin \theta_m . \quad (4.32)$$

Die gesuchte Übergittergleichung ergibt sich nach Division mit L und λ :

$$\frac{2 \sin \theta_m}{\lambda} = \frac{1}{d_{avg}} + \frac{m - n}{L} . \quad (4.33)$$

Dabei ist θ_m die Satellitenpeakposition der Bragg-Ordnung m . Die Position des Satellitenpeaks nullter Ordnung fällt definitionsgemäß mit derjenigen des Kristallgitters bei $\theta_{d_{avg}}$ zusammen. Um die Definition zu erfüllen, müssen die Peaks in Gl.(4.33) umbenannt werden. Mit ganzzahligem $q=m-n$ ergibt sich letztendlich für die Übergittergleichung

$$\frac{2 \sin \theta_q}{\lambda} = \frac{1}{d_{avg}} + \frac{q}{L} . \quad (4.34)$$

Um die Peaks eines Beugungsbildes einer Probe, die ein Übergitter enthält, richtig zuzuordnen, muss man nach Gl.(4.34) sowohl die mittlere Gitterkonstante als auch die Periodenlänge des Übergitters kennen. Das ist i.A. nicht der Fall, da dies gerade die Größen sind, die es zu bestimmen gilt. Trägt man die Peakpositionen gegen den Ausdruck $2\sin\theta_q/\lambda$ auf, muss sich nach Gl.(4.34) eine Gerade ergeben. Der Fit $y=sx+b$ mit $y=2\sin\theta_q/\lambda$, $x=q$, y -Achsenabschnitt $b=1/d_{avg}$ und Steigung $s=1/L$ ergibt eine Gerade nach Abbildung 4.6.

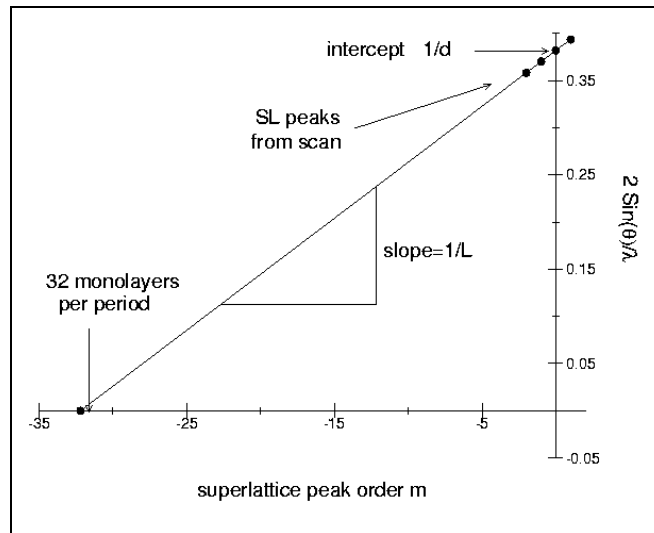


Abbildung 4.6. Übergitteranalyse nach Gl.(5.48). Eine Beispielstruktur [94] hat die Periodenlänge $L=84,25\text{\AA}$ und gemittelten Ebenenabstand für die $\{002\}$ -Ebenenschar $d_{avg}=2,62\text{\AA}$.

Für $2\sin\theta_q/\lambda=0$ in Gl.(4.34) gilt $-q=L/d_{avg}=n$, wobei n hier die Anzahl der Monolagen je Periode L bezeichnet. Der x-Achsenabschnitt des Fits bestimmt demnach die Anzahl der Monolagen je Periode des Übergitters. Da die physikalischen (definitionsgemäßen) Satellitenordnungen m zunächst nicht bekannt sind, müssen Startwerte für den Fit für $1/L$ und $1/d_{avg}$ vorgegeben werden. Die Berechnung kann durch Fehlerbalken ergänzt werden, die die instrumentale Auflösung für θ beinhalten. Die gemittelte Gitterkonstante d_{avg} könnte man natürlich auch „direkt“ aus der Position des Satellitenpeaks nullter Ordnung ablesen, wenn dieser eindeutig identifiziert werden kann. Die Bestimmung von d_{avg} durch Gl.(4.34) hat jedoch den Vorteil, dass mehrere Peakpositionen in die Berechnung eingehen, und sie damit zuverlässiger wird.

Ist die Gitterkonstante des Übergitters bekannt, lässt sich die vertikale Verzerrung ε_{zz} des Gesamtkristalls feststellen. Im in dieser Arbeit vorliegenden Spezialfall, dass eine Halbperiode ($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$) ein Mischkristall ist, welcher das Material der zweiten Halbperiode (AlN) enthält, lässt sich darüber hinaus der Mischanteil x_L des AlN an einer Periode bestimmen. Die vertikale Verzerrung nach Gl.(5.37) ist

$$\varepsilon_{zz} = \frac{d_{avg}}{d_{Sub}} - 1 \quad \text{und} \quad d\varepsilon_{zz} = \sqrt{2} \frac{d(d_{avg})}{d_{avg}}. \quad (4.35)$$

Der Fehler $d\varepsilon_{zz}$ hängt natürlich vom Fehler in der Bestimmung von d_{avg} ab. Für den konkreten Fall einer Halbperiode AlN und einer Halbperiode $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, die auf einem AlN Substrat gewachsen sind, ergibt sich die Kristallzusammensetzung der ganzen Periode in erster Näherung entsprechend Gl.(4.26) für relaxierte Gitterkonstanten nach Vegard's Gesetz:

$$1 - x_{L,rel} = \frac{d_{avg} - d_{Sub}}{d_{GaN} - d_{sub}} = \frac{\varepsilon_{zz}}{d_{GaN} / d_{Sub} - 1} \quad \text{und} \quad dx_{L,rel} = x_{L,rel} \frac{d\varepsilon_{zz}}{\varepsilon_{zz}}. \quad (4.36)$$

Relaxiert heißt, dass die lateralen a -Gitterkonstanten als *bulk*-wertig angenommen werden, und somit keine Spannung eines Kristallgitters auf das Nachbarmaterial wirkt. Der Fehler ist demgemäß auch nur proportional der gemessenen Verzerrung in vertikaler Richtung. Für den Fall abhängiger a -Gitterparameter im Übergitter, d.h. der laterale Gitterparameter wird durch die ganze Probe hindurch als unveränderter Substratwert angenommen, gilt:

$$1 - x_{L,str} = \frac{\varepsilon_{zz}}{\left(\frac{d_{GaN}}{d_{Sub}} - 1\right) \varepsilon_t} \quad \text{und} \quad dx_{L,str} = x_{L,str} \sqrt{\left(\frac{d\varepsilon_{zz}}{\varepsilon_{zz}}\right)^2 + \left(\frac{0,1}{\varepsilon_t}\right)^2}. \quad (4.37)$$

Der Einfluss der angepassten lateralen Gitterkonstanten steckt im Korrekturfaktor der tetragonalen Verzerrung nach Gl.(4.15). Die letzte Formel Gl.(4.37) entspricht Gl.(4.21) und bildet auch die Grundlage für die erweiterte x-Bond-Methode, wie sie weiter oben schon beschrieben wurde.

4.5 Quantitativ-qualitative DBR-Spektrenauswertung

In Abschnitt 4.4.2 wurde gezeigt, dass man die gemittelten Gitterparameter und die Periodenlänge eines DBR-Übergitters anhand der Positionen der Bragg-Beugungsordnungen im Röntgenspektrum feststellen kann. Es können anhand des üblicherweise ausgeführten, symmetrischen (002) $\theta/2\theta$ Scans^d jedoch keine Aussagen über die Gitterparameter und Längen der Halbperioden L_A (AlGaN) und L_B (AlN) gemacht werden. Somit können auch keine materialbezogenen Verzerrungsangaben gemacht werden, weil nur die gemittelte Gitterkonstante der ganzen Periode $L=L_A+L_B$ bekannt ist. Mit der folgend beschriebenen, gemischten, quantitativ-qualitativen Auswertungsmethode wird dieser Mangel unter zu Hilfenahme von Referenzproben- und Wachstumsinformationen beseitigt.

Unmittelbar vor jedem DBR Wachstumsprozess wurde eine zweischichtige Referenzprobe hergestellt. Auf einem dicken AlN Puffer wurde eine AlGaN Schicht mit gleichen Materialflüssen und unter gleichen Wachstumsbedingungen abgeschieden wie im folgenden Prozess für die DBR Herstellung. Die anschließende SE-Messung liefert die AlN und AlGaN Schichtdicken. Somit sind Schätzwerte für die Wachstumsgeschwindigkeiten g_A und g_B (in

^d Weil die reflektierte Intensität des Kristalls auf das breit gefächerte Übergitterbeugungsbild verteilt werden muß, sind andere Reflexe bei derzeitiger Materialqualität meistens zu schwach um quantitativ verwertbare Ergebnisse zu liefern.

Monolagen je Sekunde - *number of monolayers/s*; nml/s) der Halbperioden L_A und L_B gegeben. Die anschließende, erweiterte x-Bond Vermessung der Referenzprobe liefert die verzerrungsbereinigte Materialzusammensetzung x , die mit jener innerhalb der AlGaN-Halbperiode L_A identisch ist. Mit gefundenem x und Gl.(4.26) und Gl.(4.21) können die relaxierten und maximal verspannten Grenzfälle für den AlGaN c -Gitterparameter berechnet werden. Die Übergitteranalyse eines symmetrischen Scans der DBR-Probe liefert nach Abbildung 4.6 die Periodenlänge L . Das Problem besteht nun darin, einen geeigneten Kandidaten für die nullte Beugungsordnung aus der Vielzahl der Übergitter-Peaks herauszufinden (Abbildung 4.7). Eine erste Eingrenzung gelingt über die *quantitative* Abschätzung der Grenzfälle des individuell relaxierten Gitters und des maximal verspannten Falls.

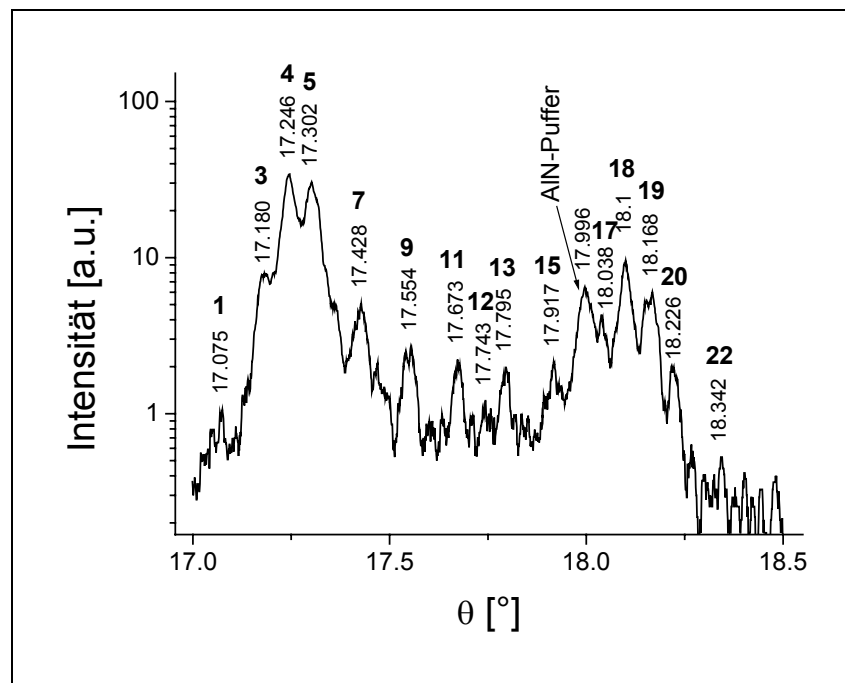


Abbildung 4.7. (002) DBR $\theta/2\theta$ -Scan am Beispiel des Spiegels D2d (siehe Abschnitt 6.3). Die Positionen der Übergitterreflexionen sind identifiziert und vorläufige Bragg-Peak-Indizes sind vergeben.

Im relaxierten Gitter entsprechen laterale und vertikale Gitterkonstanten den *bulk*-Werten, und sind mithin entkoppelt. Im maximal verspannten Fall nimmt das Übergitter die laterale Gitterkonstante des Substrats an, in diesem Fall also die des dicken AlN Puffers unterhalb des DBRs. Das heißt, die AlN-Halbperiode bleibt weiterhin relaxiert, während die AlGaN-Halbperiode entsprechend ε_t verzerrt wird. Der reale Fall wird, wenn wie hier die kritischen Schichtdicken für AlN und AlGaN in der jeweiligen Halbperiode überschritten sind, eine

teilweise Relaxation des Übergitters sein. Das AlGaN wird relativ zum AlN relaxieren und dann das DBR-Gitter in seiner Gesamtheit. Es gilt also zunächst die begrenzenden, mittleren Gitterparameter $c_{avg,rel}$ und $c_{avg,str}$ einer Periode L zu bestimmen. Zwischen den zugehörigen Bragg-Winkeln θ_{rel} und θ_{str} sollte der Übergitter-Peak nullter Ordnung zu finden sein.

Mit den von der Referenzprobe gefundenen Wachstumsraten g_A und g_B und den durch das Design festgelegten Wachstumszeiten t_A und t_B (Abschnitt 3.4) der Halbperioden ist eine erste Abschätzung (*estimate*) der zu erwartenden Periodenlänge für den relaxierten und verzerrten (*strained*) Fall möglich^e:

$$\begin{aligned} L_{est,rel} &= \frac{c_{AlGaN,0}}{2} t_A \cdot g_A + \frac{c_{AlN,0}}{2} t_B \cdot g_B \\ L_{est,str} &= \frac{c_{AlGaN,str}}{2} t_A \cdot g_A + \frac{c_{AlN,0}}{2} t_B \cdot g_B \end{aligned} \quad (4.38)$$

Die Anzahl der Monolagen der Halbperioden A und B lässt sich mit Gleichungen Gl.(4.38) und Normierung mit der aus der Übergitteranalyse gefundenen wahren Periodenlänge L für beide Verzerrungsfälle finden^f:

$$\begin{aligned} nml_{A,rel} &= t_A \cdot g_A \frac{L}{L_{est,rel}} & nml_{A,str} &= t_A \cdot g_A \frac{L}{L_{est,str}} \\ nml_{B,rel} &= t_B \cdot g_B \frac{L}{L_{est,rel}} & nml_{B,str} &= t_B \cdot g_B \frac{L}{L_{est,str}} \end{aligned} \quad (4.39)$$

Da nun die Anzahl der Monolagen und die vertikalen Gitterkonstanten für die Grenzfälle bekannt sind, kann die mittlere Gitterkonstante einer vollen Periode L berechnet werden:

$$\begin{aligned} c_{avg,rel} &= \frac{c_{AlGaN,0} \cdot nml_{A,rel} + c_{AlN,0} \cdot nml_{B,rel}}{nml_{A,rel} + nml_{B,rel}} \\ c_{avg,str} &= \frac{c_{AlGaN,str} \cdot nml_{A,str} + c_{AlN,0} \cdot nml_{B,str}}{nml_{A,str} + nml_{B,str}} \end{aligned} \quad (4.40)$$

Mit $c_{avg,rel}$ und $c_{avg,str}$ sind nach der Bragg-Bedingung Gl.(4.34) mit $q=0$ die dem wahren nullten Beugungs-Peak nächstliegenden Winkel gegeben. Für eine erfolgreiche Simulation des aufgenommenen XRD-Signals werden die wahren Werte der Gitterparameter der Halbperioden und des AlN-Puffers benötigt. Hier macht man sich die Tatsache zu Nutze, dass die Messkurve eine Faltung verschiedener Gitterbeugungen beschreibt (Abschnitt 4.4.1). Die Einhüllende des Scans nach Abbildung 4.7 weist zwei Maxima auf: eines gibt den Bragg-Winkel des zu Grunde liegenden AlGaN-Kristallgitters an, das zweite denjenigen des AlN-

^e Man beachte, daß eine vertikale Gitterkonstantenlänge c zwei Monolagen des *hcp*-Gitters enthält.

^f Die Normierung ist notwendig, um Wachstumsratenabweichungen zwischen Referenzprobe und DBR Prozeß aufzufangen.

Gitters (Abbildung 4.8). Derjenige Peak, der nicht in die äquidistante Struktur der Übergitter-Peaks passt und nahe dem Wert für relaxiertes AlN liegt ($18,013^\circ$) muss das Signal des dicken AlN-Puffers wiedergeben. Der Puffer-Peak muss von der Analyse der Einhüllenden ausgenommen werden. Somit sind nun auch die vertikalen Gitterkonstanten der Halbperioden und des AlN-Puffers bekannt. Jetzt kann das Signal mit der kinematischen Streutheorie simuliert werden.

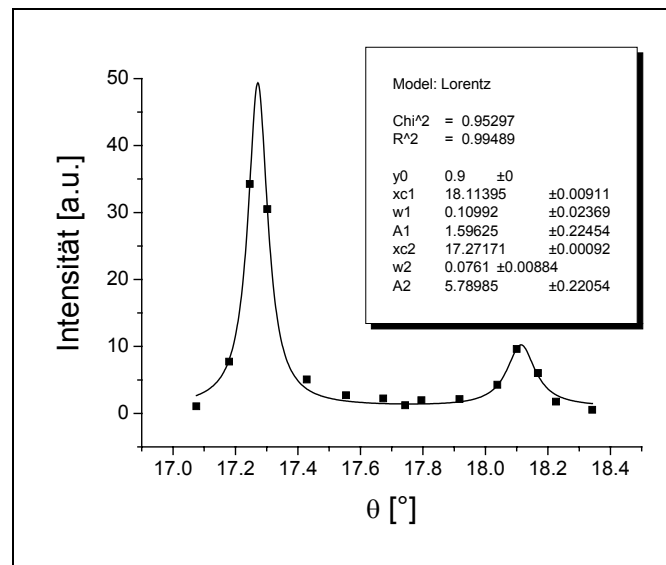


Abbildung 4.8. Doppel-Lorentz-Fit an die Einhüllende des XRD-Signals aus Abbildung 4.7. Die Quadrate geben die zuvor markierten Peak-Positionen wieder. Die Peaks (xc1, xc2) der Fitkurve geben über die Bragg-Bedingung die Gitterkonstanten von AlGaN-Halbperiode (linker Peak) und AlN-Halbperiode (rechter Peak) an.

Für die vorliegenden Proben liegen üblicherweise 2-3 Kandidaten für den nullten Übergitter-Peak im Rahmen des durch die zuvor gemachte Verzerrungsabschätzung Erlaubten. Der *qualitative* Schritt der DBR Analyse besteht darin, dasjenige Simulationsspektrum auszuwählen, welches das gemessene Signal am besten wiedergibt. Peaks zur Mitte des Spektrums müssen stärker bewertet werden, weil mangelnde Übergitterperiodizität und fehlende Grenzflächenschärfe den Peaks am Rand des Spektrums Intensität nehmen [95]. Das soll hier aber nicht betrachtet werden. Abbildung 4.9 bis Abbildung 4.11 zeigen drei Simulationen desselben DBR Scans. Puffer-Peak Position, Einhüllende, Abstand und Position der Übergitter-Peaks sind bei allen Simulationen gleich und durch die quantitativen Ergebnisse vorgegeben. Durch die Wahl der nullten Beugungsordnung wird die gemittelte Gitterkonstante c_{avg} verändert. Da die Halbperiodengitterkonstanten durch die Einhüllendenanalyse festliegen, müssen die Halbperiodenlängen angeglichen werden.

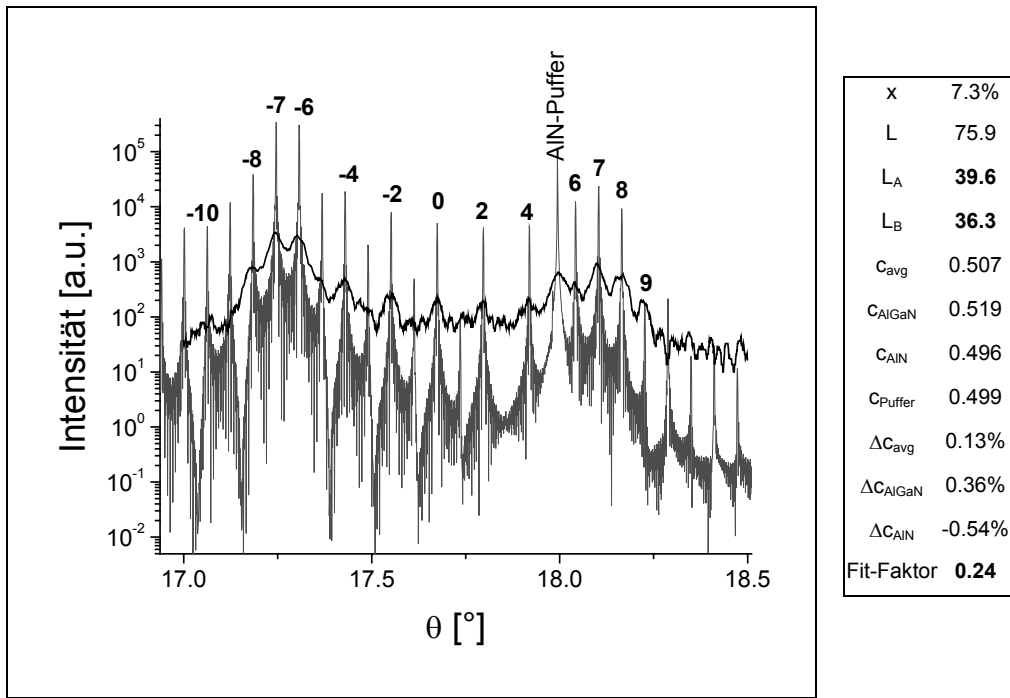


Abbildung 4.9. (002) DBR $\theta/2\theta$ -Simulation am Beispiel des Spiegels D2d. Bester Fit unter der Annahme eines nahezu relaxierten DBRs. Fit-Parameterlängen in nm. Verzerrungen bzgl. relaxierten *bulk*-Werten.

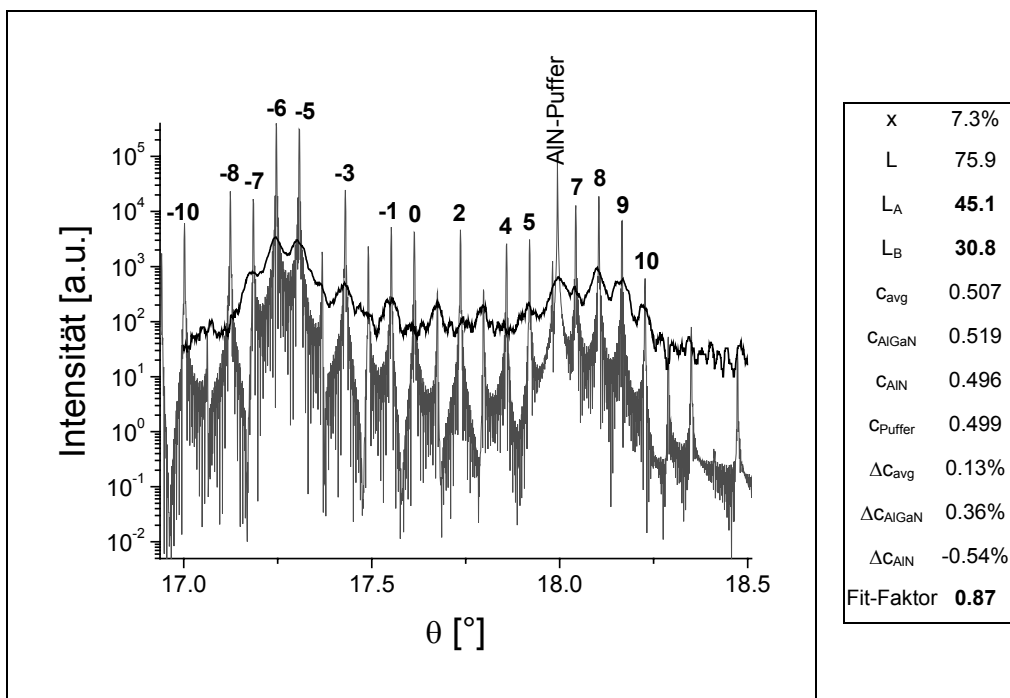


Abbildung 4.10. (002) DBR $\theta/2\theta$ -Simulation am Beispiel des Spiegels D2d. Ungenauer Fit unter der Annahme eines stark verzerrten DBRs. Fit-Parameterlängen in nm. Verzerrungen bzgl. relaxierten *bulk*-Werten.

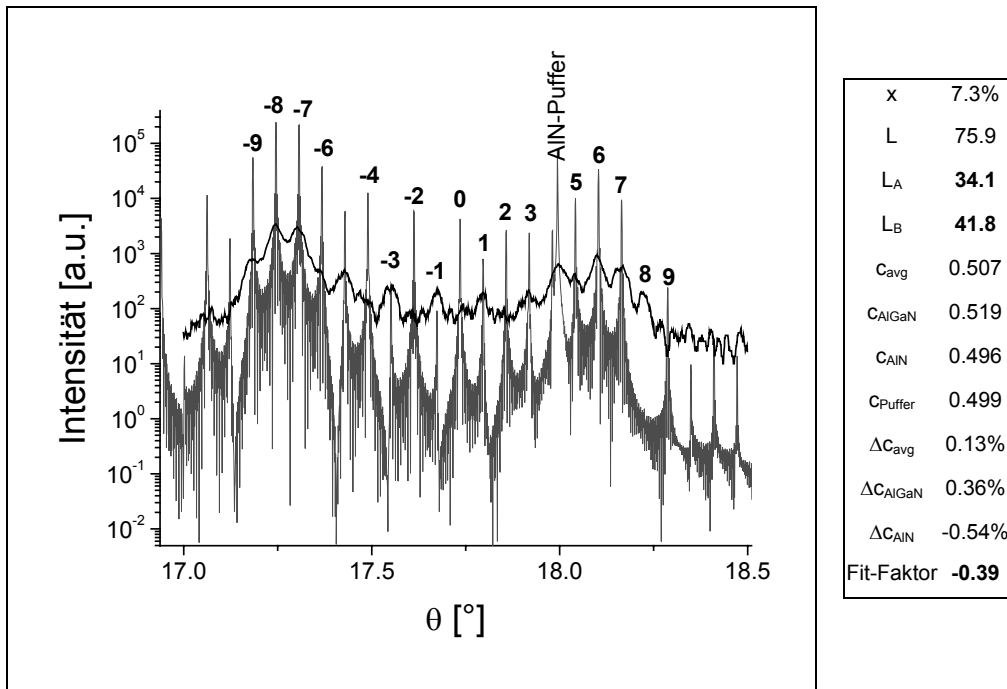


Abbildung 4.11. (002) DBR $\theta/2\theta$ -Simulation am Beispiel des Spiegels D2d. Ungenauer Fit unter der Annahme überrelaxierten DBRs. Fit-Parameterlängen in nm. Verzerrungen bzgl. relaxierten *bulk*-Werten.

Der in der Fit-Parameterliste aufgenommene Fit-Faktor ist lediglich ein Maß für die Abweichung der gemittelten Gitterkonstante von den Grenzwerten nach Gl.(4.40). Ein Wert von Null entspricht $c_{avg,rel}$, ein Wert von eins entspricht $c_{avg,str}$.

Der dritte Fit nach Abbildung 4.11 liegt außerhalb der vorgegebenen Begrenzung (der Fit-Faktor ist negativ), und liefert entsprechend die schlechteste Übereinstimmung mit der Messkurve. Alle ungeraden Bragg-Ordnungen werden deutlich unterschätzt, während die geraden Ordnungen überschätzt werden. In Abbildung 4.10 ist der Fehler kleiner, aber ebenso deutlich. Die Peak-Intensitätsverhältnisse stimmen einfach nicht. Anders Abbildung 4.9: hier stimmen die Peak-Verhältnisse sehr genau überein. Folglich können die zugehörigen Fit-Parameter, speziell die für die optische Simulation wichtigen Halbperiodenlängen, für den Messpunkt als korrekt betrachtet werden.

5 Vorstudien für die DBR-Herstellung an GaN-, AlGaN- und AlN-Einzelschichten

Bevor die DBR-Herstellung beginnen kann, muss untersucht werden, welche Einzelschichten sich zum Aufbau eines Schichtstapels eignen. Zunächst werden GaN-Einzelschichten betrachtet. Durch Einführung von dünnen AlN-Zwischenschichten (*high temperature AlN interlayers*; HT-AlN-IL) konnte eine Reduzierung der TDs erreicht werden, und so die Materialqualität deutlich gesteigert werden [10]. Man wird sehen, dass ein analoges Verhalten für die AlN-Halbperioden eines AlN/AlGaN-DBRs auftritt. In einem zweiten Schritt werden AlGaN-Einzelschichten unterschiedlicher Zusammensetzung untersucht, um geeignete Wachstumsbedingungen für die beiden Halbperioden eines DBRs zu finden.

5.1 HT-AlN-Zwischenschichten in GaN-Einzelschichten

Das Hauptproblem der Gruppe-III-Nitridherstellung ist das fehlende homoepitaktische Substrat. Die zwangsläufig auftretende Gitterfehlanspassung bei Verwendung anderer Substrate (wie Saphir) führt auf eine große Zahl stressinduzierter Gitterfehler. Besonders die am häufigsten auftretenden *a*-Stufenversetzungen mit Burger-Vektor $\vec{b} = 1/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$ und Mischformen mit *c*-Schrauben- und Stufenversetzungen mit $\vec{b} = 1/3\langle 11\bar{2}3 \rangle$ erschweren die Elektronenleitung im Halbleitermaterial und beeinträchtigen z.T. die optische Materialqualität [96,97]. Um die Reduzierung der TDs zu erreichen, können verschiedene Methoden genutzt werden. Die für MOCVD-Wachstum weitverbreitetste ist *lateral epitaxial overgrowth* (LEO). Hierbei wird eine Maske aus SiO₂ oder SiN auf defektreiches GaN aufgebracht, und im Folgenden die Maske überwachsen. Dabei ergeben sich nahezu defektfreie Bereiche über den Maskenarealen. Für MBE ist LEO ungeeignet, da ein anderer Wachstumsmodus vorliegt. Die deutlich niedrigere Wachstumstemperatur ($\sim 700^\circ\text{C}$ anstelle von $\sim 1000^\circ\text{C}$) bedeutet eine deutlich reduzierte Metalldesorption von der Probe. In Folge wächst amorphes GaN auf dem Maskenbereich. Hinzu kommt, dass das laterale Wachstum gegenüber dem vertikalen deutlich zu langsam ist, um nennenswertes Überwachsen einer Maske zu ermöglichen. Die für die MBE verwendbaren Strategien greifen daher auf verschiedene Puffer zurück: Doppelpuffer [98] und Tieftemperaturpuffer [99] kamen bisher zum Einsatz. Yang et al. gelang es durch relativ weit voneinander entfernte ($>1\mu\text{m}$) Zwischenschichten (*interlayer*; IL) Mosaizität, Elektronenbeweglichkeit und Elektronendichte von GaN-Filmen zu verbessern [100]. Ein ähnlicher Erfolg stellte sich für Li et al. ein [101]: Mit Hilfe einer dicken (20-60nm) Tieftemperatur-AlN-Zwischenschicht konnten elektronische Eigenschaften von AlGaN/GaN-Heterostrukturen verbessert werden. Mit aufwendigeren GaN/AlGaN-

Übergitterpufferstrukturen haben Nikishin et al. die TD-Reduzierung für Strukturen auf Si(111)-Substraten betrieben [102]. Der in unserer Arbeitsgruppe entwickelte Ansatz [10] von Hochtemperatur-AlN-Zwischenschichten (HT-AlN-IL) hat ebenfalls schon vielversprechende Resultate gezeigt [103,96]. Für die Deposition eines HT-AlN-ILs braucht keine Temperaturrampe gefahren und keine Wachstumsunterbrechung gemacht zu werden. Nachteile solcher Prozessschritte (unbekannte Oberflächenrekonstruktion, erneute Nukleation, thermische Schädigung) werden also vermieden [104].

In diesem Abschnitt sollen mittels MBE produzierte Ga-polare und N-polare GaN-Schichten auf Saphirsubstraten untersucht werden. In einer früheren Arbeit unserer Gruppe wurde gezeigt, dass durch Einfügen eines 3,2 nm dicken HT-AlN-ILs die TD-Dichte um einen Faktor 7 reduziert werden kann. Damit einher ging eine deutliche Steigerung der Elektronenbeweglichkeit [103]. Jetzt soll der Effekt mehrerer eingeschobener Zwischenschichten untersucht werden. Eine weitere Reduktion der TD-Dichte um einen Faktor 5,2 ist zu beobachten. Die hier vorgestellten elektrischen Daten sind Jens Stemmers Dissertation entnommen [10].

5.1.1 Wachstum

Alle vorgestellten Proben sind in der Riber MBE 32 des Lfi gewachsen worden. Dem Wachstumsprozess ging die übliche Nitridierung der titanbeschichteten Saphirsubstrate voraus.

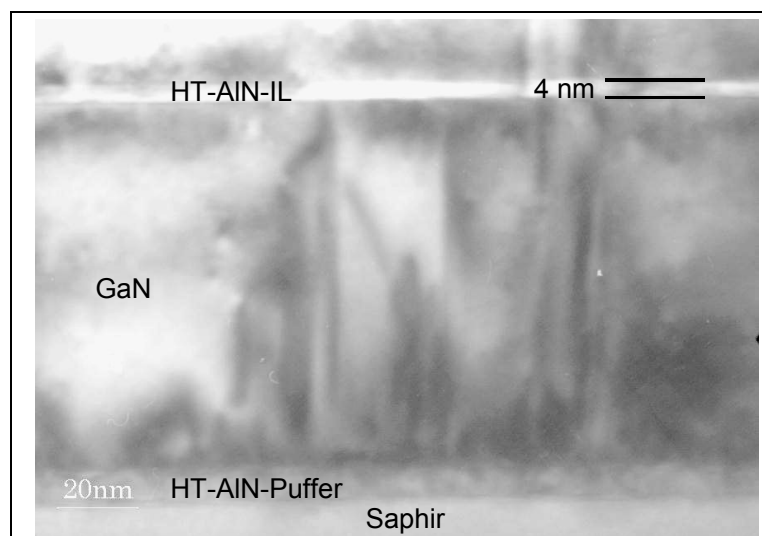


Abbildung 5.1. Hellfeld (11 $\bar{2}$ 0) TEM Aufnahme von Probe A4. 4 nm dicke AlN-IL sind für Probenreihen A, B, C und D verifiziert.

Für Probenreihen A bis D wurde die Addon-Plasmaquelle mit 370 Watt bei einem Fluss von 1,0 sccm N₂ betrieben, für Probenreihen E und F wurde nach Wartungsarbeiten an der Plasmaquelle der Stickstoffdurchfluss auf 0,4 sccm abgesenkt. Der Ga-Fluss lag bei $2,1 \cdot 10^{-6}$ Torr, der Al-Fluss bei $5,2 \cdot 10^{-7}$ Torr. Unter diesen Bedingungen ergab sich metallreiches Wachstum ohne Ga- oder Al-Tröpfchenbildung [105]. Wurde kein AlN-Puffer verwendet, konnte N-Polarität der Filme über (3x3)- und (3x6)-Oberflächenrekonstruktionen auf dem RHEED-Schirm beobachtet werden. Unter Benutzung eines initialen AlN-Puffers wurde die Ga-Polarität über (1x2)- und (3x2)-Oberflächenrekonstruktion festgestellt. Die Richtigkeit der Rekonstruktionszuordnung wurde in polaritätsselektiven KOH-Ätzexperimenten bestätigt [11].

Probe	Polarität	IL-Abstand		Probendicke [nm]	a-		μ [cm ² /Vs]	n_s [10 ¹³ /cm ²]	$\sigma_{D TEM}$ [10 ¹⁰ /cm ²]
		AIN-IL	[nm]		RC	FWHM Verzerrung [%]			
A1b	Ga	0	-	1050			n/a	n/a	7.7
A1a	Ga	0	-	600	649	-0.50	n/a	n/a	
A2	Ga	1	100	600	649	-0.62	322	0.67	5.3
A3	Ga	3	100	800	720	-0.62	320	2.72	3.7
A4	Ga	5	100	1000	849	-0.60	296	8.23	3.7
B1b	N	0	-	600	670	-0.32			
B1a	N	0	-	650			99	0.83	
B2	N	1	100	450			624	1.18	2.5
B3	N	3	100	650			628	3.85	1.7
B4	N	5	100	850			629	4.07	1.7
C1	Ga	0	-	2000	543	-0.43	n/a	n/a	
C2	Ga	1	100	2100	490	-0.48	232	1.12	
C3	Ga	3	100	2300	623	-0.44	244	5.96	
D1	N	0	-	2000	542	-0.24	68	2.50	
D2	N	1	100	2100	550	-0.29	701	0.96	
D3	N	3	100	2300	557	-0.34	557	4.61	
E1	Ga	1	300	800	839	-0.23	125	0.39	4.3
E2	Ga	3	300	1400	712	-0.16	122	0.42	0.8
F1	N	0	300	1000	1308	0.02	18	3.15	
F2	N	1	300	800	1327	0.04	82	1.53	3.1
F3	N	3	300	1400	1151	0.05	235	3.76	0.9

Tabelle 5.1 Proben und Ergebnisse zur HT-AlN-IL Untersuchung. Elektrische Daten aus [10].

Alle Proben wurden ohne Wachstumsunterbrechung oder Temperaturrampen hergestellt, um evtl. Oberflächenverunreinigungen zu minimieren [106]. Produziert wurden GaN-Proben mit eins, drei, oder fünf 2-4 nm dicken HT-AlN-ILs (Abbildung 5.1). Im ersten Probenseriensatz wurde der AlN-IL-Abstand auf 100 nm festgelegt (Serien A-D). Im zweiten Satz ist der Abstand auf 300 nm erhöht worden (Serien E und F). Den Probenüberblick gibt Tabelle 6.1. Nach dem Wachstum wurden die Proben zersägt. AFM-, TEM-, PEC-Ätz-, Hall- und XRD-Messungen wurden durchgeführt. Die hauptsächlichen Ergebnisse wurden mit dem NT-MDT-Solver P47 (AFM), dem Philips-MRD-System (XRD) sowie dem JOEL 1200EX (TEM) erhalten. Hall-Messungen wurden mit einem 0,5T-Magneten bei Raumtemperatur durchgeführt.

5.1.2 Schichtmorphologie

Alle untersuchten Proben haben exzellente AFM-rms-Oberflächenrauigkeiten zwischen 0,18 und 0,86 nm (auf $1 \times 1 \mu\text{m}^2$). Ga-polare Proben weisen dabei eine Oberflächenmorphologie mit ~ 50 nm Strukturgröße auf (Abbildung 5.2). N-polare Proben zeigen größere Kristallstrukturen im Mikrometerbereich. Die N-polaren Proben zeigen Stufen mit einer Breite um 100 nm. Dieser große Unterschied in der typischen Strukturgröße kann dem unterschiedlichen Puffer der Proben zugeschrieben werden:

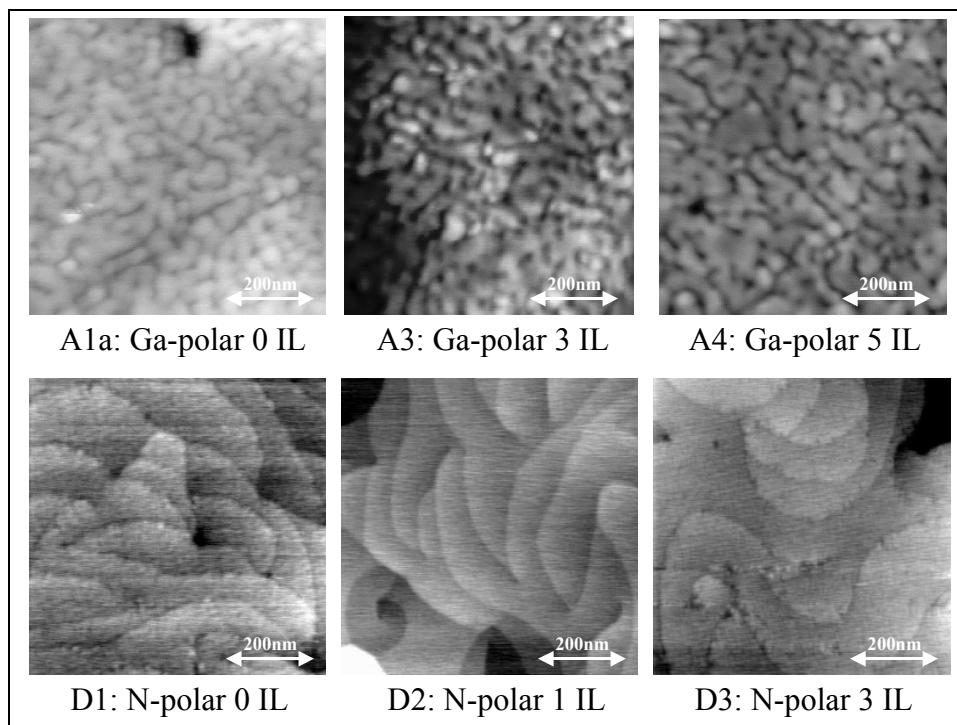


Abbildung 5.2. Typische Ga- und N-polare Probenoberflächen mit Oberflächenrauigkeiten < 1 nm rms. D-Proben-Bilder aus [10].

Der Wachstumsbeginn mit GaN für N-polare Schichten scheint weniger Nukleationszentren zu erzeugen als ein AlN-Puffer bei Ga-polaren Proben. Daraus ergeben sich weniger, aber größere Kristallite, was den Unterschied in der Probenmorphologie erklärt. Man beachte das keine Pufferoptimierung vorgenommen wurde. Die Anzahl der Nukleationszentren kann über das Materialangebot während des Pufferwachstums bestimmt werden. Eine entsprechende Studie wurde aber vorerst nicht vorgenommen. Das Einfügen von AlN-Zwischenschichten scheint das GaN-Kristallwachstum zu stören, bzw. neue Nukleationszentren zu erzeugen. Darauf weist die Krümmung der Stufen der N-polaren Schichten hin: sie verstärkt sich mit zunehmender Anzahl der HT-AlN-ILs.

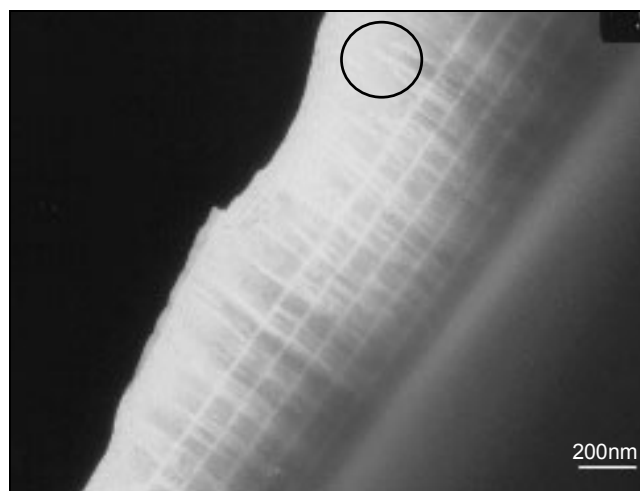


Abbildung 5.3. TEM (11 $\bar{2}$ 0) Dunkelfeld Aufnahme Probe A4. Deutlich ist die Verbiegung und die Vereinigung von TDs zu erkennen.

Aus TEM-Aufnahmen ist ersichtlich, dass die AlN-Zwischenschichten innerhalb des GaN-Kristalls die Richtung von Schraubenversetzungen verändern oder aber TDs ganz stoppen (Abbildung 5.3) [103,96]. In TEM-Oberflächenaufnahmen können TDs direkt gesehen und gezählt werden (Abbildung 5.4). Bei Ga- wie N-polaren Proben ergibt die Erhöhung der HT-AlN-ILs von 1 auf 3 mit 100 nm Abstand eine TD-Reduktion um etwa den Faktor 1,5 (Tabelle 6.1, Probenserie A, B). Wird der Zwischenschichtabstand auf 300 nm erhöht, ergibt sich für N-polare Proben ein Reduktionsfaktor von 3,5 (Abbildung 5.4) und für Ga-polare Proben gar ein Faktor 5,2, wenn man die Proben mit 1 und 3 HT-AlN-ILs vergleicht. Das Auszählen der TDs, die durch PEC-Ätzexperimente an Probenrandstücken nachgewiesen worden sind, ergibt ähnliche Ergebnisse. Leider sind die absoluten Zahlenwerte nicht mit den früheren Arbeiten nach Referenz [6] vergleichbar, weil wegen des Plasmaquellenwechsels andere Wachstumsbedingungen einzustellen waren.

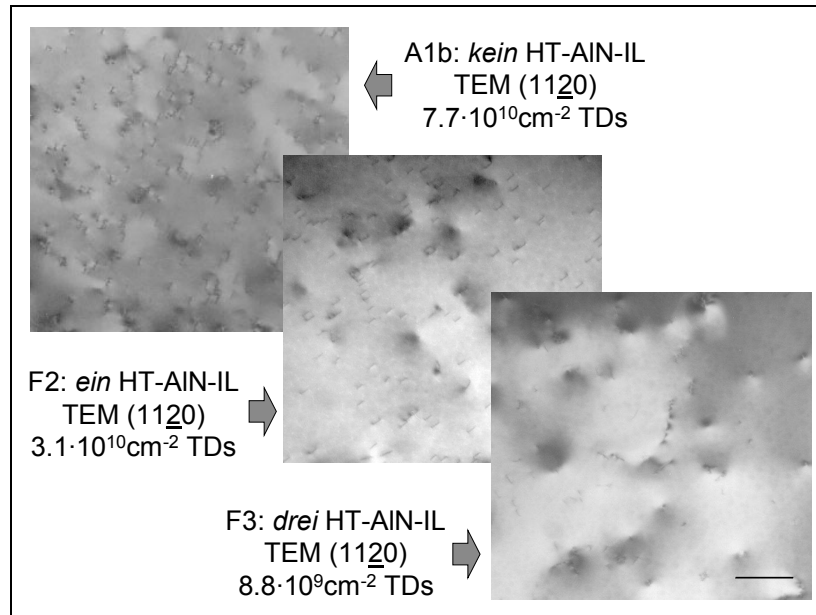


Abbildung 5.4. Beim AIN-IL Abstand von 300nm zeigen die N-polaren Proben der Serie F eine TD Reduktion von 3,5 zwischen 1 und 3 AIN-ILs [10].

Der größere AIN-IL-Abstand der Probenserien E und F erlaubt es, den durch den Einfluss der Zwischenschichten gebogenen sich mit gerade belassenen TDs zu vereinigen, und auf diese Weise die Gesamtzahl zu reduzieren, bevor die nächste Zwischenschicht eine weitere Biegung bewirkt. Das Vereinigungsgebiet der TDs liegt dabei etwa 150-200 nm oberhalb einer 4 nm dicken AIN-Zwischenschicht [7]. Verschiedene Zwischenschichtdicken ergeben verschiedene Biegungswinkel und daher unterschiedliche Vereinigungszonen.

5.1.3 Verspannungsanalyse

Ga-polare Proben weisen ein Minimum des FWHMs des XRD- ω -Scans (*rocking curve*, RC) für eine AIN-Zwischenschicht auf (Abbildung 5.5a).

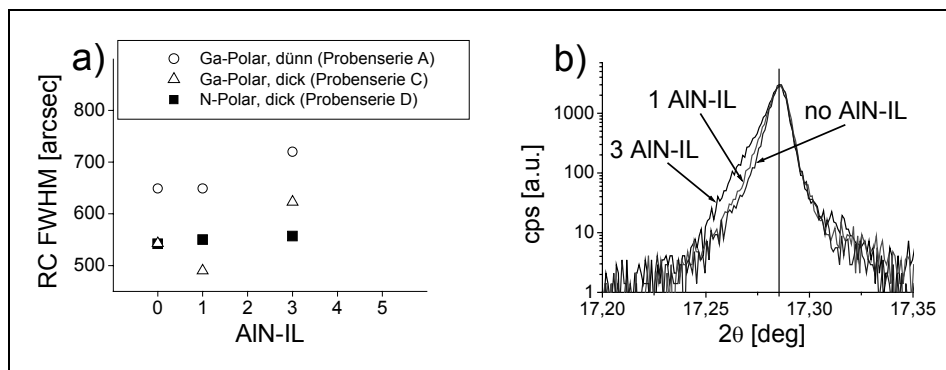


Abbildung 5.5. a) XRD RC Vergleich der Probenserien A, C und D, b) exemplarischer $\theta/2\theta$ Scan der Serie D.

Weitere eingefügte AlN Schichten können wie neuerlich aufgebrachte Pufferschichten betrachtet werden: sie produzieren neue Nukleationszentren. Das Ergebnis ist eine erhöhte Mosaizität mit steigender AlN-IL-Anzahl und die entsprechende Verbreiterung des RC-Peaks. Der Effekt fällt bei N-polaren Proben deutlich geringer aus. Die von Beginn an größeren Kristallite erleichtern das flache 2D-Wachstum. Die Unterschiede der N-polaren FWHM der RC Kurven ist gering, korreliert aber mit den per AFM bestimmten Oberflächenrauigkeiten. Ga-polare Proben zeigen diese Korrelation nicht. Das ist auf die schon angesprochene grundverschiedene Strukturgröße zurückzuführen.

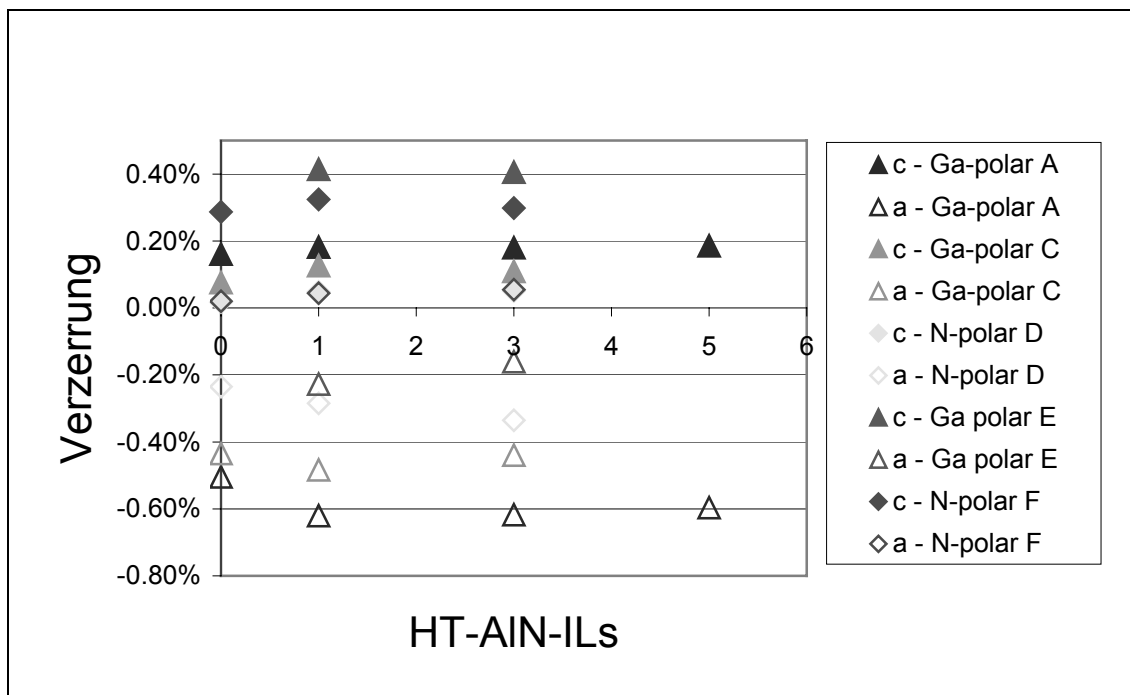


Abbildung 5.6. Verzerrung der GaN Schichten in Richtung der a und c Gitterkonstanten in Abhängigkeit der Anzahl der HT-AlN-ILs.

Gitterparameter und Verzerrungsergebnisse sind mit der x-Bond-Methode gefunden worden. Die Gitterparameter liegen zwischen $a_{\text{GaN}}=3,169-3,185 \text{ \AA}$ und $c_{\text{GaN}}=5,189-5,206 \text{ \AA}$ für Ga-polares Material und $a_{\text{GaN}}=3,179-3,191 \text{ \AA}$ und $c_{\text{GaN}}=5,186-5,202 \text{ \AA}$ für N-polare Proben. Trotz dieser großen Intervalle liegt die maximale Gitterparameterdifferenz innerhalb einer Probenserie bei lediglich $0,002 \text{ \AA}$. Das muss wiederum der notwendigen Änderung der Prozessparameter nach dem Plasmaquellenwechsel zugeschrieben werden. N-polare GaN-Schichten zeigen eine deutlich geringere kompressive Verzerrung ($\sim 0,3\%$ für eine 600 nm Probe) als Ga-polare Schichten ($\sim 0,5\%$ für eine 600 nm Probe; Abbildung 5.6). Der notwendigerweise abgeschiedene AlN Puffer, der die Polarität der Ga-polaren Proben

bestimmt, gibt eine Eingangsverspannung der folgenden GaN Schicht vor, die in N-polaren Schichten nicht gegeben ist. Der Einschub weiterer 1, 3 oder 5 AlN-ILs erhöht die Verzerrung bis auf $\sim 0,6\%$ für dünne, Ga-polare Proben. Bei den dickeren Ga-polaren Schichten relaxiert die Probe, und es werden noch $\sim 0,45\%$ Verzerrung gemessen. Gleichermaßen zeigen die dickeren N-polaren Schichten ohne oder mit einer Zwischenschicht verringerte Verzerrungswerte. Drei AlN-ILs reichen allerdings aus, um den Verzerrungswert wieder auf das Niveau einer dünnen Schicht zu heben. Für alle N-polaren Proben gilt der monotone Anstieg der Verzerrung mit zunehmender Zwischenschichtanzahl. Ga-polare Schichten behalten im wesentlichen den nach Einführung der ersten AlN-IL erhaltenen Verzerrungszustand. Aus den AFM-Bildern kann man den Unterschied im Spannungsabbau ablesen (Abbildung 5.2): Die großen N-polaren Kristallite müssen ihre kompressive Verzerrung erhöhen, während die kleineren, Ga-polaren Kristallite durch die größere Anzahl von Grenzflächen hier leichter relaxieren können. Zusätzlich wird die absolut geringere Verzerrung vom N-polaren Material leichter hingenommen.

XRD- $\theta/2\theta$ -Scans zeigen eine Asymmetrie des (002)-Peaks zu niederen Winkeln hin, was auf ein vom AlN abhängiges Relaxationsschema hinweist (Abbildung 5.5b). Das Signal wird auf der niederwinkligen Seite um so stärker, je mehr AlN-ILs die Probe enthält. Die kleineren Beugungswinkel entsprechen größeren c -Gitterkonstanten des GaN, die durch die vom AlN erzwungene Verkleinerung der a -Gitterkonstanten herkommen. Diese verzerrungsbedingte Peak-Schulter ist für Ga-polare Proben ausgeprägter als für N-polare. Der größere Unterschied innerhalb einer Probenserie wird allerdings für N-polare Schichten gefunden, weil der Ausgangspunkt eine Probe ohne AlN-Puffer und Zwischenschicht ist. Im Gegensatz zu den Proben der Serien A-D mit 100 nm Abstand zeigen die Serien E und F eine geringere Verzerrung bei sich verringernder kompressiver Verzerrung bzw. sogar ansteigender tensiler Verzerrung bei den N-polaren Proben. Für die Serien E und F hatte die Findung neuer Wachstumsparameter nach dem Wechsel der Plasmaquelle die Absenkung des N_2 -Flusses von 1,0 auf 0,4 sccm zur Folge. Die beobachtete „super-Relaxation“ (auch die c -Gitterparameter sind um 0,4-0,5% verlängert) mag damit zusammenhängen, und mit unvollständiger AlN-Bedeckung bei der Zwischenschichtdeposition und daraus folgender extremer Mosaizität, die in den zugehörigen RCs deutlich wird, erklärt werden. Erstaunlicherweise bleibt die Zahl der TDs davon unbeeinflusst, und oben beschriebenen TD- Verringerungsmechanismen greifen weiterhin.

5.1.4 Elektronische Eigenschaften

Hall-Messungen zeigen einen Anstieg der Elektronenbeweglichkeit mit der Einführung der AlN-ILs, da die defektreiche GaN/Saphir-Grenzschicht abgeschirmt wird (Abbildung 5.7b). Wegen der enormen Ladungsträgerdichte, die an der AlN/GaN-Grenzfläche durch Bildung eines zweidimensionalen Elektronengases (2DEG) entsteht, werden hier auch die TDs abgeschirmt. Die Ladungsträgerstreuung an Gitterfehlern wird innerhalb des 2DEGs minimiert. Ga-polare Proben ohne AlN-IL konnten aufgrund zu hohen Widerstands nicht charakterisiert werden. Dies ist auf die hohe Defektdichte in der Größenordnung 10^{10} TD/cm² und geringe Elektronenbeweglichkeit zurückzuführen. N-polare Proben sind messbar und zeigen zweistellige Beweglichkeiten und von der GaN/Saphir-Grenzflächenqualität abhängige Flächenladungsträgerdichten. Die Proben B1a und D1 haben eine niedrige intrinsische Ladungsträgerdichte von $1 \cdot 10^{17}$ cm⁻³. Probe F1 hingegen liegt hier wegen schlechterer Materialqualität um den Faktor 2,5 höher.

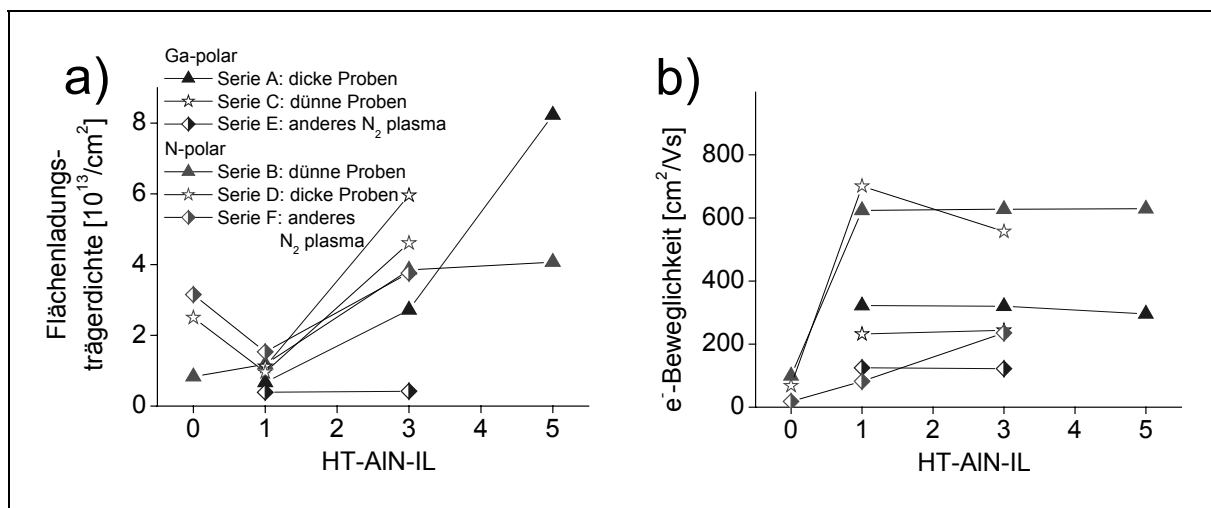


Abbildung 5.7. Aus Hall-Messungen bestimmte a) Flächenladungsträgerdichten und b) Elektronenbeweglichkeit der untersuchten Proben in Anhängigkeit von der Anzahl der HT-AlN-ILs [10].

Unter Verwendung der HT-AlN-ILs erhöht sich die Elektronenbeweglichkeit bei N-polaren Proben um das sechsfache. Für die Serien A-D mit 100 nm HT-AlN-IL-Abstand liegen die Beweglichkeiten für Ga-polare Schichten relativ stabil zwischen 232 und 322 cm²/Vs. Die N-polaren Proben liegen zwischen 546 und 707 cm²/Vs (Tabelle 6.1). Diese Zahlen passen gut zu den gefundenen TD-Dichten und der unterschiedlichen Oberflächenmorphologie nach Abbildung 5.2: Die Elektronenmobilität wird in Ga-polaren Proben durch die große Anzahl der Kristallitgrenzflächen behindert. Serie E mit 300 nm HT-AlN-IL-Abstand bestätigt die

stabile Elektronenbeweglichkeit für Proben mit Zwischenschichten auf niedrigerem Niveau. Sobald eine AlN-Zwischenschicht eingeführt wird, hängt die gemessene Beweglichkeit von der AlN-IL/GaN-Grenzschichtqualität ab, weil der größte Anteil am Elektronentransport dem dort angesiedelten 2DEG zuzuschreiben ist. Nur in Probenreihe F gibt es einen leichteren Anstieg der Beweglichkeit. Unterlegene Materialqualität nach dem Plasmaquellenwechsel mag die Bildung eines 2DEGs an rauen AlN-IL/GaN Grenzschichten behindern.

Die Proben ohne AlN-IL haben eine höhere Flächenladungsträgerdichte als Proben mit einer Zwischenschicht, vermutlich weil die defektreiche Saphir/GaN-Grenzfläche nicht von einem 2DEG abgeschirmt wird (Abbildung 5.7a). Es ist aber auch möglich, dass eine kompliziertere Abhängigkeit zwischen 2DEG, „bulk“-Kristall-Elektronenbeweglichkeit und Kristallgitterfehlern zur beobachteten Absenkung der Flächenladungsträgerdichte führt. Betrachtet man die gemessenen Werte für die Ladungsträgerdichten der Proben mit AlN-ILs, sieht man den erwarteten Anstieg mit der Anzahl der AlN/GaN Grenzflächen (1-5 2DEGs).

Abschließend lässt sich sagen, dass mehrfache HT-AlN-ILs eine vielversprechende Methode zur Verbesserung der Materialqualität von mittels MBE gewachsenem GaN sind. Eine AlN-Zwischenschicht ergibt eine Reduzierung der TDs um den Faktor 7. Weitere AlN-ILs können die Anzahl der TDs noch einmal um den Faktor 5,2 drücken. Die elektrischen und strukturellen Eigenschaften der untersuchten Proben konnten mit den jeweiligen beobachteten Wachstumsmodi der Ga- und N-polaren Schichten korreliert werden. Die große Elektronenbeweglichkeit von $707 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und die sehr geringe intrinsische Ladungsträgerdichte von $1 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ zeigen, dass AlN-barriers in N-polaren, invertierten GaN-FET- (*field effect transistor*) Strukturen einsetzbar sind. Detaillierte Angaben dazu finden sich in Referenz [10]. Hier soll genügen, dass die Materialqualität allgemein mit AlN-ILs verbessert werden kann, was natürlich auch die optischen Eigenschaften betrifft. Für die Konstruktion der DBRs ist wichtig, dass die gleichen Effekte, wie sie hier beschrieben wurden, auch für dickere AlN-Halbperioden innerhalb des Spiegels gelten. TDs können auch dort gestoppt werden.

5.2 AlGaN-Einzelschichten

In Vorbereitung auf die DBR-Herstellung muss zunächst das verwendete AlGaN-Materialsystem in Bezug auf seine Prozessparameter in der hiesigen Riber MBE 32 untersucht werden. Kann der maximale Brechungscontrast einer AlN/GaN-Grenzschicht überhaupt praktisch genutzt werden? Welche Wachstumstemperatur stellt den geeigneten Kompromiss dar? AlN-Schichten werden üblicherweise bei deutlich höheren Temperaturen

(ca. 850°C) abgeschieden als GaN-Schichten, die für Substrattemperaturen um 690°C die besten Kristalleigenschaften aufweisen. Bisherige industrielle Anwendungen der Gruppe-III-Nitride beruhen auf epitaktischen GaN- und InGaN-Schichten. Für die Umsetzung diverser GaN-basierter Transistorstrukturen ist die Beherrschung des AlGaN-Systems notwendig [10,11,12]. Mit AlN-Anteilen von $0,4 < x < 0,6$ können AlGaN-Schichten als sonnenblinde Detektoren im Spektralbereich zwischen 250-280 nm eingesetzt werden können, da hier die Ozonschicht der Erde die Sonneneinstrahlung ausfiltert [107]. Ein anderes Beispiel sind $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -UV-Leuchtdioden, welche prinzipiell für den gesamten Kompositionsbereich x realisierbar sind. Die Herstellung stellt allerdings immer noch ein nicht zu unterschätzendes Problem dar, und Angaben über Materialeigenschaften über das gesamte Mischungsspektrum x sind selten und ungenau. Besonders bei größeren x -Werten ($x > 0,3$) fehlt es an stimmigen Daten. Das liegt zumeist an der durchaus noch unterschiedlichen, weil kaum optimierten Materialqualität der verschiedentlich untersuchten Proben.

Für den Betrieb von Feldeffekttransistoren sind Grenzflächeneffekte von entscheidender Bedeutung. Durch die Beherrschung des AlGaN-Materialsystems sollte gleichzeitiges Spannungs- und Kompositionsdesign von Heteroübergängen möglich sein. Verzerrung und Zusammensetzung des Materials bestimmen den Energiebandverlauf an der Grenzfläche. Die Höhe des Niveauunterschiedes, in erster Näherung gegeben durch den Kompositionsunterschied Δx , wie auch die Bandverbiegung, bestimmt durch spontane und verzerrungsinduzierte Polarisation an der Grenzfläche, könnten festgelegt werden. In einer idealen, komplett verspannten Heterostruktur ohne Defektrelaxation bestimmt der Gitterparameterunterschied direkt die Größe der Polarisation an der Grenzfläche [10]. Im realen Kristall hängt der Verzerrungsgrad jedoch von Relaxationsmechanismen ab, die durch Defektbildung auftreten. Die Defektbildung hängt z.T. von der Wahl der Wachstumsparameter ab. Ist die kritische Schichtdicke bei angemessenem Wachstum von AlGaN/GaN oder AlGaN/AlN Strukturen groß genug, wird Verzerrungsdesign möglich. Dies könnte eine Alternative zu entsprechenden Versuchen mit InGaAlN sein [108].

Viele DBR Produktionsversuche leiden unter der unzuverlässigen Charakterisierung der Einzelschichten, aus denen der DBR aufgebaut ist [109]. Die zuverlässige Verzerrungs- und Kompositionsanalyse der AlGaN-Einzelschichten ist unabdingbare Voraussetzung für die erfolgreiche DBR-Herstellung. Hier soll nun die strukturelle und oberflächenspezifische Analyse einer Auswahl per MBE hergestellter, epitaktischer N-polarer $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Einzelschichten im technologisch hochinteressanten Bereich $0,4 < x < 1$ beschrieben werden. Es werden Resultate von AFM, XRD und Raman-spektroskopischen Verfahren verwendet, sowie

Ergebnisse von Hall-Messungen und optischer Transmission. Die Wachstumsbedingungen und der Wachstumsmodus von $\text{Al}_x\text{Ga}_{(1-x)}\text{N}$ mit verschiedenen AlN-Anteilen x soll am Beispiel von fünf Proben untersucht werden. Ein kontinuierlicher Wandel der Materialeigenschaften als Funktion von x konnte nachgewiesen werden.

5.2.1 Wachstum

Alle Proben sind in der in Kapitel 2 beschriebenen PA-MBE Riber-Anlage mit Addon-Plasmaquelle hergestellt worden. Die Al_2O_3 -(0001)-Substrate wurden der üblichen Wachstumsvorbereitung einschließlich der Nitridierung unterzogen (Kapitel 2.2). Während des Wachstums produzierte die Plasmaquelle aus 0,4 sccm eingeleitetem hochreinem N_2 das Stickstoffplasma mit der eingepprägten Leistung von 370 W. Während der gefahrenen AlGaN-Einzelschichtprozesse wurde das Plasma auf einen OED-Wert von 2,45 V justiert. Der Ga-Fluss war für alle Proben konstant ($2,1 \cdot 10^{-6}$ Torr) und so gewählt, dass sich jeweils metallreiche Wachstumsbedingungen ergaben, die jedoch noch nicht zur Ga- oder Al-Tröpfchenbildung ausreichten [48]. Neben den mit A-F bezeichneten AlGaN-Proben wurde auch eine GaN-Referenzprobe bei 690°C Substrattemperatur gewachsen. Für die Wachstumstemperatur der Proben mit großem AlN-Anteil (Proben B-F) zeigte das unkorrigierte Pyrometer den Wert 750°C . Probe A ist aufgrund des niedrigen AlN-Gehalts wie die GaN-Referenzprobe bei 690°C produziert worden. Alle Proben wurden zunächst mit einem in 2 Minuten bei 690°C aufbrachten, ca. 15 nm dicken GaN-Puffer versehen.

Probe	Al Fluß [10^{-7} Torr]	Schicht- dicke [nm]	Wachstums- rate [nm/min]	AFM [rms nm]	E_{gap} [eV]	x XRD ¹ Raman	c/a	$\Delta c/c_{\text{alloy}}$ [%]	err. +/- [%]	$\Delta a/a_{\text{alloy}}$ [%]	err. +/- [%]	
A	1,2	630	7,0									
B	1,8	770	8,6	6,3	4,4	0,40	1,619	0,07	0,03	-0,13	0,02	
C	2,4	786	8,7	3,4	4,8	0,56	0,55	1,615	0,07	0,03	-0,13	0,03
D	3,0	730	8,1	1,2	5,2	0,71	0,69	1,610	0,03	0,03	-0,05	0,02
E	3,6	816	8,1	2,4	5,6	0,86	0,88	1,605	0,00	0,03	-0,01	0,03
F	4,2	659	7,3	4,2	6,2	1,00	1,00	1,601	0,02	0,03	-0,04	0,02

¹ Für alle die XRD Werte gilt die Fehlerabschätzung +/-0.01

Tabelle 5.2. Eigenschaften der untersuchten AlGaN Einzelschichten.

Während der zweiten Pufferminute wurde bei den AlGaN-Schichten die Temperatur auf 750°C erhöht. Der GaN-Puffer bestimmt die N-Polarität der Filme, die auch auf dem

RHEED-Schirm durch eine 3x3-Rekonstruktion der Oberfläche nachgewiesen werden konnte. Eine nachträgliche, polaritätssensitive KOH-Ätzung einiger Stichproben bestätigte die RHEED-Interpretation der 3x3-Rekonstruktion. Die Dicke der abgeschiedenen dünnen Filme liegt nach SEM-Messungen zwischen 660 nm und 820 nm.

Nach dem Wachstumsprozess wurden alle Proben mit SE, PL und AFM vermessen, dann in Stücke gesägt, um von den Kanten SEM-Bilder machen zu können. Darauf folgend sind XRD- und Raman-Spektroskopie Untersuchungen durchgeführt worden. Hall-Messungen mit einem 0,5 T Magneten zeigten keine Leitfähigkeit der Proben.

5.2.2 Schichtmorphologie und Verspannung

Mit Hilfe der in Kapitel 5.5 weiterentwickelten x-Bond-Methode konnte mit XRD-Messungen gleichzeitig die Kristallgitterverzerrung und der AlN-Anteil x der AlGaN-Schichten bestimmt werden (Tabelle 5.2).

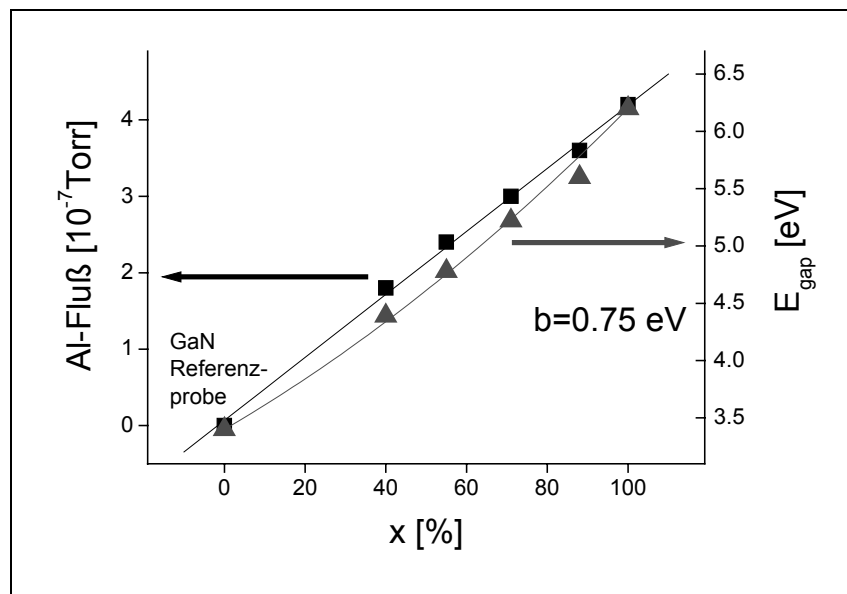


Abbildung 5.8. Zusammenhang von AlN-Gehalt x und Al-Effusionszellenfluss sowie Bandkante E_{gap} . Der bowing Parameter fit $E_{gap} = E_{GaN} + (E_{AlN} - E_{GaN} + b)x + bx^2$ liefert $b=0.75$.

Zwischen Al-Fluss und Al-Konzentration in den Proben fand sich ein linearer Zusammenhang (Abbildung 5.8). Auch für AlGaN-Proben mit sehr hohem AlN-Anteil wird Al vorzugsweise eingebaut: Die lineare Beziehung gilt auch noch für 100%iges AlN trotz anhaltenden Ga-Flusses. Unter den gewählten Wachstumsbedingungen reicht ein Al- zu Ga- Verhältnis von 0,2 um reines AlN herzustellen. Durch den Unterschied der Bindungsenergien zwischen GaN (8,9 eV/Atom) und AlN (11,5 eV/Atom) wird der Al-Einbau in den wachsenden Kristall sehr

stark gefördert [110]. Im benachbarten InGaN Dreiersystem wurde ein hilfreicher *surfactant*-Effekt von In beim GaN-Wachstum beobachtet [111]. Dem In kommt dabei an der Wachstumsoberfläche eine katalytische Wirkung zu: die energetischen Umstände an der Wachstumsgrenze werden für den Ga-Einbau günstig beeinflusst. Obwohl zwischen Al und Ga einerseits und Ga und In andererseits durchaus energetisch verwandte Verhältnisse bezüglich des Wachstums vorliegen, konnte ein vergleichbarer Effekt mit Ga als *surfactant* für das AlN-Wachstum mit den vorliegenden Wachstumsparametern nicht gefunden werden. In Referenz [112] wird gezeigt, dass Raman-Spektren die Zusammensetzungsvariation und Inhomogenität von AlGaN sehr empfindlich wiedergeben. Es konnte dort auch gezeigt werden, dass der Einfluss homogener Verzerrung auf die Abschätzung der kristallinen Zusammensetzung ausgeschlossen werden kann, indem eine Linearkombination zweier Raman-Linienfrequenzen ausgewertet wird.

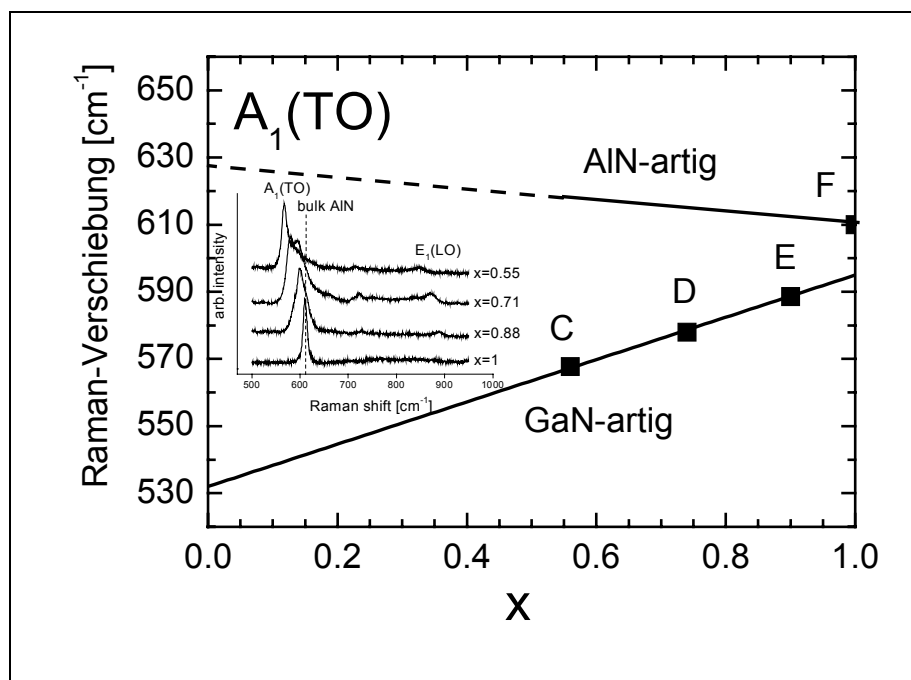


Abbildung 5.9. Raman-Verschiebung in Abhängigkeit von der AlGaN-Zusammensetzung der Proben C, D, E und F.

Die Messung der A₁(TO)-, E₁(LO)-, A₁(LO)- und E₂-Phononen liefert den gesuchten Wert für x . Alle der vorgenannten optischen Phononen, außer der A₁(LO)-Mode, zeigen für großen AlN-Gehalt ein zweigeteiltes Verhalten. Die Raman-Verschiebung der Frequenz folgt der AlN- oder der GaN-Reinkristallvorgabe. Für $x < 1$ werden hier nur GaN-artige Verschiebungen beobachtet [113]. Abbildung 5.9 zeigt Raman-Spektren der hergestellten AlGaN-Proben. Der Messaufbau war auf die A₁(LO)-Phononmode abgestimmt. Die nach der in [112]

beschriebenen Methode gefundenen Werte für x stimmen sehr gut mit den XRD-Messergebnissen überein (Tabelle 5.2).

Um das Wachstumsverhalten des AlGaN besser beurteilen zu können, wurde auf eine Pufferoptimierung verzichtet. Der eingesetzte 2-Minuten-GaN-Puffer reicht aus, um die Polarität festzulegen, und Nukleationspyramiden für das AlGaN vorzugeben, auf denen zunächst verzerrungsfreies Kristallwachstum beginnen kann (Kapitel 2.2). Die Stickstoffpolarität wurde gewählt, weil in frühen Versuchen die Oberflächenrauigkeit der N-polaren Schichten jenen der Ga-polaren Schichten auf Alm-Puffern überlegen war. Im Zuge der Pufferoptimierung wurden für die erfolgreichen DBR-Strukturen später allerdings dicke AlN-Puffer verwendet, die wiederum besserer Resultate möglich machten. Für die hier angestellten Wachstumsüberlegungen der AlGaN-Schichtbeurteilung konnten keine grundsätzlichen Unterschiede zwischen N-polarem und Ga-polarem Material festgestellt werden.

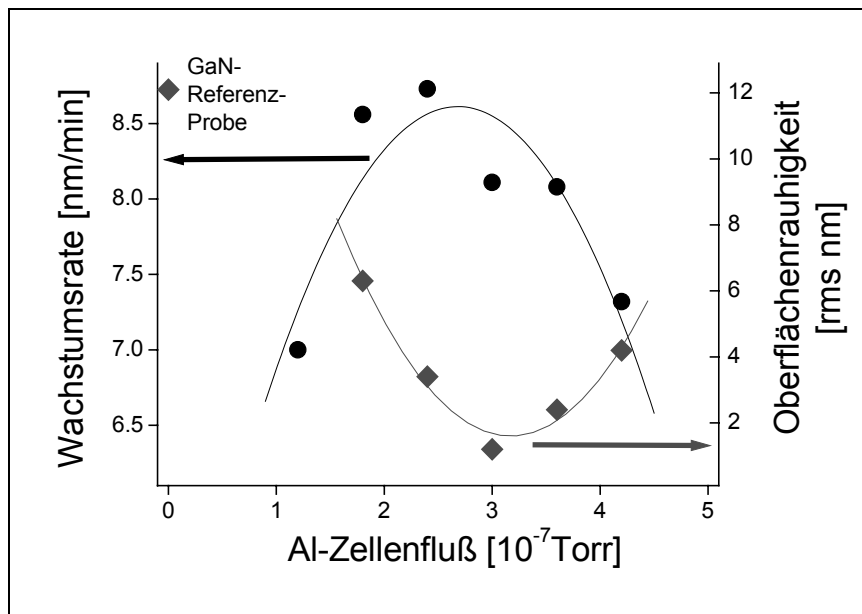


Abbildung 5.10. Wachstumsrate und Oberflächenrauigkeit in Abhängigkeit vom Al-Fluss während des Wachstums für Proben A-F. Die Parabeln geben lediglich einen Anhalt. Die Extrema zeigen ideale Wachstumsbedingungen für einen Al-Fluss von etwa $2.8 \cdot 10^{-7}$ Torr.

Trotz zunächst fehlender Pufferoptimierung und relativ geringer Schichtdicke^a sind sehr geringe rms-Oberflächenrauigkeiten (*root mean square surface roughness*) gefunden worden

^a Bei qualitativ hochwertigen GaN-Proben aus MOCVD-Reaktoren werden oft $>2\mu\text{m}$ dicke Pufferschichten verwendet, bevor eine Nutzstruktur aufgebracht wird.

(Tabelle 5.2). Die gemessenen AFM-rms-Oberflächenrauigkeiten der AlGaN-Proben liegen zwischen 1,2 nm und 6,3 nm, wobei Probe D den Minimalwert aufweist (Abbildung 5.10). Dieses Minimum fällt fast mit dem nach Auswertung von SEM-Bildern festgestellten Maximum der Wachstumsraten zusammen (Probe C). Beide Extrema deuten darauf hin, dass die voreingestellten Wachstumsbedingungen für AlGaN-Schichten mit $x \approx 0,65$ ideal sind. Verzerrungsfreies Wachstum findet allerdings erst für höhere AlN-Anteile statt ($x=0,86$), wie in Abbildung 5.11 zu sehen ist. Insgesamt liegt die vertikale Verzerrung zwischen 0% und 0,6%, während die laterale Verzerrung zwischen $-0,1\%$ und $-0,14\%$ variiert. Im Prinzip könnte man mit einem umfassenderen Versuch mit einer Wachstumsparametermatrix, in der zusätzlich die Substrattemperatur durchgeführt wird, für jedes x Bedingungen finden, bei denen verzerrungsoptimiertes Wachstum möglich sein sollte. Mit abnehmender Temperatur sollten sich alle Datenpunkte in Abbildung 5.10 und Abbildung 5.11 in Richtung kleinerer x nach links verschieben. So würde das wichtige verzerrungsabhängige Design der Piezopolarisation möglich.

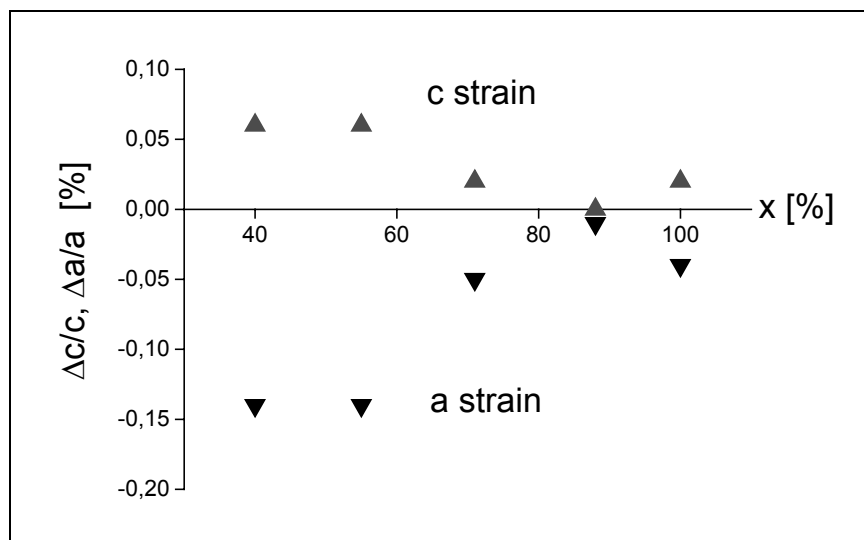


Abbildung 5.11. Vertikale und laterale Verzerrung der Proben B-F. Der durch den dünnen GaN-Puffer eingebrachte tensile Stress wird für $x=0,86$ minimal.

Die von den Proben gemachten AFM-Bilder stimmen mit den übrigen Ergebnissen überein. An den Bildern lässt sich die zugrunde liegende Ursache für das Wachstumsratenmaximum und minimale Oberflächenrauigkeit ablesen (Abbildung 5.12). Es findet ein fließender Übergang verschiedener Wachstumsmodi statt: hexagonales, plattenartiges Wachstum bei mittleren x -Werten geht über in den glatten, idealen 2D-Modus bei $x=0,71$. Der 2D-Modus konnte auch schon während des Wachstums an einem aus scharfen Linien bestehenden

RHEED-Bild für Probe D abgelesen werden, während die übrigen Proben Linienunterbrechungen oder eben Punkte für 3D-Wachstum zeigten. Die AFM-Auflösung reicht leider nicht, um einzelne Kristallgitterstufen für Probe D zu unterscheiden. Mula et. al haben gezeigt, dass GaN-Oberflächen nach einer Wachstumsunterbrechung in einer N₂-Atmosphäre hexagonale *platelets* bilden [114]. Für die 2D-gewachsene Probe D kann das für AlGaN mit $x=0,71$ nicht bestätigt werden. Auch nach Wachstumsende verbleibt die Probenoberfläche im für ideale Wachstumsbedingungen charakteristischen 2D-Zustand. In der gleichen Veröffentlichung wird die Kristallisation von GaN diskutiert. Beim Vergleich der dort verwendeten Puffer mit dem hier verwendeten kann man spekulieren, dass der Puffer *platelets* vorgibt, auf denen das AlGaN aufwächst. Für den Fall nicht idealer Metallfluss Bedingungen^b können die Lücken zwischen den hexagonalen *platelets* nicht geschlossen werden.

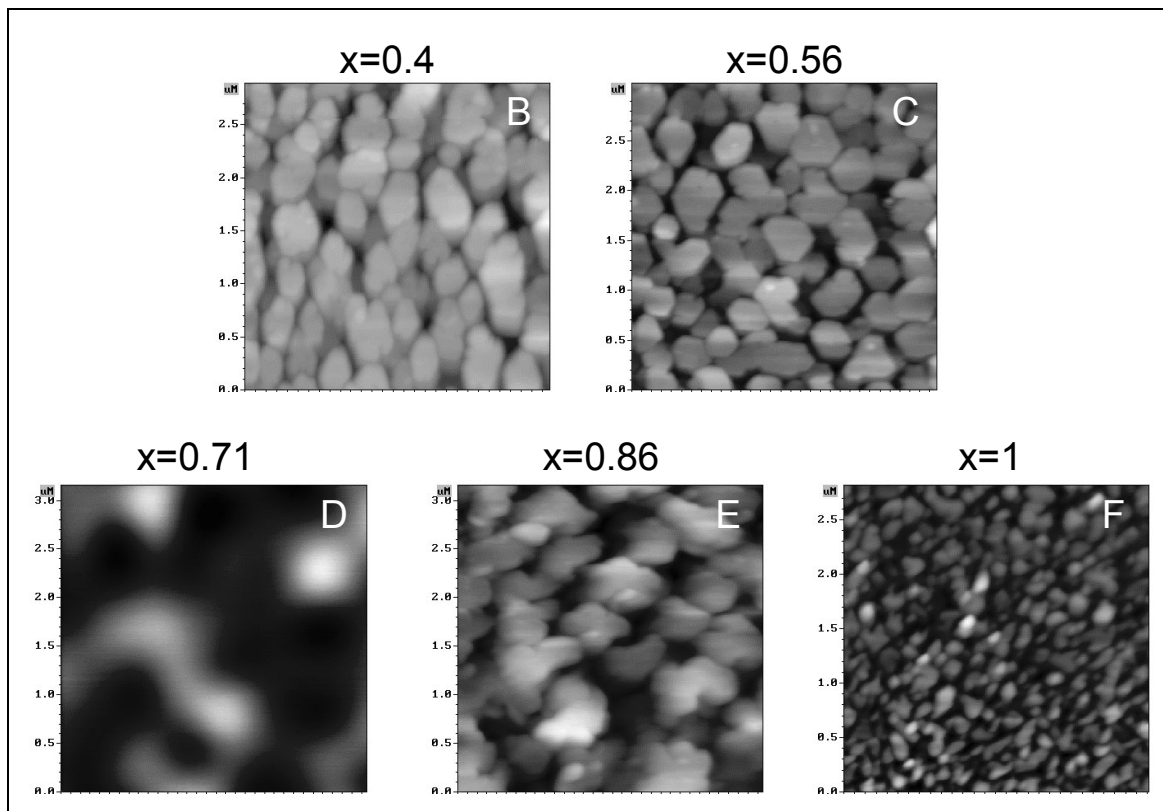


Abbildung 5.12. Auf den $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ AFM Bildern der AlGaN Proben zeigt sich die Wachstumsmodusänderung von plattenartigem Wachstum zu 2D-, und dann zu nadelartigem 3D-Wachstum. Die Kontrastskala der Bilder umfasst für Probe B: 70 nm, C: 35 nm, D: 10 nm, E: 25 nm, F: 45 nm.

^b Nicht ideal heißt hier, der Al-Fluß führt nicht zu einem AlN-Anteil von $x=0,71$. Der Ga-Fluß blieb ja über die Probenreihe konstant.

Das Resultat sind für zu geringen Fluss die für die Proben B und C in Abbildung 5.12 beobachteten flachen, hexagonalen Strukturen. Wird der Al-Fluss größer als $3,0 \cdot 10^{-7}$ Torr, so kann man für Probe E wiederum hexagonale Strukturen erkennen. Zusätzlich bilden sich jedoch obenauf noch Kristallisationskeime (*hillocks*), in denen reines 3D-Wachstum nadelartig in die Höhe geht. Der Übergang zum 3D-Wachstum wird dem großen Haftkoeffizienten von Al zugeschrieben. Bei geringeren Al-Flüssen ($x=0,4$; $x=0,56$) ist die Oberflächenbeweglichkeit der Al-Atome ausreichend um einen freien Gitterplatz zu „finden“. Der 2D-Wachstumsmodus kann zumindest in kleineren Regionen (siehe Hexagone der Proben B und C) aufrecht erhalten werden. Bei größeren Al-Flüssen wird die Wahrscheinlichkeit größer, dass ein immer größerer Anteil des Materials in Form von mehratomigen Konglomeraten an der Wachstumsoberfläche ankommt. Diese Konglomerate können sich nicht an der Oberfläche bewegen, sondern müssen dort, wo sie auftreffen, in den Kristall eingebaut werden. Dieser Effekt wird am Bild der Probe F für $x=1$ besonders deutlich: Es ist keine 2D-Wachstumsfront mehr auszumachen. Die für Probe E noch auszumachenden, anfänglich vorhandenen hexagonalen *platelets* sind komplett verschwunden und den *hillocks* des 3D-Wachstums gewichen. Ein eventueller ausgleichender *surfactant*-Effekt durch die Anwesenheit des Ga ist nicht zu sehen. Dass ein dem In beim GaN-Wachstum analoger Effekt jedoch für entsprechend optimierte Parameter möglich ist, kann nicht ausgeschlossen werden. Der gemachten Erfahrung nach ist das Wachstumsparameterfenster für AlN jedoch um einiges kleiner als das für GaN.

Die per XRD festgestellte minimale Verzerrung der Probe E ($x=0,86$) kann ebenfalls mit den AFM-Bildern erklärt werden. Der Verlust des 2D-Wachstumsmodus zugunsten der 3D-*hillock* Struktur führt zur Gitterentspannung. Die Anzahl der Korngrenzen steigt, jedoch ist jeder einzelne Kristallit für sich unverzerrt. Der Spannungsaufbau durch das Zusammenwachsen größerer Strukturen bleibt aus.

5.2.3 Optische Eigenschaften

Für den geplanten Einsatz von AlGa_xN als Halbperiodenmaterial für DBRs sind die optischen Eigenschaften der hergestellten Schichten von besonderem Interesse. Für optische Transmissionsmessungen ist durch Politur die Ti-Beschichtung der Substrate entfernt worden [13].

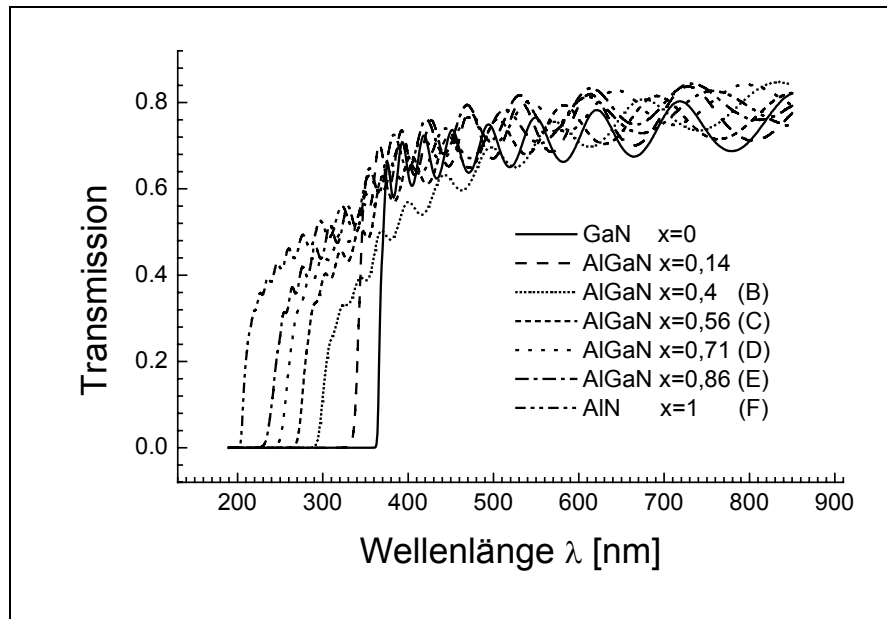


Abbildung 5.13. Optische Transmissionsmessung rückseitenpolierter AlGaN Proben [13]. Die niederprozentigen Proben ($x=0$, $x=0,14$) sind mit abweichenden Wachstumsparametern hergestellt worden.

An den Transmissionspektren der Proben erkennt man den „weicher“ werdenden Bandübergang mit zunehmendem x (Abbildung 5.13). Für den DBR muss das Material unterhalb der Bandkante absolut lichtdurchlässig sein, um unnötige Intensitätsverluste in der späteren Laserstruktur zu vermeiden. Durch die Art der Herstellung und der Natur des Materials ist nicht davon auszugehen, dass Verunreinigungen oder Gitterfehler im kritischen Bereich Absorption hervorrufen. Nicht auszuschließen sind jedoch leichte lokale Varianzen im AlN-Gehalt, was eine weniger „scharfe“ Bandkante erklären kann. Die gemessenen Transmissionsverluste ergeben sich auch durch Probendickenvariationen und Streuverluste durch Mehrfachspiegelung. Dabei spielt eine evtl. leicht unregelmäßige Politur eine wichtige Rolle [13]. Sind Front- und Rückseite der Probe nicht ganz planparallel, steigen die Verluste. Der optische Absorptionskoeffizient β kann über die Transmission T gemessen werden, wenn die Schichtdicke d bekannt ist:

$$\beta(\hbar\omega) = -\frac{1}{d} \ln(T(\hbar\omega)) \quad (5.1)$$

Mit Hilfe der für direkte Halbleiter gültigen Abhängigkeit

$$(\hbar\omega\beta)^2 \propto \hbar\omega - E_{gap} \quad (5.2)$$

kann mit Gl.(5.1) aus dem Verlauf der Transmissionsmessung die Bandkante bestimmt werden. Abbildung 5.8 zeigt das Resultat. Gemeinhin wird angenommen, dass der Grad der Nichtlinearität der Beziehung zwischen Materialzusammensetzung und Bandkante von

verschiedenen Wachstumsmodi und –methoden beeinflusst wird. Als Maß für die Nichtlinearität wird üblicherweise der *bowing*-Parameter b bestimmt, der die quadratische Abweichung vom linearen Zusammenhang beschreibt:

$$E_{gap} = E_{GaN} + (E_{AlN} - E_{GaN} + b)x + bx^2 \quad (5.3)$$

Für die untersuchten Proben wurde $b=0,75\text{eV}$ festgestellt. Das stimmt mit der Klassifizierung der *bowing*-Parameter nach Referenz [115] überein, nach der für Proben mit Puffern niedriger Temperatur gefolgt von Wachstum höherer Temperatur $b<1,3\text{eV}$ sein sollte. Der gemessene Wert ist auch hinreichend nah am theoretisch von Wright und Nelson bestimmten Wert von $b=0,53\text{eV}$ [116]. Die mit Hilfe der spektroskopischen Ellipsometrie abgeleiteten Dispersionskurven sind bereits in Kapitel 3.3.2 behandelt worden. Sie sind, wie dort beschrieben, von besonderer Wichtigkeit beim DBR-Design.

An den hier betrachteten AlGaN Einzelschichten unterschiedlicher Zusammensetzung $0,4<x<1$ lässt sich nach dem vorher Gesagten ein kontinuierlicher Übergang verschiedener Wachstumsmodi beobachten. Die Möglichkeit des Verzerrungs- und Bandkantendesigns am Heteroübergang wurde aufgezeigt. Für eine bestimmte Komposition ($x=0,71$) wurden ideale, 2D-Wachstumsbedingungen gefunden. Die für die DBR-Produktion wichtigste Erkenntnis dieser Vorversuchsreihe ist, dass mit geeigneten Parametern der Wachstumsmodus des AlGaN-Materialsystems eingestellt werden kann.

5.3 Wachstumstemperaturuntersuchung an AlN- und AlGaN-Einzelschichten

Bisher wurde das Verhalten von TDs an Grenzsichten und das AlGaN-Einzelschichtwachstum mit verschiedenen Zusammensetzungen diskutiert. Für das DBR-Wachstum gilt es nun, den besten Kompromiss für die Wachstumstemperatur zu finden. Für eine hohe Spiegelreflektivität ist ein großer Brechungsindexkontrast, und damit ein kleiner AlN-Anteil in der AlGaN-Halbperiode notwendig. Aufgrund der unterschiedlichen Zersetzungstemperatur (Tabelle 1.2) und *sticking*-Koeffizienten (Ga 0,2-0,3; Al ~1) führen hohe Wachstumstemperaturen auf bessere Kristallqualität für AlN-Schichten. Niedrige Wachstumstemperaturen eignen sich für die GaN-Herstellung, bzw. AlGaN-Herstellung mit niedrigem AlN-Gehalt. Für die zu wachsenden AlGaN/AlN-DBRs bedarf es eines Wachstumstemperaturkompromisses, will man Temperaturrampen und damit verbundene Wachstumsunterbrechungen während des Prozesses vermeiden.

5.3.1 Wachstum

Tabelle 5.3 gibt eine Übersicht der bei verschiedenen Wachstumstemperaturen hergestellten AlGaN- und AlN-Proben. Die zwischen 113 nm und 165 nm dicken AlGaN-Schichten sind innerhalb von 20 Minuten auf AlN-Puffern gewachsen worden. Die AlN-Puffer entsprechen den untersuchten AlN-Einzelschichtproben bei gleicher Wachstumstemperatur.

T [°C]	Al _x Ga _{1-x} N x≤0,1				AlN		
	AFM 1x1μm [rms nm]	n bei 400nm	Rate [nm/min]	E _g [eV]	AFM 1x1μm [rms nm]	n bei 400nm	Rate [nm/min]
720	1.4	2.446	8.25	3.55	2.0	2.071	8.51
730	2.0	2.441	6.86	3.60	1.4	n/a	8.45
740	4.3	2.362	6.10		2.9	2.060	8.91
750	4.2	n/a	5.67	3.62	2.8	2.088	9.73

Tabelle 5.3. Übersicht bei verschiedenen Wachstumstemperaturen hergestellter AlGaN- und AlN-Einzelschichten.

Nach dem Wachstum eines 2-Minuten-AlN-Niedrigtemperatur-Puffers bei 690°C wurde das Wachstum nach einer 2-minütigen Temperaturrampe bei der in Tabelle 5.3 angegebenen Temperatur für 30 Minuten fortgesetzt. Der Stickstofffluss betrug 0,7 sccm und der OED-Wert 2,6 V. Die AlN-Schichten wurden mit einem Al-Fluss von $5,4 \cdot 10^{-7}$ Torr gewachsen. Bei den AlGaN-Schichten wurde der Al-Fluss auf $1,8 \cdot 10^{-7}$ Torr reduziert und ein Ga-Fluss von $2,1 \cdot 10^{-6}$ Torr benutzt. Zwischen der Herstellung der im vorigen Abschnitt beschriebenen AlGaN-Proben und der hier betrachteten Proben wurden Service-Arbeiten an der Reaktorkammer notwendig. Besonders wurden Zellen ausgetauscht, und die verwendete Al-Zelle umgesetzt. Der AlN-Anteil an den AlGaN-Schichten ist daher bei gleichem Fluss nicht unmittelbar vergleichbar.

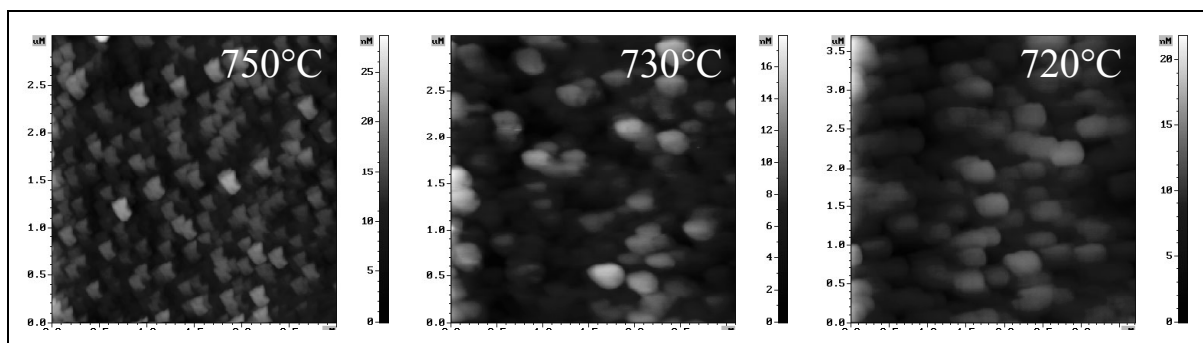


Abbildung 5.14. AFM-Bilder bei verschiedenen Temperaturen hergestellter AlN-Einzelschichten.

Für die hier untersuchten $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -Schichten ist $x \leq 0,1$, was aus XRD-Messungen für die unter gleichen Bedingungen hergestellten DBR-Referenzproben (Kapitel 6), bzw. den aus PL-Messungen gewonnenen Bandkantenenergien abzuleiten ist.

Alle hergestellten Proben zeigen für die DBR-Herstellung akzeptable AFM-Oberflächenrauigkeiten (Tabelle 5.3). Während die AFM-Bilder der AlN-Schichten für alle betrachteten Wachstumstemperaturen ein 3D-Wachstum offenbaren (Abbildung 5.14), zeigt die bei 720°C hergestellte AlGaN-Schicht eine glatte, auf 2D-Wachstum weisende Oberfläche (Abbildung 5.15). Für die DBR-Herstellung wäre natürlich ein 2D-Wachstum für beide Halbperioden wünschenswert.

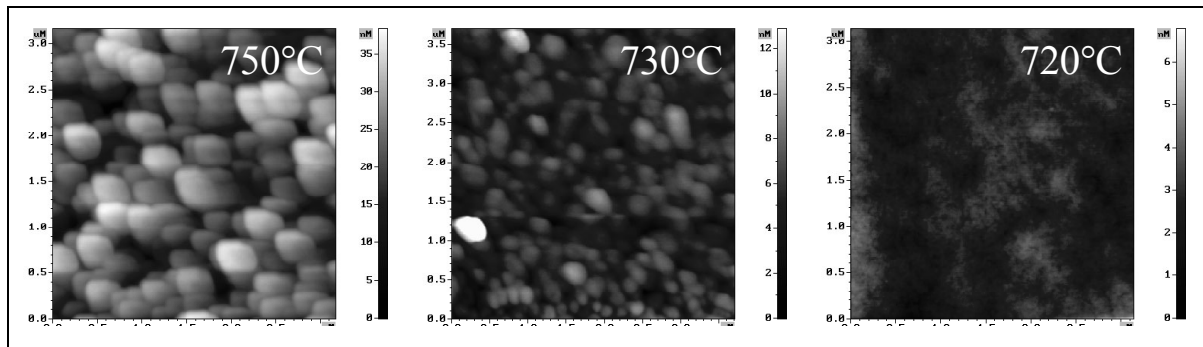


Abbildung 5.15. AFM-Bilder bei verschiedenen Temperaturen hergestellter AlGaN-Einzelschichten.

Für die ideale Wachstumstemperatur sollte nach Kapitel 2 die Wachstumsgeschwindigkeit unter metallreichen Bedingungen maximiert werden. Alle Proben wiesen am Rand Metalltröpfchen auf, was als Indiz für metallreiches Wachstum gewertet werden darf. Während für AlN die höchste Wachstumsrate bei 750°C erreicht wird, ist dies für AlGaN schon bei 720°C der Fall (Tabelle 5.3). Dabei ist die AlN-Wachstumsrate bei 720°C mit $8,5 \text{ nm/min}$ immer noch auf hohem Niveau und liegt sogar etwas über der maximalen AlGaN-Wachstumsrate ($8,3 \text{ nm/min}$) bei gleicher Temperatur. Die Oberflächenrauigkeiten sind für die bei 720°C und 730°C gewachsenen Einzelschichten nahezu identisch. AFM-Bilder und Wachstumsgeschwindigkeiten weisen also auf eine ideale DBR-Wachstumstemperatur von $\sim 720^\circ\text{C}$.

5.3.2 Optische Eigenschaften

Um zu bestätigen, dass die Wachstumstemperatur 720°C betragen sollte, bedarf es der Kontrolle der optische Eigenschaften der Schichten. Abbildung 5.16 zeigt die PL-Spektren

von AlGaN-Einzelschichten. Die bei 740°C gewachsene Probe zeigt große optische Aktivität an der Bandkante aufgrund einer hohen Hintergrundladungsträgerkonzentration und intensive gelbe Lumineszenz. Anders die bei niedriger Temperatur hergestellten Schichten. Die optische Aktivität, und damit die intrinsische Ladungsträgerkonzentration, ist so gering, dass Raman-Linien der Laser-Anregung sichtbar sind. Die Intensität der gelben Lumineszenz ist gering. Die gefundene Bandkantenlumineszenz verschiebt sich zu höheren Energien mit wachsender Wachstumstemperatur. Mit höherer Temperatur wird mehr Ga desorbiert und der AlN-Anteil im AlGaN-Kristall steigt aufgrund des größeren *sticking*-Koeffizienten des Aluminiums.

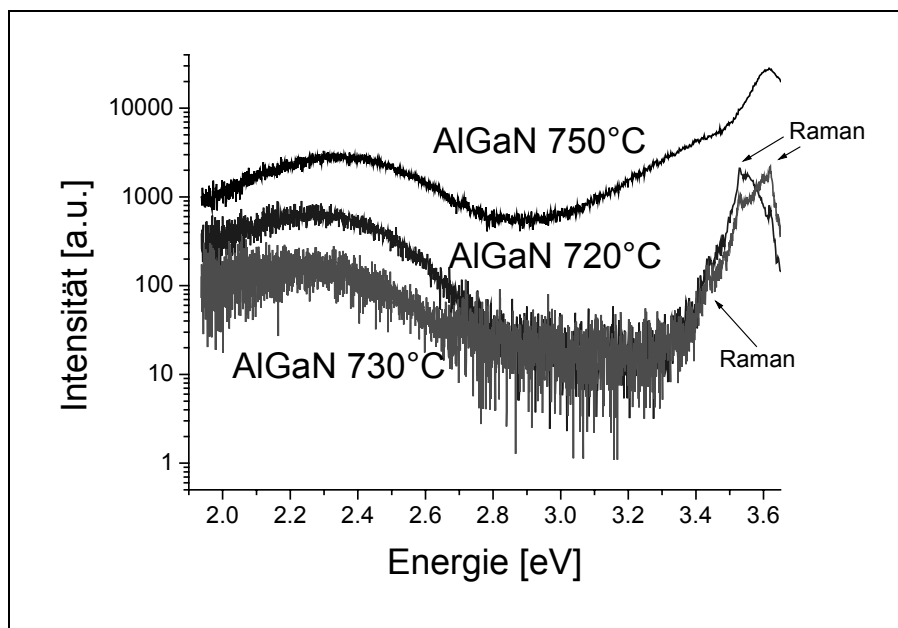


Abbildung 5.16. PL-Spektren dreier bis auf die Wachstumstemperatur identisch hergestellter AlGaN-Einzelschichten.

Das Ergebnis der SE-Fits zeigt Abbildung 5.17. AlGaN-Schichten wurden mit dem Tanguy-Modell gefittet, AlN-Schichten mit dem Sellmeier-Modell. Die AlN-Fits unterscheiden sich nur wenig von der Literaturreferenzdispersionskurve [117]. Durch das 3D-Wachstum ist die Dichte der AlN-Schichten nicht so hoch wie die einer 2D-gewachsenen, fehlerlosen Vergleichsschicht. Der Brechungsindex liegt daher etwas unter dem Erwartungswert, die Streuung des Brechungsindexwertes über die verschiedenen Proben ist jedoch gering. Der Effekt ist wesentlich größer für die AlGaN-Schichten. Während die bei niedriger Temperatur nahezu unter 2D-Bedingungen gewachsenen Schichten den gewünschten, hohen

Brechungsindex zeigen, bricht der Brechungsindex für die 740°C-Probe stark ein. Die bei 750°C Substrattemperatur gewachsene AlGaN-Schicht ließ sich überhaupt nicht fitten.

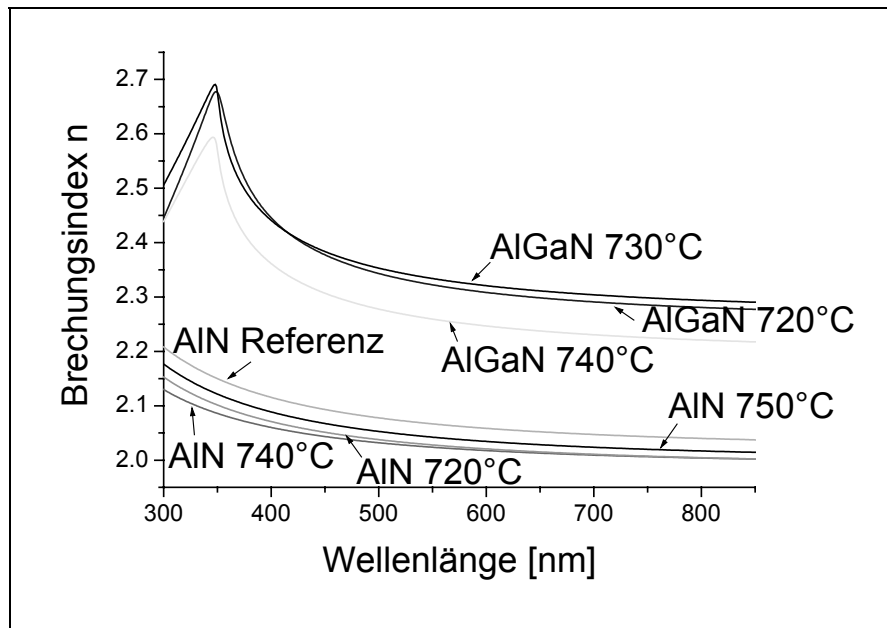


Abbildung 5.17. Dispersionskurven von AlN- und AlGaN-Einzelschichten.

Aus den vorgestellten Ergebnissen wird klar, dass die ideale Wachstumstemperatur für die AlGaN/AlN-DBR-Herstellung 720°C betragen sollte. Bis auf den ersten der Spiegel (der einen deutlich höheren AlN-Anteil innerhalb der AlGaN-Halbperiode aufweist), die im nächsten Kapitel besprochen werden, ist diese Vorgabe umgesetzt worden. Für das in Kapitel 3.4 vorgestellte DBR-Design wurden die Literaturreferenzwerte der Sellmeier-Dispersionsrelation für die AlN-Halbperiode benutzt. Zum einen ist die Abweichung nach Abbildung 5.17 relativ gering. Zum anderen wird nach gesammelter Erfahrung mit der Software „Spectraray“ der Tanguy-Fit der optischen Parameter der AlGaN-Halbperiode nach der Herstellung und XRD-Analyse der DBRs deutlich erleichtert, bzw. erst ermöglicht. Die Sellmeier-Parameter der AlN-Halbperioden können nicht „davonlaufen“, und damit auch nicht die Tanguy-Parameter der AlGaN-Halbperiode unbrauchbar machen. Ein kleiner Fehler in der Größenordnung 0,02 im Brechungsindex n muss deshalb in Kauf genommen werden.

6 DBR- und VCSEL-Wachstum

Die VCSEL-Herstellung ist eine der komplexesten Aufgaben, die bisher der Gruppe-III-Nitridtechnologie gestellt worden sind. Die Gesamtheit der bis hierher angeführten Methoden wird benötigt, um die VCSEL-Produktion sinnvoll an das Design zu koppeln und Rückmeldungen aus der Charakterisierung wiederum in ein neues Design einfließen zu lassen. Auf die SE-Simulation folgt die Produktion, dann die SE-Messung, die Rasterkraftmikroskopie, die XRD-Messung, die optische Reflexionsmessung und die TEM-Untersuchung. Das Konzert der erhaltenen Daten ermöglicht die Verfeinerung der Simulationsparameter und dadurch die stetige Steigerung des Produktionserfolges.

Die VCSEL-Struktur nach Abbildung 1.3 besteht aus einem unteren DBR, einer Zwischenschicht zur Definition der Resonatorlänge, dem aktiven Medium, hier ein GaN/AlGaN-MQW, einer weiteren Zwischenschicht und dem oberen DBR. Der obere DBR kann alternativ auch *ex-situ* aufgebracht werden.

Aufgrund der Dicke des Substrates kann die geplante Elektronenstrahlanregung des aktiven Mediums nur durch den oberen DBR erfolgen. Das Design der VCSEL ist so ausgelegt, dass das Maximum der Energieabgabe der eindringenden Elektronen mit der vertikalen Position des aktiven Mediums korreliert [13]. Durch den unteren DBR und das Substrat erfolgt die Messung der Emission. Optisches Pumpen kann von oben und unten erfolgen, da das Saphirsubstrat im interessierenden UV-Bereich transparent ist.

Wie in Kapitel 5.1 gezeigt konnte durch die Einführung von dünnen AlN-Zwischenschichten eine Reduzierung der TDs erreicht und so die Materialqualität deutlich gesteigert werden. Es konnte festgestellt werden, dass sich die AlN-Halbperioden eines AlN/AlGaN-DBRs analog verhalten. Die aus Kapitel 5.2 und 5.3 stammenden Ergebnisse zum AlGaN- und AlN-Einzelschichtwachstum wurden genutzt um möglichst ergiebige Wachstumsbedingungen für die DBRs festzulegen.

Das DBR-Wachstum ist auf die Abfolge der unterschiedlichen Materialien innerhalb einer Periode des Spiegels abgestellt. Es wird eine genaue Analyse des DBR-Wachstumsverhaltens gemacht. Die Verzerrungsanalyse der DBRs mittels des schon vorgestellten quantitativ-qualitativen XRD-Verfahrens (Kapitel 4.5) wird um die Bestimmung der kritischen Schichtdicken der Halbperioden ergänzt.

Die Untersuchung von GaN/AlGaN-MQWs wurde mit dem Ziel verfolgt einheitliche Wachstumsparameter, ausgehend von den DBR-Wachstumsparametern, für die gesamte VCSEL-Struktur zu behalten. Zusätzlich musste auf die Emissionseffektivität geachtet

werden. Schließlich wird die Umsetzung aller Einzelschritte in einem einzigen Wachstumsprozeß, der Herstellung der VCSEL-Struktur, beschrieben, und auf die Schwierigkeiten eingegangen, die sich aus den resultierenden langen Prozessdauern ergeben.

6.1 Bragg-Reflektoren

Um den optischen Resonator um das aktive Medium einer VCSEL-Struktur zu definieren, kann man verschiedene Arten von Spiegeln benutzen. Die Stärke der DBRs liegt in der freien Wählbarkeit der Reflektionswellenlänge begründet, was nicht nur optisches Pumpen gegenüber einer Struktur mit einem nicht-frequenzselektiven Spiegel deutlich vereinfacht. Auch wird das Verstärkungsprofil einer Laser-Struktur durch ein begrenztes Reflexionsspektrum klarer definiert – der DBR dient als Verstärkungsmodenselektor. Kann man den DBR zusätzlich mit dem gleichen Materialsystem herstellen, wie das aktive Medium selbst, kommt noch die Prozessintegration hinzu, da beide in einem Arbeitsschritt produziert werden können. Darauf zielt die Verwendung von AlN- und AlGaIn-Halbperioden ab. Kritisch ist der zu erwartende Brechungsindexunterschied, der die Reflektivität des Spiegels wesentlich bestimmt (Kapitel 3.4). Es ist darauf zu achten, dass die Spiegelzusammensetzung so gewählt ist, dass keine Absorption innerhalb des Spiegels auftritt. Beispielsweise kann man den Reflexionspeak des Spiegels mit dem $\lambda/4$ -Design auf 362 nm legen. Würde nun in einer Halbperiode des DBRs GaN verwendet, käme es zur Absorption des zu reflektierenden Lichtes, da die Bandkante von GaN gerade bei 362 nm liegt. Für das Spiegeldesign bedeutet dies, dass anstelle eines maximalen Brechungsindexunterschiedes bei einem GaN/AlN-Spiegel ein $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{AlN}$ -Spiegel mit ca. $x > 0,05$ verwendet werden muss, falls GaN als aktives Medium dient. Die Emission der später beschriebenen GaN/AlGaIn-MQWs liegt in diesem Bereich.

Vom ersten vorgestellten DBR auf der Basis von GaN von Khan et. al [118] bis zu jüngeren Arbeiten [121,122,119,120,123] wurden erhebliche Fortschritte erzielt. Mit AlN/GaN-Reflektoren ist eine Reflektivität von 99% erreicht worden. Diese Materialkombination ist jedoch wie gesagt für das vorgesehene UV-VCSEL-Design untauglich. Das gleiche gilt für AlGaIn/GaN-DBRs [119,123]. Um DBRs für den Spektralbereich um 360 nm einsetzen zu können, braucht man AlGaIn/AlN-Spiegel, wie sie von Kipshidzide et al. [120] und Semond et. al [122] mit Reflektivitäten von 93% bzw. 78% per MBE produziert worden sind. Im Rahmen dieser Arbeit gelang es, mit dem AlGaIn/AlN-System Spiegel mit Reflektivitäten bis zu 97% herzustellen. Ein entscheidender Nachteil des gewählten Materials liegt in der Isolatoreigenschaft des AlN ($E_g \approx 6,2\text{eV}$). Elektrisches Pumpen ist so problematisch.

Gewachsene UV-VCSEL-Strukturen sind deshalb entweder durch Elektronenstrahlen oder optisch gepumpt worden [13]. Eine mögliche Lösung stellt die vertikale Strukturierung dar, deren Ziel neben der Verminderung lateraler Streuverluste elektrische Kontakte direkt am aktiven Medium sein müssen. Zu diesem Thema liegen aber bisher keine Arbeiten vor.

6.1.1 DBR-Wachstumsanalyse

Das große Problem des DBR-Wachstums der Gruppe-III-Nitride ist die Prozessparameterkontrolle. Viele DBR-Wachstumsversuche scheitern an mangelhafter Charakterisierung der die Periode des Spiegels ausmachenden Einzelschichten [121]. Einige Arbeitsgruppen nutzen verschiedene optometrische *in-situ* Verfahren zur Wachstumskontrolle, d.h. das Reflexionsmaximum des Spiegels wird bereits während des Wachstums vermessen und das Wachstum danach gesteuert [122,120,123]. Das *in-situ* gemessene Reflexionsmaximum kann allerdings bei Raumtemperatur an anderer spektraler Stelle sitzen, oder deutlich vermindert ausfallen – die verschiedenen Temperaturabhängigkeiten der Materialparameter der Halbperioden können zu Abweichungen führen. Im vorliegenden Fall wurde, wie ausführlich beschrieben, *ex-situ* SE genutzt (Kapitel 3.4). Das hat den Vorteil, dass temperaturbedingte Materialparameterverschiebungen, die *in-situ* berücksichtigt werden müssen, keine Rolle spielen^a. Um Wachstumsparameterdrift im Betrieb der genutzten Riber MBE 32 Anlage zu minimieren ist es für das DBR-Design allerdings zwingend erforderlich die notwendige Referenzprobe am selben Tag unmittelbar vor dem entsprechenden Spiegel zu produzieren *und* zu charakterisieren.

Ein wesentlicher Faktor des DBR-Wachstumsprozesses ist die Kontrolle der initialen Gitterverzerrung, die durch die Gitterfehlانpassung zwischen Puffer und den Halbperioden des Spiegels auftritt [123]. Die Wahl der Pufferschicht, auf welche die Abfolge der DBR-Halbperioden aufgewachsen wird, ist daher überaus wichtig. In ersten Versuchen der DBR-Herstellung ist von der Annahme ausgegangen worden, dass es günstig sei, einen Puffer mit einer der durchschnittlichen DBR-Gitterkonstanten nahen Gitterkonstanten zu wachsen, und so die anliegende Verspannung gleichmäßig auf die jeweiligen Halbperioden zu verteilen (AlGaN tensil, GaN kompressiv). So wurden AlGaN-Puffer mit mittleren AlN-Anteilen benutzt, auf welche GaN/AlGaN-DBRs (mit höherem AlN-Anteil) abgeschieden worden sind

^a Als Zielvorgabe des Designs wurden RT-Reflektivitäten vorgegeben. Beim späteren Betrieb eines VCSELS auftretende Effekte, die ebenfalls die Resonanzwellenlänge leicht verschieben können (Temperatur des Elektronen-Loch-Plasmas beim Elektronenstrahlpumpen, Dispersion durch starke optische Felder usw.), bedürfen einer weiteren Untersuchung, die über den Rahmen dieser Arbeit jedoch hinaus geht.

[124]. Trotz erster ermutigender Resultate führte dies schließlich nicht zum gewünschten Erfolg hochreflektierender Spiegel, da die tensile Verspannung der AlGa_N-Halbperiode schnell zu Rissen (*micro-cracks*) im epitaktischen Film führte. In dieser Arbeit wurden ausschließlich dicke (~260 nm), nahezu relaxierte AlN-Puffer verwendet. Auf diese Weise werden *beide* Halbperioden des DBRs einer kompressiven, lateralen Verspannung ausgesetzt, die zwar höher ist, als die Verspannung bei einem Puffer mittlerer Gitterkonstante. Jedoch können Risse nicht so leicht entstehen, weil die Spannung den DBR lateral „zusammendrückt“. Ein Riss aber braucht Platz.

Bei der DBR-Herstellung sollte durch die Verwendung von AlN-Halbperioden noch ein weiterer Effekt Ausgenutzt werden. Die mit den HT-AlN-Zwischenschichten gemachten Erfahrungen sollen in das DBR-Wachstum einfließen: Je nach Dicke der dünnen AlN-Zwischenschichten werden TDs gebogen bzw. ganz gestoppt [125]. Die AlN-Halbperioden des Spiegels selber sollen für das Stoppen der TDs während des Wachstums ausgenutzt werden. Bis zu einem gewissen Grad war dieser Ansatz erfolgreich: An Probe B3 konnte eine TD-Reduktion um eine Größenordnung durch die erste AlN-Halbperiode nachgewiesen werden (Abbildung 6.1a). Auch in späteren Perioden werden noch TDs aufgehalten (Abbildung 6.1b).

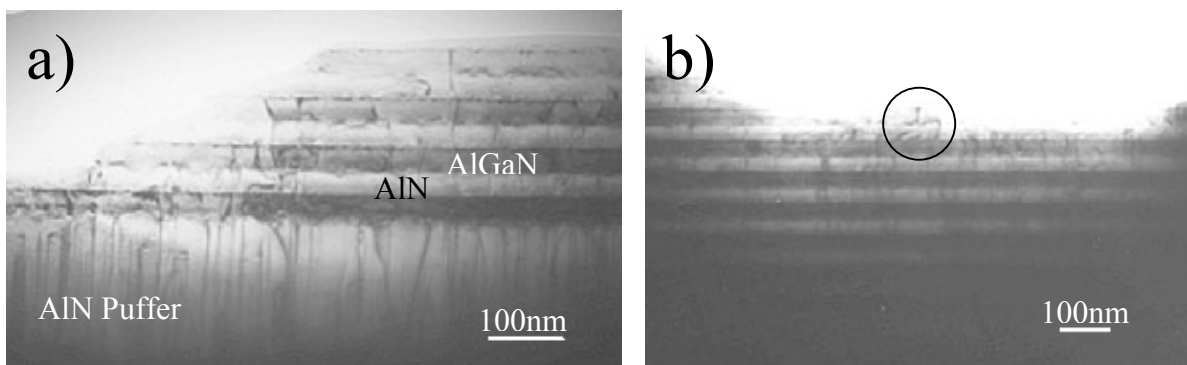


Abbildung 6.1. Hellfeld XTEM (1120) Aufnahme von DBR B3. a) Die Anzahl der TDs geht durch den Einfluss der AlN-Halbperioden von $9.6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ im AlN-Puffer auf $7.7 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ nach der ersten Periode zurück. b) Auch in höheren Perioden wird die Anzahl der TDs noch durch Verschmelzung verringert (siehe Kreis).

Bedingt durch Servicearbeiten an der Reaktorkammer haben sich die Wachstumsparameter gegenüber den im vorigen Abschnitt beschriebenen AlGa_N-Einzelschichten verschoben. Beim Ausheizen der Hauptkammer müssen nicht hitzebeständige Anbauten abgenommen werden. Der erneute Anbau bedingt beispielsweise eine neue Justierung der OED-Diode. Die Neubefüllung der Effusionszellen führt zu einer leichten Veränderung der Richtung der

Dampfstrahlen der Effusionszellen und anderen Temperaturanzeigen, wenn die Thermoelemente leicht verschoben werden, usw. Während des nach der Nitridierung des Saphirs einsetzenden Wachstums wurde die Addon-N₂-Plasmaquelle jetzt bei einem Durchfluss von 0,7 sccm mit 420 W eingepprägter Leistung betrieben. Der OED-Wert lag bei 2,6 V. Der neue OED-Wert wurde nach dem neuerlichen Anfahren der Anlage so bestimmt, dass die Wachstumsraten vor und nach der Kammeröffnung überein stimmten (Kapitel 2.2.1). Es wurden wiederum metallreiche Wachstumsbedingungen mit einem konstanten Ga-Fluss von $2,1 \cdot 10^{-6}$ Torr gewählt.

Probe	Art (Perioden- anzahl)	x	E _g [nm]	Periodenlänge (Design) SEM [nm]	AFM [rms nm auf 1x1 μm ²]	Refl. 70° [max %]	Reflektivität [max %]	Peak (Design) [nm]	FWHM [nm]
A1	Al _x Ga _{1-x} N	37	290		2,0				
A2	DBR (5.5)	(37)*		79,2 (84,9)	2,4	48,3	53,6	377(380)	51
B1	Al _x Ga _{1-x} N	6	349		1,4				
B2	DBR (10.5)	(6)*		72,0 (77,4)	1,4	57,2	87,9	355(362)	37
B3	DBR (20.5)	(6)*		72,3 (77,4)	0,7	61,3	95,4	353(362)	31
C1	Al _x Ga _{1-x} N	6	352		2,3				
C2	DBR (40.5)	(6)*		74,8 (77,8)	0,9	79,5	95,2	361(362)	36

* Wert von der Referenzprobe übernommen

Tabelle 6.1. Eigenschaften des ersten hergestellten DBR Probensatzes.

Vor der Herstellung der Spiegel A2, B2, B3 und C2 sind die zugehörigen Referenzproben A1, B1 und C1 gewachsen worden (Tabelle 6.1). Da Probe B3 unmittelbar nach Probe B2 produziert wurde, kann auch hier B1, welche unmittelbar vor B2 hergestellt wurde, als Referenz dienen. Die MBE-Anlage war für die drei B-Proben ununterbrochen in Betrieb. Wie detailliert in Kapitel 3.4 beschrieben, bestehen die Referenzproben aus einem ~15 nm dicken AlN-Puffer auf Saphir, gewachsen bei 690°C Substrattemperatur. Darauf folgt der dicke AlN-Puffer (~260 nm), gewachsen bei 720°C (750°C für A1+A2), und schließlich die ca. 140 nm dicke AlGaN-Schicht, die bei gleicher Temperatur wie der AlN-Puffer aufgebracht wurde. Die verglichen mit den AlGaN-Einzelschichten abgesenkte Substrattemperatur der B- und C-Proben erklärt sich aus der Notwendigkeit, einen Wachstumstemperaturkompromiss zwischen AlN und Al_xGa_{1-x}N mit $x \approx 0,06$ zu finden (Kapitel 5.3). Mit Hilfe des Tanguy-Fits wurden die optischen Eigenschaften der AlN- und der AlGaN-Schichten bestimmt. Daraus wurden die notwendigen Schichtdicken der Halbperioden des folgenden Spiegels berechnet (Kapitel 3.4).

Mit den ebenfalls durch die Referenzprobe festgestellten Wachstumsraten von AlN und AlGa_N wurden dann die Shutter-Öffnungszeiten festgelegt.

Während des DBR-Wachstums wurde nach jeder Halbperiode eine Minute lang das Wachstum unterbrochen, um die Dampfstrahlen der frisch geöffneten Effusionszellen hinter dem Hauptshutter zu stabilisieren. Im ersten Versuch wurde die Designwellenlänge auf 380 nm gelegt. Dieser Wert liegt deutlich unterhalb der Bandkante des niederprozentigen Al_xGa_{1-x}N. In diesem Spektralbereich weisen die Brechungsindexdispersionskurven eine relativ schwache Steigung auf, so dass Fehler in der Schichtdickenberechnung bzw. Abweichungen in den tatsächlichen Depositionsraten leichter aufgefangen werden können (Abbildung 3.8). Nachdem für den ersten DBR A2 eine geringe Abweichung vom Design festgestellt werden konnte (Tabelle 6.1), konnte zu Bereichen größerer Steigung der Dispersionskurve, und damit größerem Brechungsindexkontrast übergegangen werden.

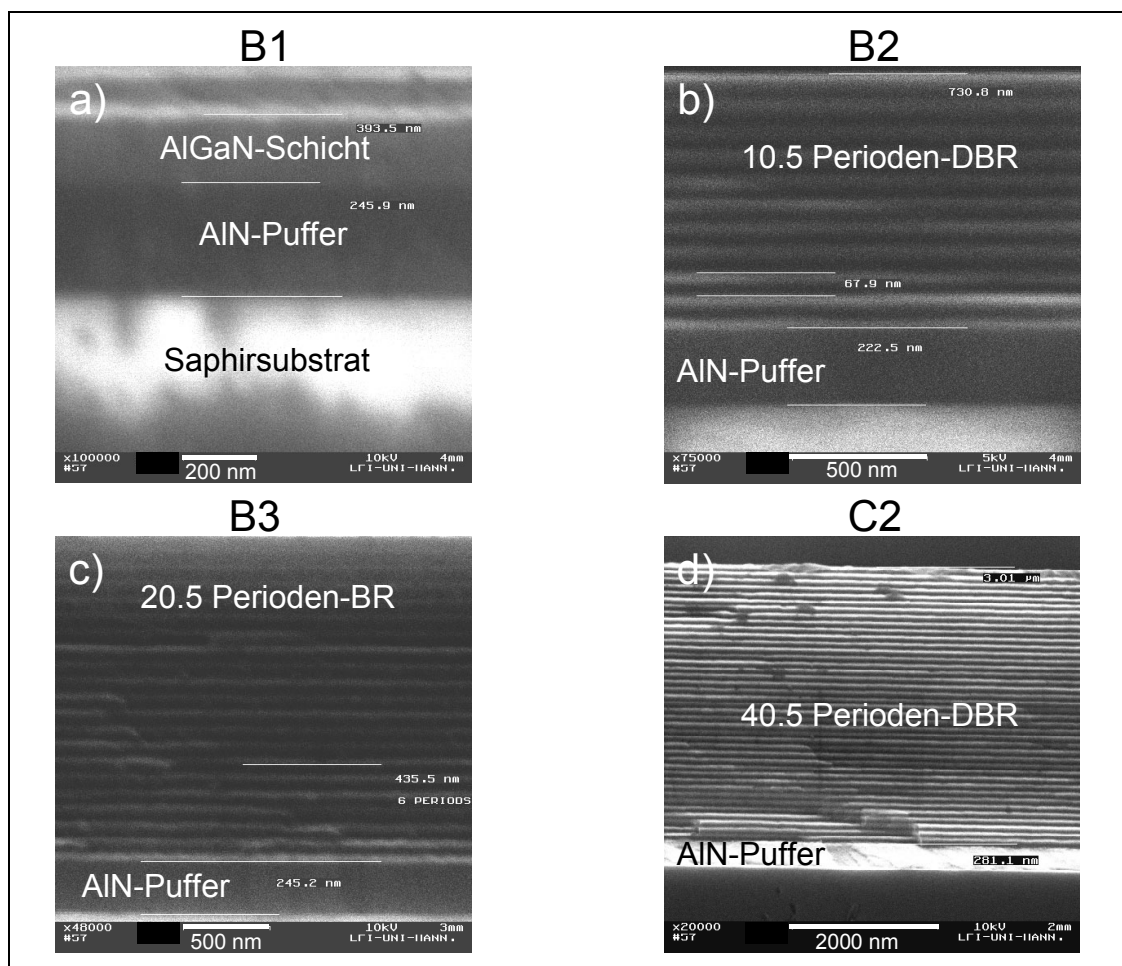


Abbildung 6.2. SEM Bilder von a) Referenzprobe B1 (AlGa_N auf AlN), b) 10,5 Perioden DBR B2, c) 20,5 Perioden DBR B3, d) 40,5 Perioden DBR C2.

Nach dem Wachstum wurden alle Proben mit SE vermessen, im Lichtmikroskop betrachtet, zersägt und per SEM vermessen, die Oberfläche mit AFM abgerastert und mit XRD charakterisiert. Das wichtigste Ergebnis, die Reflektivität der Spiegel, wurde per Reflektometrie unter 3° Einfallswinkel (zur Oberflächensenkrechten) geprüft.

Die verschiedenen, eingesetzten Charakterisierungsmethoden geben ein zusammenhängendes Bild des Wachstumsprozesses ab. SEM-Bilder zeigen, dass die vorgegebenen Schichtdicken nahezu eingehalten werden konnten. Tabelle 6.1 zeigt den Unterschied zwischen Design- und Wachstumswerten der Periodenlängen. Alle Strukturen in Abbildung 6.2 zeigen sehr glatte und regelmäßige Grenzschichten. Gemeinsam mit den geringen gemessenen AFM-Oberflächenrauigkeiten beweist das die gute kristalline Qualität der hergestellten Proben. Die Oberflächenrauigkeit ist dabei mit etwa 2 nm rms vergleichbar jener der zuvor besprochenen AlGaN-Einzelschichten (Kapitel 5.2) [126].

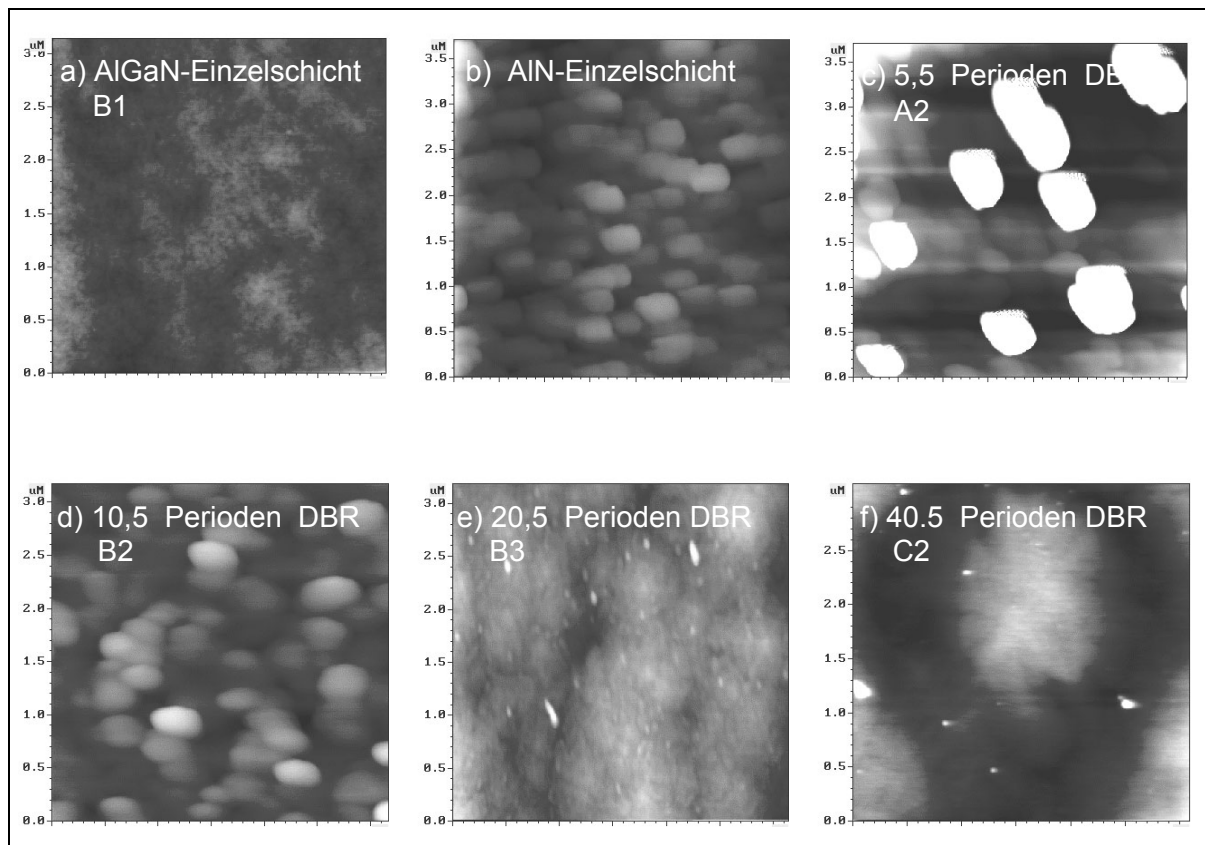


Abbildung 6.3. AFM-Bilder von a) Referenzprobe B1, AlGaN auf AlN (Farbskala umfasst 6,5 nm), b) Hochtemperatur AlN-Puffer (Farbskala 20 nm), c) 5,5 Perioden DBR A2 (Farbskala 20 nm), d) 10,5 Perioden DBR B2 (Farbskala 10 nm), e) 20,5 Perioden DBR B3 (Farbskala 8 nm), f) 40,5 Perioden DBR C2 (Farbskala 10 nm).

Die Oberflächenmorphologie der AlGaN-Schichten entspricht einem 2D Wachstumsverhalten, wie es für den optimierten AlGaN-Wachstumsprozess sein sollte (Abbildung 6.3 a). Im Gegensatz dazu wächst das AlN in einem 3D-Modus, was wegen der für AlN relativ geringen Wachstumstemperatur auch zu erwarten war (Abbildung 6.3 b). Damit übereinstimmend zeigt der RHEED-Schirm während der Deposition von AlN auf den 3D-Wachstumsprozeß hindeutende Punkte (Abbildung 6.4 b). Weil Temperaturrampen nach jeder Halbperiode zu ungewollten Verspannungseffekten führen können, wurde das 3D-Wachstum der AlN-Halbperiode bei für AlN niedriger Temperatur in Kauf genommen. Die nachfolgende AlGaN-Abscheidung bei gleicher Temperatur führte auf ein glattes, 2D-Überwachsen der 3D-Struktur, vorausgesetzt eine gewisse kritische Probendicke zwischen $0,75\ \mu\text{m}$ (Probe B2) und $1,5\ \mu\text{m}$ (Probe B3) wurde überschritten. Die Spiegel A2 und B2 zeigen noch 3D-Kristallite an der Oberfläche, wogegen die beiden DBRs B3 und C2 glatte Oberflächen aufgrund des 2D-Überwachsens zeigen (Abbildung 6.3 c-f).

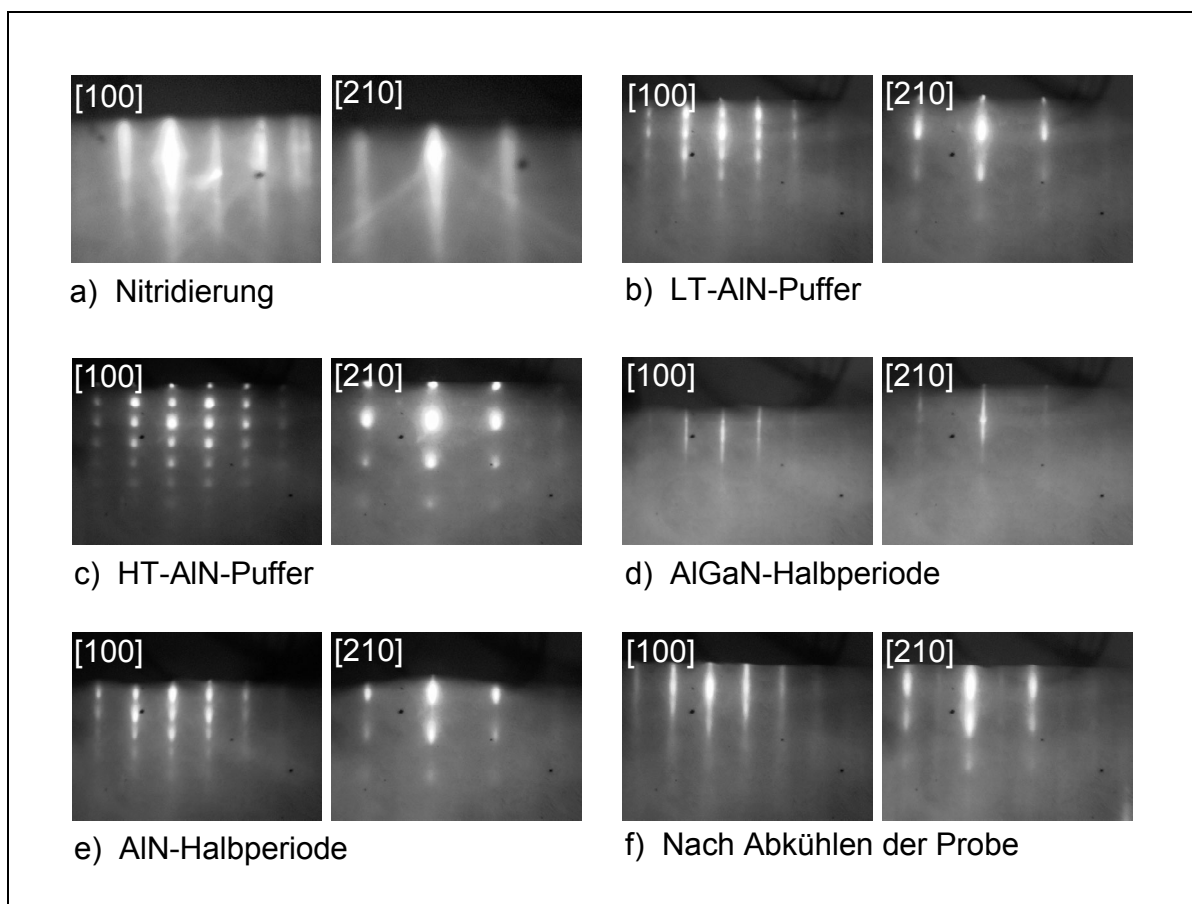


Abbildung 6.4. RHEED Entwicklung der Probe C2. Die Schirmbilder wurden während des Wachstums des 40,5 Perioden Spiegels gemacht. Gezeigt sind die beiden RHEED Azimute [100] und [210] a) nach der Nitridierung, b) nach dem $\sim 15\text{nm}$ AlN Puffer, c) nach dem dicken HT AlN Puffer, d) nach der 15. AlGaN Halbperiode, e) nach der 15. AlN Halbperiode, f) nach Wachstumsende und Abkühlung der Probe.

Trotz des zerklüfteten Aussehens der Oberflächen der Proben kleiner Periodenzahl ist die Oberflächenrauigkeit bei allen DBRs gering ($<2,5\text{nm}$) und weit davon entfernt, bestimmend für die optischen Eigenschaften im interessierenden Spektralbereich zwischen 350 nm und 400 nm zu sein. Die durch Gitterfehlpassung der AlN- und AlGaN-Halbperioden induzierte Verspannung führte nur bei dem dicken 40,5-Perioden-Spiegel C2 zum Auftreten von *micro-cracks*. In der Mitte des $\frac{1}{4}$ 2-Zoll-Wafers ist ein Netzwerk hexagonaler Risse zu erkennen (Abbildung 6.5). Am Rand der Probe finden sich Ga-Tröpfchen. Das sich während des Wachstums über die Probe bewegende Ga sammelt sich am kühleren Rand. Schwarze Punkte überall auf der Probe sind kleine, an der Atmosphäre oxidierte Al-Konglomerate. Die Beweglichkeit des Al auf der Probe ist so gering, dass eine Abwanderung zu kühleren Stellen ausbleibt. Im Zwischenbereich erwies sich die Probe als frei von *cracks*. Hier wurde auch die höchste Reflektivität gemessen.

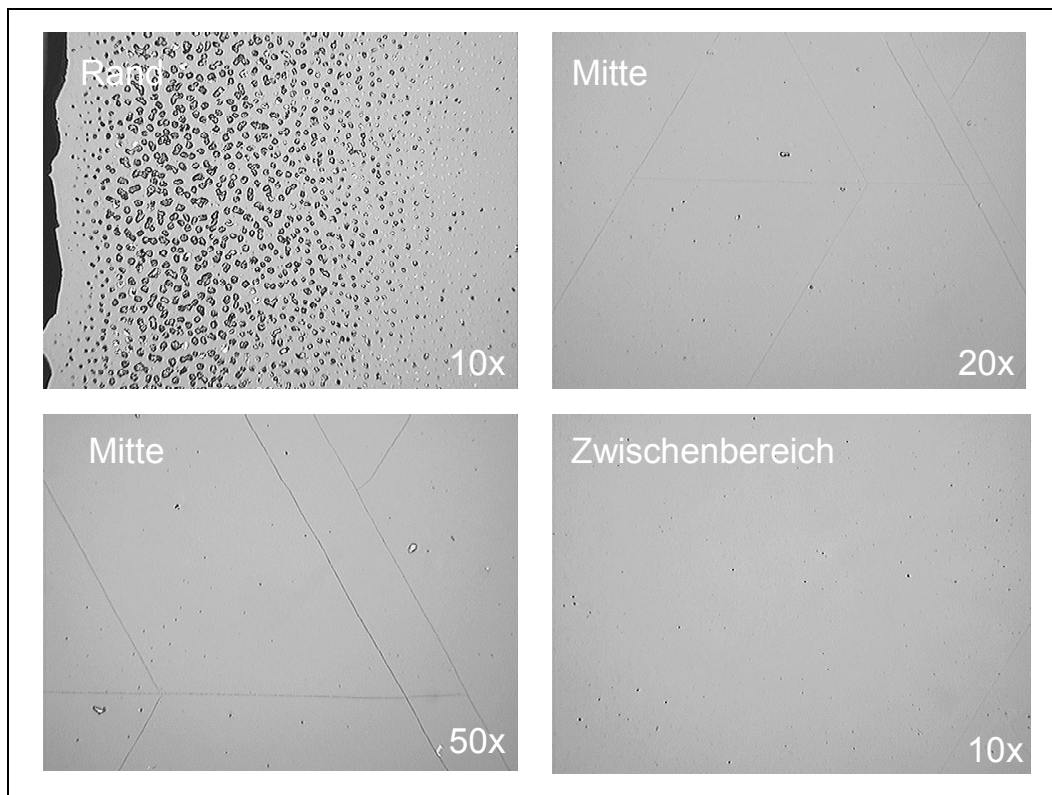


Abbildung 6.5. Lichtmikroskopaufnahmen von DBR C2. Am Rand finden sich Ga-Tröpfchen, was auf metallreiches Wachstum hindeutet. In der Mitte sind hexagonale *micro-cracks* sichtbar. Im Bereich dazwischen sind keine Risse zu erkennen. Die schwarzen Punkte sind Al-Tröpfchen. Die Zahlen geben die eingestellte Vergrößerung an.

Die aufeinanderfolgende Abscheidung von AlGaN im 2D Wachstumsmodus und AlN im 3D Wachstumsmodus wird durch die während des Wachstums von Probe C2 aufgezeichneten

RHEED-Bilder dokumentiert (Abbildung 6.4). Alle Wachstumsprozesse beginnen mit der Hochtemperaturnitridierung durch die Plasma Quelle bis deutliche AlN-Reflexe sichtbar werden (Abbildung 6.4 a). Nachdem der ~ 15 nm dicke Niedrigtemperatur- (690°C) AlN-Puffer abgeschieden ist, bildet sich in beiden Azimuten ein eher linienartiges RHEED-Bild (Abbildung 6.4 b). Für den dicken HT-AlN-Puffer sieht man deutlich den durch das punktige Beugungsbild angezeigten 3D-Wachstumsmodus (Abbildung 6.4 c). Während der anschließenden Spiegeldeposition kann man 2D-Wachstum während des AlGaIn-Halbperiodenwachstums (Abbildung 6.4 d), und die Rückkehr zum 3D-Wachstum während des AlN-Halbperiodenwachstums beobachten (Abbildung 6.4 e). Nach Beendigung des Prozesses und Abkühlung der Probe zeigt das RHEED-Beugungsbild Linien im (100)-Azimut und ein Mischbild in (210)-Richtung (Abbildung 6.4 f). Die letzten RHEED-Bilder zeigen auch eine (1x2)-Oberflächenrekonstruktion. Die beiden Bilder nach Abbildung 6.4f passen zum AFM-Bild Abbildung 6.3f, das große „Hügel“ mit flachen Facetten zeigt: Der RHEED-Elektronenstrahl sieht z.T. in die Seite der „Hügel“ hinein, und liefert einen 3D Anteil am Beugungsbild.

XRD-Messungen mit der x-Bond-Methode ergeben AlN-Anteile von 37% für Probe A1 und jeweils 5,6% für Probe B1 und 6,3% für Probe C1. Der AlN-Anteil der letzteren Proben wurde nach dem erfolgreichen ersten Versuch niedriger angesetzt, um den Brechungsindexkontrast zu erhöhen.

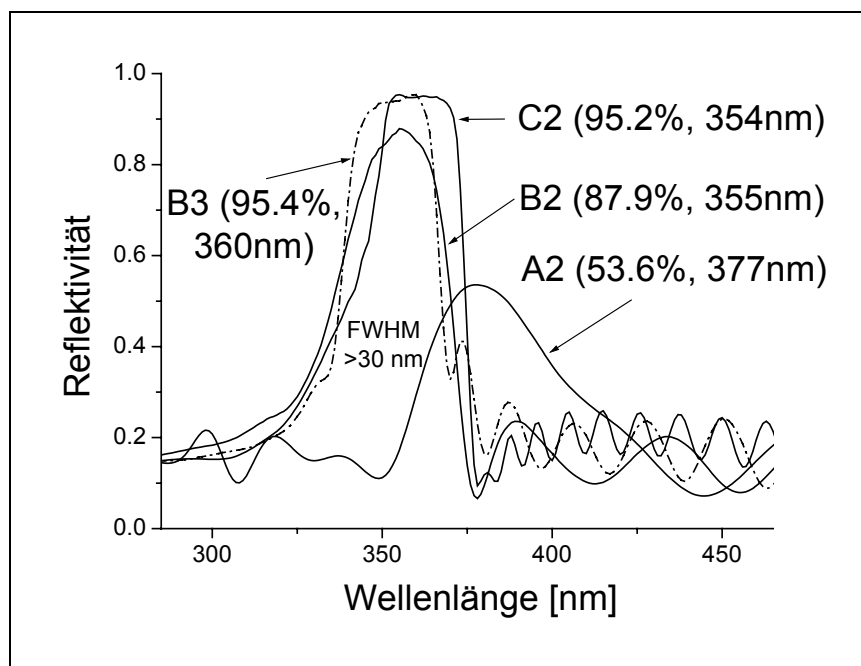


Abbildung 6.6. Maximale Reflektivität der DBRs bei angegebener Wellenlänge, gemessen mit optischer Reflektometrie unter nahezu senkrechtem Einfallswinkel (3°).

An den gewachsenen Spiegeln konnten Reflektivitäten bis zu 95,4% festgestellt werden (Abbildung 6.6). Die mittleren Peak-Positionen befinden sich in sehr guter Übereinstimmung mit den vorgegebenen Design-Werten von 380 nm für DBR A1 und 362 nm für die DBRs B2, B3 und C2. Die große Halbwertsbreite von 36 nm der Probe C2 ist gemeinsam mit der Plateauausbildung des Peaks ein Beleg für die hohe Qualität des Spiegels. Alle Spiegel besitzen ein Reflektivitäts-FWHM >30 nm. Das rührt vom großen Brechungsindexkontrast der Spiegel B2, B3 und C2, bzw. von der geringen Periodenzahl des Spiegels A1 her. Die Peaks der beiden Proben mit großer Periodenzahl (B3 20,5 Perioden, C2 40,5 Perioden) zeigen das Plateau bei ca. 94-95% Reflektivität. In anderen Materialsystemen wird dieses Verhalten nur für Spiegel mit Reflektivität $>98\%$ beobachtet. Wenn man die Bandkantenenergien der AlGaN-Referenzproben berücksichtigt, fällt die Nähe zu den Reflexionsmaxima auf. Möglicherweise sorgt also Absorption in der Nähe der Bandkante der AlGaN-Halbperioden bei den Spiegeln B1, B2 und C2 für die „frühe“ Plateauausbildung des Reflexionspeaks, d.h. das Niveau des Plateaus wird durch Absorption gesenkt.

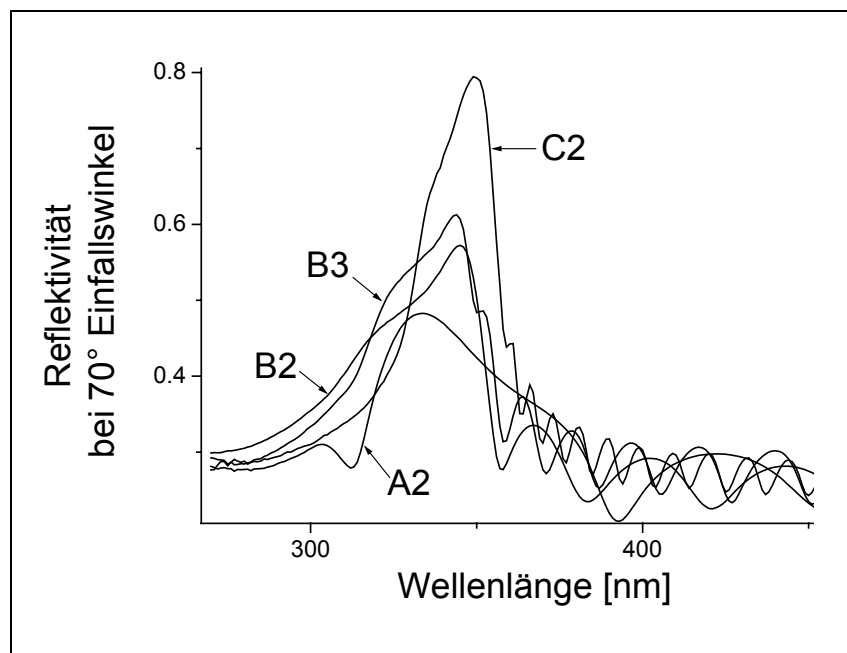


Abbildung 6.7. Reflektivität der DBRs gemessen mit SE unter 70° Einfallswinkel.

Die mit SE unter dem flacheren Einfallswinkel von 70° aufgenommenen (Ψ, Δ) -Kurven können in Reflektivitätsspektren umgerechnet werden (Abbildung 6.7). Der Unterschied zwischen den Proben wird wesentlich deutlicher. An diesen Kurven lässt sich der Einfluss der Anzahl der Perioden auf die Reflektivität ablesen, weil noch keine Plateauausbildung zu sehen ist. Die stärkere Rotverschiebung des Spiegels A2 verglichen mit den übrigen Proben

ist auf die größere Periodenlänge zurückzuführen. Es ist schwierig anhand des Kurvenverlaufs genauere Aussagen aus der 70° -Kurve in Bezug auf den senkrechten Einfall zu erhalten, da Phasenverschiebungseffekte durch die Änderung der Periodenlänge und lokale Inhomogenitäten einen starken Einfluss haben. Bei einer perfekten Struktur könnte die sehr genaue Kenntnis der Halbperiodendicken und Zusammensetzung Abhilfe schaffen. In Kapitel 6.1.4 soll eine entsprechende Simulation der Reflexionskurven versucht werden.

Es kann festgehalten werden, dass das Wachstum von DBRs im AlGaIn/GaN-Materialsystem erfolgreich durchgeführt worden ist. Die erreichten Reflektivitäten von bis zu 95,4% sind im Bereich des für die VCSEL-Produktion Notwendigen. Durch weitere Kristallwachstumsoptimierung sowie Vermeidung von Absorption an der Bandkante sollten auch noch höhere Reflektivitäten erreichbar sein. Um das zu prüfen wird im nächsten Abschnitt ein weiterer DBR (Probe D2) besprochen werden. Die hier erreichte Halbwertsbreite von >30 nm ermöglicht ein sinnvolles Arbeitsfenster für das Abstimmen des Emissionsspektrums eines aktiven Mediums mit dem Spiegeldesign. Die unterschiedlichen verwendeten Wachstumsmodi für AlGaIn (2D) und AlN (3D) auf einem dicken AlN-Puffer ermöglichen *micro crack* freies Wachstum bis mindestens 20,5 Perioden, und auch für 40,5 Perioden wurden *crack* freie Bereiche gefunden [127].

6.1.2 DBR-Verspannungsanalyse

Die im vorigen Abschnitt zitierten erreichten Ergebnisse sind leider aufgrund der in Kapitel 2.3 erwähnten Inhomogenität der untersuchten Proben nur bedingt aussagekräftig. Es ist sehr schwierig, allgemeingültige Aussagen über den Verzerrungszustand ganzer Wafer (einzelner Proben) zu machen. Die drei Wachstumsbereiche auf dem Wafer, die Mitte, der äußere Rand und der Zwischenbereich, weisen deutlich unterschiedliches Verhalten auf, wie eine ausführlichere Analyse der im vorigen Abschnitt behandelten Proben zeigt. Zusätzlich zu den schon besprochenen Spiegeln A2, B2, B3 und C2 wurde ein DBR D2 für die Resonanzwellenlänge 380 nm gewachsen. Die verschobene Zentralwellenlänge sollte Absorption an der Bandkante des AlGaIn vollkommen ausschließen und so evtl. noch höhere Reflektivitäten liefern. Während des Wachstums verschob sich allerdings die Temperatur des Probenalters, so dass eine verminderte Wachstumsrate und so ein Spiegelreflexionsmaximum um 365 nm folgte (Tabelle 6.2). Da gleichzeitig der Al-Anteil mit 7,3% leicht erhöht ist, sollte dennoch kaum Bandkantenabsorption vorliegen. Die Reflektivität ist in der Tat größer.

Probe	Perioden		Design [nm]			gemessen			Verzerrung [%]		Reflektivität Peak(Design)	
	x	[%]	L	L _{AlGaN}	L _{AlN}	L (XRD)	L _{AlGaN}	L _{AlN}	ΔC_{AlGaN}	ΔC_{AlN}	[max %]	[nm]
A2	5.5	37	84.9	40.3	44.7	85.9	41.5	44.4	0.44	-0.20	53.6	377(380)
B2	10.5	5.6	77.4	35.1	42.3	69.3	34.4	37.8	0.30	-0.32	87.9	355(362)
B3	20.5	5.6	77.4	35.1	42.3	72.7	33.3	39.4	0.31	-0.47	95.4	353(362)
C2a	40.5	6.3	77.8	35.5	42.3	75.3	-	-	-	-	95.2	361(362)
C2b	40.5	6.3	77.8	35.5	42.3	76.3	35.1	41.3	0.44	-0.49	88.2	364(362)
D2a	25.5	7.3	83.6	38.9	44.7	79.4	-	-	-	-	96.7	367(380)
D2b	25.5	7.3	83.6	38.9	44.7	76.1	36.0	40.0	0.37	-0.53	85.3	361(380)
D2c	26.5	7.3	83.6	38.9	44.7	70.6	36.0	34.6	0.56	-0.43	73.0	357(380)
D2d	25.5	7.3	83.6	38.9	44.7	75.5	39.4	36.1	0.51	-0.45	25.9	367(380)

Tabelle 6.2. Eigenschaften der DBRs, an denen die XRD Verzerrungsanalyse durchgeführt wurde.

Die kleinen Buchstaben der Probenbezeichnung meinen verschiedene Stellen auf derselben Probe, immer vom metallreichen äußeren Rand nach innen betrachtet. So bezieht sich C2a auf Daten vom hochwertigeren Zwischenbereich nahe des Metallrandes und C2b auf die Probenmitte. Bei Probe D2 kommt Messung a vom Zwischenbereich nahe des Metallrandes, Messung b und c sind verschiedene Stellen des Zwischenbereichs und Messung d schließlich stammt von der Mitte der Probe her. Die erzielten Reflektivitäten fallen zur Mitte hin deutlich ab (Abbildung 6.8). Das Reflexionsmaximum bleibt nahezu an der gleichen Stelle (maximal 2,4% Unterschied), obwohl die Periodenlängen sich um bis zu 12,5% unterscheiden.

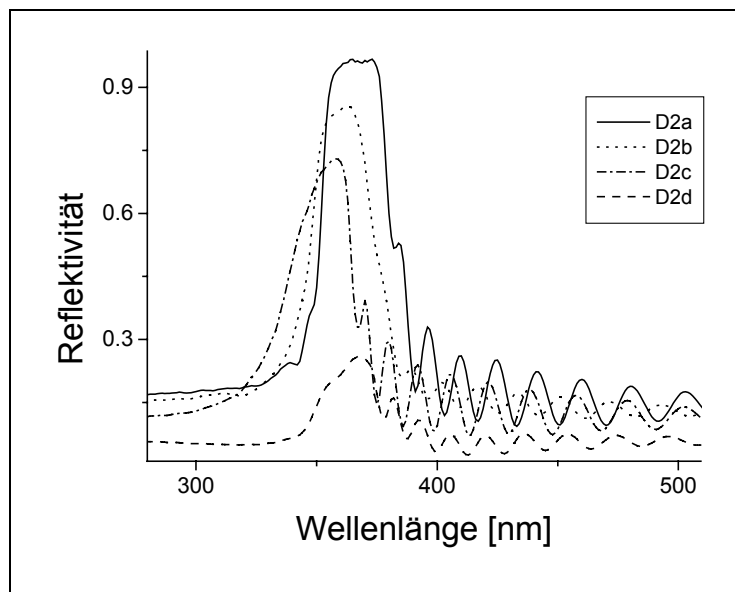


Abbildung 6.8. Reflektivität der DBR Probe D2 an den Stellen a-d (auf der Probe von außen nach innen).

Das Verhältnis der AlGaN- und AlN-Halbperiodenlängen ist allerdings recht unterschiedlich, was diesen Effekt erklärt. Neben der Abweichung der Periodenlängen von den Designwerten spielt auch die Absorption innerhalb des Spiegels eine Rolle.

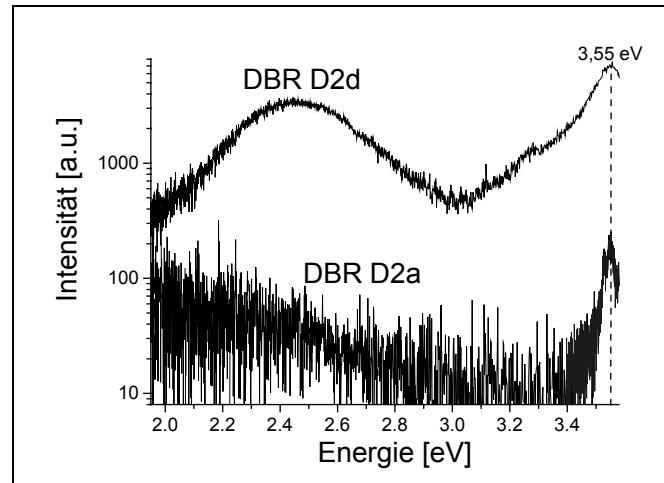


Abbildung 6.9. PL-Spektren des 25,5 Perioden DBRs D2.

Die aufgrund der bereits angesprochenen Inhomogenität im Zentrum der Probe vorliegende schlechtere Materialqualität erzeugt deutlich erhöhte gelbe Lumineszenz, wie die PL-Messung zeigt (Abbildung 6.9). Dies weist auf strahlende Rekombinationszentren hin, die einfallendes Licht absorbieren, und so die Reflektivität des Spiegels vermindern.

Die in Tabelle 6.2 gegebenen Verzerrungswerte verstehen sich bezüglich des entsprechenden relaxierten Wertes nach Gl.(4.14). Sie sind mit der in Kapitel 4.5 beschriebenen quantitativ-qualitativen Übergitterauswertungsmethode gefunden worden. Die Gesamtheit der gefundenen Verzerrungen aus der XRD-Analyse liefert Tabelle 6.3. Wie erwartet sind alle c_{AlN} -Parameter gestaucht, während alle c_{AlGaN} gestreckt sind. In lateraler Richtung ist es entsprechend umgekehrt. Da die laterale Verzerrung nicht direkt gemessen werden konnte^b, wurde sie aus den vertikalen Werten über die materialspezifischen elastischen Moduln berechnet (Kapitel 4.2)[26]. Die in Tabelle 6.3 präsentierten Werte lassen den Schluss zu, dass sich die AlGaN-Halbperioden teilweise gegenüber den AlN-Halbperioden entspannen. Das gesamte Übergitter ist allerdings auch noch relativ zum unterliegenden AlN-Puffer relaxiert, wie deutlich an den XRD-Fits zu erkennen ist (Abbildung 6.10): der Puffer-Peak ist

^b Das Übergitterspektrum hätte an einem unsymmetrischen (*off axis*), reziproken Gitterpunkt vermessen werden müssen. Die XRD-Reflektionsintensität der DBR-Proben ließ eine derartige Messung jedoch leider nicht zu.

immer links des Maximums der Messkurven-Einhüllenden zu finden, was bedeutet, dass die c -Gitterkonstante des Puffers größer ist als die vertikale Gitterkonstante der AlN-Halbperioden. Damit folgt, dass für die lateralen Gitterkonstanten a umgekehrte Verhältnisse vorliegen, was wiederum zum beschriebenen Relaxationsschema passt. Der Scan D2a zeigt im höherwinkligen Bereich zu wenig Struktur. Hier musste auf eine Verzerrungsanalyse verzichtet werden, da der Einhüllenden-Fit kein stimmiges Ergebnis liefert. Bei genauer Betrachtung von Abbildung 6.10 fällt auf, dass auch der Scan C2a nicht recht zur Simulation passt. Keine der drei nach Abschnitt 4.5 gewählten Variationen ließ eine befriedigende Übereinstimmung erkennen. Besonders im wichtigen mittleren Teil des Scans sind grobe Abweichungen festzustellen.

Probe	A2	B2	B3	C2b	D2b	D2c	D2d
Perioden	5.5	10.5	20.5	40.5	25.5	25.5	25.5
x	0.370	0.056	0.056	0.063	0.073	0.073	0.073
c_{avg}	0.5048	0.5075	0.5062	0.5064	0.5071	0.5078	0.5074
c_{AlGaN}	0.5132	0.5189	0.5190	0.5195	0.5199	0.5196	0.5189
c_{AlN}	0.4972	0.4966	0.4958	0.4958	0.4960	0.4960	0.4955
a_{avg}	0.3121	0.3142	0.3157	0.3152	0.3142	0.3133	0.3137
a_{AlGaN}	0.3133	0.3166	0.3165	0.3157	0.3148	0.3152	0.3161
a_{AlN}	0.3123	0.3129	0.3137	0.3138	0.3135	0.3136	0.3141
Δc_{avg}	0.20%	0.07%	-0.19%	-0.12%	0.05%	0.20%	0.13%
Δc_{AlGaN}	0.44%	0.30%	0.31%	0.44%	0.56%	0.51%	0.36%
Δc_{AlN}	-0.20%	-0.32%	-0.47%	-0.49%	-0.43%	-0.45%	-0.54%
Δa_{avg}	-0.38%	-0.12%	0.34%	0.22%	-0.10%	-0.36%	-0.23%
Δa_{AlGaN}	-0.86%	-0.58%	-0.62%	-0.86%	-1.10%	-1.00%	-0.71%
Δa_{AlN}	0.35%	0.55%	0.82%	0.84%	0.75%	0.78%	0.93%
Fit-Faktor	0.59	0.12	-0.34	-0.22	0.10	0.37	0.24
c_{Puffer}	0.4986	0.4987	0.4984	0.4987	0.4986	0.4983	0.4987
a_{buffer}	0.3108	0.3107	0.3109	0.3107	0.3108	0.3111	0.3107

Tabelle 6.3. XRD Verzerrungsergebnisse der untersuchten DBR-Proben nach der quantitativ-qualitativen Methode aus Abschnitt 4.5. Alle Längen in nm.

Im Schnitt liegt die laterale AlGaN-Verzerrung der Spiegel bei -0,82%, diejenige des AlNs bei 0,72%. Es kann vielleicht als Trend gedeutet werden, dass der Betrag der Verzerrung der AlN-Halbperioden aufgrund einer erhöhten Korngrenzenanzahl etwas geringer ausfällt.

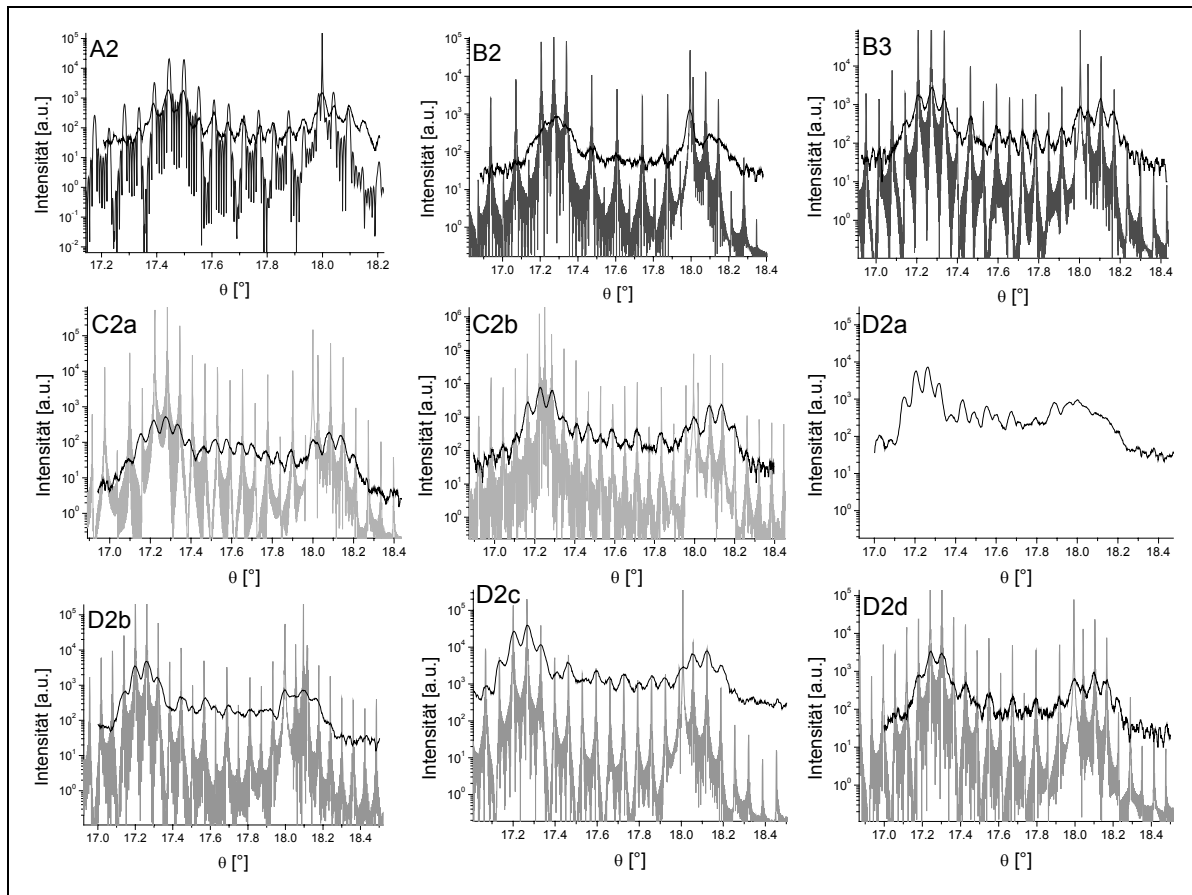


Abbildung 6.10. Beste kinematische XRD Simulationen für (002) $\theta/2\theta$ -Scans aller DBRs.

Der im vorigen Abschnitt beschriebene unterschiedliche Wachstumsmodus (2D AlGa_N, 3D AlN) unterstützt die Vermutung, die AlN-Halbperiode könnte etwas relaxierter sein als die AlGa_N-Halbperiode.

6.1.3 Kritische Schichtdicken

Die an allen Spiegeln beobachtete teilweise Relaxation ist erwartet, weil die Halbperiodenlängen oberhalb der kritischen Schichtdicken von Al_xGa_{1-x}N bzw. AlN liegen. Das kann durch eine Verzerrungsenergieanalyse gezeigt werden. Unterhalb der kritischen Schichtdicke h_c bleibt der Epi-Film isomorph auf dem Substrat, das heißt der Film nimmt die lateralen Gitterkonstanten des Substrats an. Oberhalb der kritischen Schichtdicke beginnt die Gitterrelaxation durch die Bildung von Gitterfehlstellen (*dislocations*). Dabei kommt es nicht zu einer allmählich fortschreitenden Änderung der Gitterkonstanten, sondern der epitaktische Film relaxiert als Ganzes durch die angesammelte Fehlanpassungsspannung, die von der Filmdicke bestimmt wird. TDs entstehen immer an Grenzflächen zweier Schichten, da hier die Bildung energetisch deutlich günstiger ist, als im Volumen eines einheitlichen

Kristallzusammenhangs [130]. Wird also die kritische Schichtdicke h_c durch den Film überschritten, kann die Spannungsenergie nicht mehr allein durch elastische Verformung des Kristallgitters des Films aufgenommen werden, und die Filmspannung wird zusätzlich durch die Bildung von Gitterfehlern an der Grenzfläche zwischen Film und fehlerlos angenommenem Substrat abgebaut. Für eine Analyse ist es wichtig die Art der entstehenden Versetzungen zu kennen. Aus den Kontrastverhältnissen der TEM-Messungen ist klar, dass die überwiegende Mehrzahl der Versetzungen im Volumen der Schichten einen Burger-Vektor der Familie $\vec{b} = 1/3(11\bar{2}0)$ haben muss. Aus den energetischen Überlegungen aus Kapitel 2.3 folgt, dass es sich um a -Stufenversetzungen handelt. In der Grenzfläche konnten keine Versetzungen direkt beobachtet werden. Nach Ref. [56] sollte es sich in der Basalebene aber um sogenannte 60° Versetzungen handeln^c, die bei der Umlenkung der Versetzungslinie aus den $(11\bar{0}0)$ Prismenebenen in die (0001) Grenzflächenebene den Burger-Vektor beibehalten. Dies folgt auch aus Gründen der Energieerhaltung sofern keine direkte Wechselwirkung zwischen mehreren Versetzungen auftritt^d [128]. Als die hauptsächlich in der Grenzfläche vorkommende Versetzung wird demnach eine 60° Versetzung mit Burger-Vektor $\vec{b} = 1/3(11\bar{2}0)$ angenommen.

Für den Fall eines epitaktischen Films auf einem perfekten Substrat haben Fischer et al. [129] ein Modell für die Relaxation des Films basierend auf einer „Bildladungsmethode“ (eigentlich „Bildversetzungsmethode“) entwickelt. Dabei werden die Spannungsfelder gleichartiger Versetzungslinien und die durch die Gitterfehlpassung entstehende Spannung berücksichtigt. Im Falle lediglich *einer* Versetzungslinie in der Grenzfläche wird die kritische Schichtdicke gerade dann erreicht, wenn die Summe aus Verzerrung der Epi-Schicht und Bildversetzungsspannungsfeldkräften auf die einzelne Versetzung inklusive Eigenstressanteilen verschwindet. Für eine 60° Versetzung in der Grenzfläche gilt [129]:

$$0 = \frac{a_0(x) - a_s}{a_s} - \frac{b \cos(\alpha)}{2h_c} \left[1 + \left(\frac{1 - (\nu/4)}{4\pi(1 + \nu) \cos^2 \alpha} \right) \ln \frac{h_c}{b} \right] \quad (6.1)$$

Wobei $a_0(x)$ der relaxierte, laterale Gitterparameter des AlGaIn-Epi-Filmes und a_s die unbeeinflusst gedachte Gitterkonstante des AlN-Substrats ist. Mit b ist der Betrag des Burger-Vektors der meistvorkommenden TD gemeint. Der Winkel $\alpha = 30^\circ$ ist jener zwischen dem

^c Der Burger-Vektor und die Versetzungslinie schließen einen Winkel von 60° ein. Im vorliegenden Fall liegen Burger-Vektor und Versetzungslinie zusätzlich in der Basalebene des Kristalls.

^d „Direkt“ soll heißen, es tritt keine Auslöschung oder Verdopplung auf. Bis auf den Einfluß der Grenzfläche soll sich die Versetzung unbeeinflusst fortpflanzen. Im realen Kristall wirken natürlich auch Spannungsfelder der einzelnen Versetzungen untereinander.

Burger-Vektor des dominierenden Gitterfehlers (60° Versetzung, $\vec{b} = 1/3(11\bar{2}0)$) und der in der Grenzfläche liegenden Senkrechten an die Versetzungslinie (\vec{b} wird auf den Abstand zweier paralleler Versetzungen projiziert und gibt so ein Maß der zwischen den Versetzungen wirkenden Kraft). Die numerisch zu bestimmende kritische Schichtdicke ist h_c und ν ist die Poisson-Zahl nach Gl.(4.15). Die Lösung von Gl.(6.1) ist in Abbildung 6.11 für den idealen Fall von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ auf einem perfekten AlN-Substrat aufgetragen. Für den für die meisten Spiegel interessierenden Bereich von $0,05 < x < 0,08$ ergibt sich aus dem Modell lediglich eine kritische Schichtdicke von ca. 7 nm.

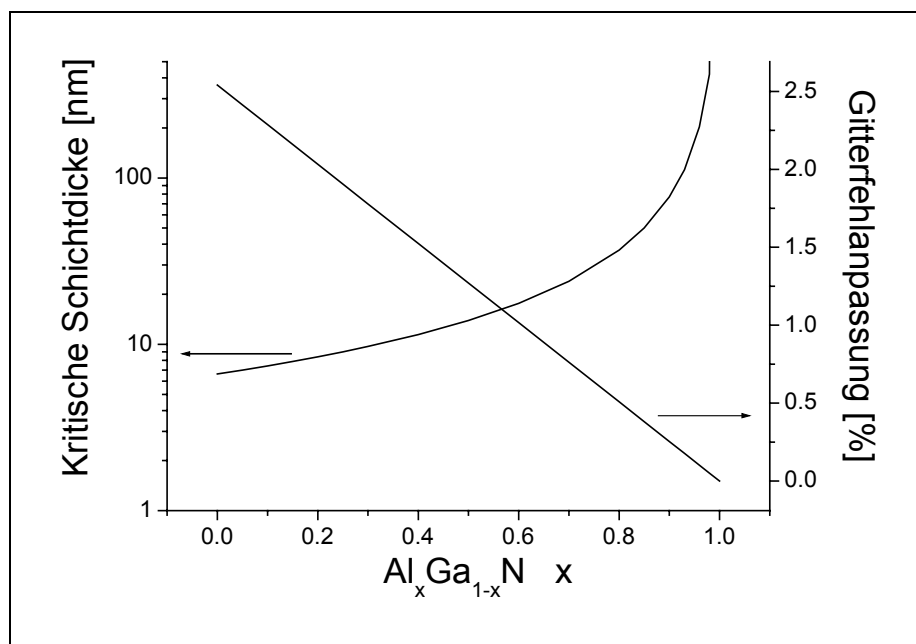


Abbildung 6.11. Kritische Schichtdicke nach dem Modell von Fischer et al.[129]. Die Berechnung erfolgte für $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ relativ zu einem AlN-Substrat.

Für den Fall der vorliegenden Proben müssen verschiedene „Substrate“ berücksichtigt werden. Zunächst kann die kritische Schichtdicke der für alle DBRs nahezu gleich dicken AlN-Puffer auf dem Saphir-Substrat berechnet werden. Weiterhin geben die für die DBRs gefundenen Gitterkonstanten nach Tabelle 6.3 Anlass zur Bestimmung dreier weiterer kritischer Schichtdicken für jeden Spiegel: (1) die erste AlGaN Halbperiode ist Epi-Film auf dem AlN-Puffer, (2) die erste AlN-Halbperiode ist Epi-Film auf der ersten AlGaN-Halbperiode, und (3) die zweite AlGaN-Halbperiode ist Epi-Film auf der ersten AlN-Halbperiode.

Probe	x [%]	h _c nach Fischer Modell			h _c effektiv		
		1.AlGaN [nm]	L _A (Al _x Ga _{1-x} N) [nm]	L _B (AlN) [nm]	1.AlGaN [nm]	L _A (Al _x Ga _{1-x} N) [nm]	L _B (AlN) [nm]
A2	37.0	10.45	15.00	25.29	20.36	28.44	21.28
B2	5.6	6.90	9.99	10.14	8.22	11.53	10.99
B3	5.6	7.14	11.81	10.35	8.65	13.73	18.59
C2b	6.3	7.00	12.28	12.30	12.29	20.57	23.86
D2b	7.3	7.20	11.72	15.11	16.32	25.50	24.89
D2c	7.3	7.53	11.99	13.92	15.48	23.72	20.77
D2d	7.3	7.10	13.54	11.24	11.47	20.76	21.49

Tabelle 6.4. Nach dem Fischer-Modell, Gl.(6.1), und empirisch mit der Relaxationsgleichung Gl.(6.5) angepasst berechnete kritische Schichtdicken für die erste AlGaN-Schicht auf dem AlN-Puffer und die durchschnittlichen kritischen Schichtdicken der Halbperioden A und B der DBRs.

Unter der Annahme, dass das Übergitter als Ganzes relaxiert [130], können die letzten beiden kritischen Schichtdicken als bestimmend für das gesamte Übergitter angenommen werden, zumal die Halbperiodengitterkonstanten auch nur über die ganze Probe gemittelt bekannt sind. Der Vergleich der Tabelle 6.2 mit Tabelle 6.4 zeigt, dass alle Einzelschichtdicken der DBR-Strukturen oberhalb der jeweils kritischen Schichtdicke nach Fischer liegen. Sie sind aber auch nicht vollständig relaxiert, was die folgende Betrachtung offenbart.

Wie viele Versetzungen entstehen, hängt von der Dicke h des aufgebrachtten Films ab. Die Relaxation kann mit einem Energieansatz quantitativ betrachtet werden: Die im Film gespeicherte Energie setzt sich in erster Näherung aus der Summe der Verzerrungsenergie und der in den Gitterfehlern gespeicherten Energie zusammen (Kapitel 2.3). Die Verzerrungsenergie ist nach dem Hook'schen Gesetz proportional zur Schichtdicke h und zum Quadrat der Verzerrung ε_0 relativ zur relaxierten Filmgitterkonstanten $a_0(x)$. Die gesamte Gitterfehlerenergie ist abhängig von der Dichte der Gitterfehler, die aufgrund des Stresses entstehen [131]. Nimmt man die Reichweite des Gitterfehlerspannungsfeldes nach Gl.(2.28) als endlich und gleich für alle TDs an, hängt die in Gitterfehlern gespeicherte Energie nur von der Dichte der TDs ab. Die Dichte der TDs ist proportional zur Verzerrung ε_s relativ zum Substrat mit Gitterkonstante a_s . Die gesamte Energie kann dann so geschrieben werden:

$$E_{tot} = c_1 h \varepsilon_0^2 + c_2 \varepsilon_s \quad \text{mit} \quad \varepsilon_0 = \frac{a - a_0(x)}{a_0(x)} \quad \text{und} \quad \varepsilon_s = \frac{a - a_s}{a_s}. \quad (6.2)$$

Hier ist a die gemessene Gitterkonstante des Films und c_1 und c_2 sind Proportionalitätskonstanten. Um das Energieminimum des Films zu finden, wird Gl.(6.2) nach der Messgröße a abgeleitet und das Ergebnis gleich Null gesetzt:

$$\frac{dE_{tot}}{da} = \frac{2c_1 h}{a_0} \left(\frac{a - a_0}{a_0} \right) + \frac{c_2}{a_s} = 0 \Rightarrow a = a_0 - \frac{a_0^2}{h a_s} \frac{c_2}{2c_1} \quad (6.3)$$

Als Randbedingung wird nun verwendet, dass bis zum Erreichen der kritischen Schichtdicke h_c das a des bis dahin isomorphen Films gerade gleich a_s sein muss. Damit wird Gl.(6.3) zu

$$a_s = a_0 - \frac{a_0^2}{h_c a_s} \frac{c_2}{2c_1} \Leftrightarrow \frac{c_2}{2c_1} = \frac{h_c a_s (a_s - a_0)}{a_0^2} \quad (6.4)$$

und die Konstanten können eliminiert werden. Wiederum durch Einsetzen in Gl.(6.3) erhält man die Relaxationsgleichung

$$a = a_0 - \frac{h_c}{h} (a_0 - a_s) \quad \text{für} \quad h > h_c. \quad (6.5)$$

Gl.(6.5) gibt den Erwartungswert für die Gitterkonstante a des Epi-Films auf einem idealen, nicht beeinflussbaren Substrat an, wenn kritische Schichtdicke und tatsächliche Schichtdicke des Films bekannt sind. Mit Gl.(6.5) kann also die Relaxation des epitaktischen Films modelliert werden.

Das Ergebnis unter Verwendung der kritischen Schichtdicke aus dem Fischer Modell zeigt Abbildung 6.12 (durchgezogene Linien). Die linken Kurvenenden markieren die kritischen Schichtdicken. Wird h_c in Gl.(6.5) so angepasst, dass die gemessenen Halbperiodenschichtdicken aus Tabelle 6.2 auf der Relaxationskurve liegen, erhält man effektive kritische Schichtdicken für die Halbperioden der DBRs (Abbildung 6.12, gestrichelte Linien). Diese sind, wie die kritischen Schichtdicken nach dem Fischer-Modell, in Tabelle 6.4 aufgeführt. Nach Abbildung 6.12 verhält sich lediglich der dicke AlN-Puffer für alle DBR-Proben wie vom Fischer-Modell vorausgesagt. Das ist allerdings nicht verwunderlich, da er mit ~ 260 nm Schichtdicke ohnehin nahezu relaxiert ist. Ansonsten sind die effektiven Werte der kritischen Schichtdicke für Spiegel mit mehr als 10,5 Perioden deutlich größer als die vorhergesagten, was einer verminderten Relaxation der Kristallgitter gegenüber der Vorhersage der linearen Elastizitätstheorie entspricht. Dieses Verhalten kann mit der Kombination zweier Effekte erklärt werden: Erstens ist die Dichte der Versetzungen im AlN-Puffer in der Größenordnung 10^{10} - 10^{11} cm⁻² so groß, dass schon im „Substrat“ vorhandene Versetzungen berücksichtigt werden müssten: Um den auf den Puffer aufsetzenden AlGaIn-Film zu entspannen, bedarf es zunächst überhaupt keiner Bildung neuer TDs.

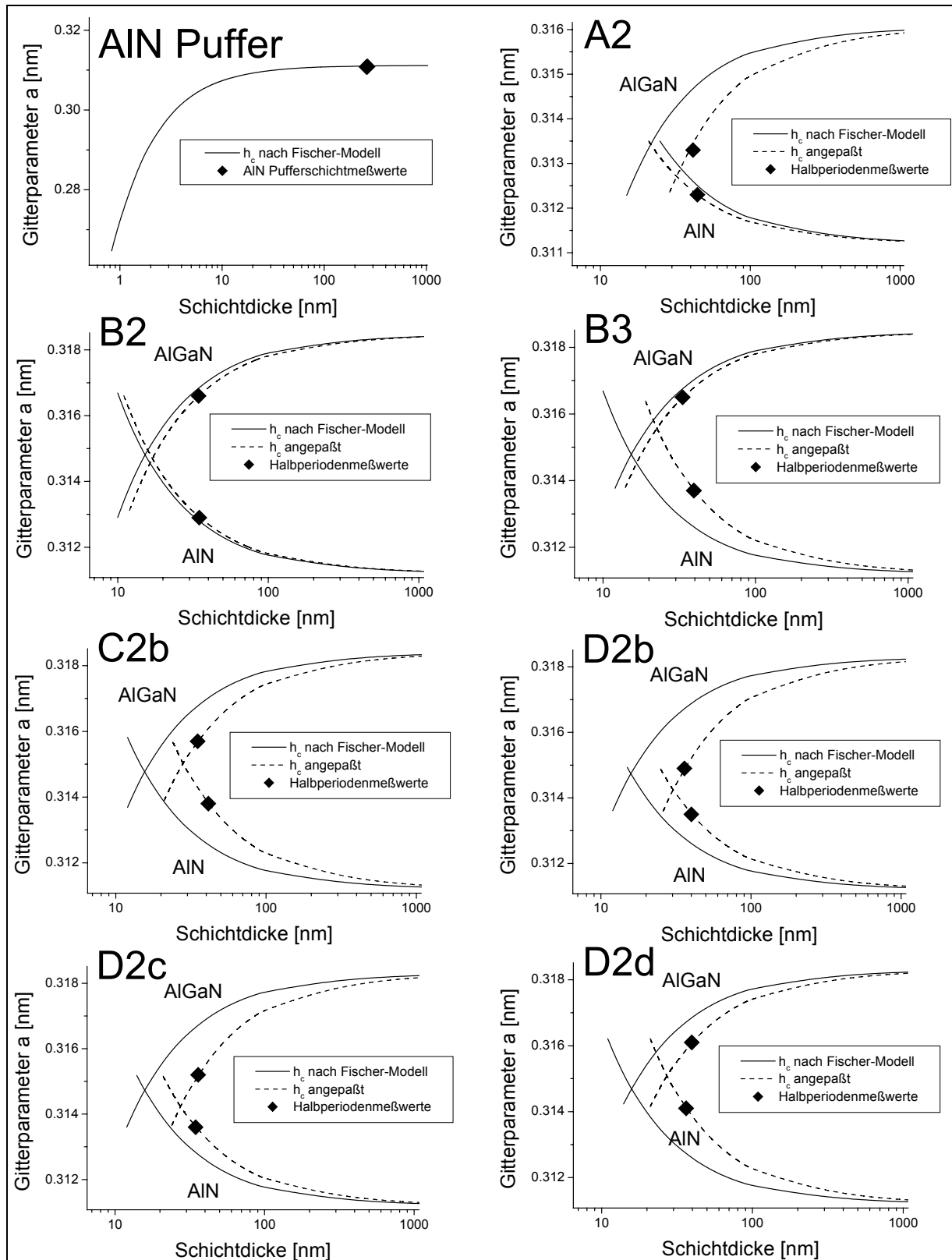


Abbildung 6.12. Auftragung der Relaxation der Halbperioden der DBRs nach Gl.(6.5). Die linken Endpunkte der Kurven geben die kritische Schichtdicke mit zugehöriger, gemessener Gitterkonstante des jeweiligen „Substrats“, also der jeweils anderen Halbperiode. Die angepassten Kurven sind unter Variation von h_c in die gemessenen Werte gelegt.

Im Gegenteil, das Überwachsen des AlN-Puffers reduziert sogar die Anzahl der Versetzungen um eine Größenordnung (Abbildung 6.1). Wenn zunächst keine Gitterfehler entstehen müssen, wird die kritische Schichtdicke größer, weil der Beginn der „Neubildung“ von TDs „tiefer“ in die wachsende Schicht verschoben wird. Der von der Schichtdicke abhängige Spannungsaufbau erhält einen *offset*.

Der zweite Grund ist ein *pinning*-Effekt, der ebenfalls mit der großen Anzahl der TDs zu tun hat. Die lineare Elastizitätstheorie setzt voraus, dass sich entstehende Gitterdefekte frei auf ihrer jeweiligen Existenzebene (*glide-plane*) durch den Kristall bewegen können. Nun gibt es aber durch das mit $1/r$ abfallende Spannungsfeld der TDs und deren Burger-Vektoren Wechselwirkungen zwischen verschiedenen Versetzungslinien [128]. Bei der hohen TD-Dichte von $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ sind die Wechselwirkungen entsprechend stark. Dabei kommt es zur gegenseitigen Blockierung. Eine kinetische Barriere verhindert den Spannungsabbau, und die Relaxation muss unvollständig bleiben. Der epitaktische AlGaIn-Film auf AlN wird also eine kleinere Gitterkonstante annehmen als vorhergesagt, und die kritische Schichtdicke muss größer werden, da die Relaxation aufgrund der „TD-Bremmung“ langsamer voranschreitet.

DBR A2 zeigt eine geringere effektive kritische Schichtdicke für die AlN Halbperiode als mit dem Fischer-Modell vorhergesagt. Die ersten Perioden der Spiegel sollten wesentlich zur Reduktion der TDs beitragen (vgl. Kapitel 5.1). Höhere Perioden sollten allerdings eine homogene Versetzungslinienverteilung mit geringerer Versetzungsanzahl aufweisen. Bei der Reduktion der TDs innerhalb der ersten Perioden werden energetisch ungünstige Konstellationen ausgelöscht, so dass nur die bevorzugten *a*-Stufenversetzungen senkrecht fortlaufen. Erst hier wird das genutzte Fischer-Modell wirklich anwendbar. Verschiedenartige Versetzungen mit unterschiedlichen Burger-Vektoren und Orientierungen liefern ein kompliziertes Spannungsfeldgeflecht, das vom Modell nicht beschrieben wird. Die Vorhersage der kritischen Schichtdicke und der Relaxation bei einer TD-Dichte um 10^{11} cm^{-2} mit unterschiedlichsten Burger-Vektoren, wie noch in der ersten Grenzschicht vorhanden, scheint nicht möglich.

Das angesetzte Fischer-Modell erlaubt nur eingeschränkt eine Vorhersage der kritischen Schichtdicken der DBR Einzelschichten. Die Abschätzung zeigt aber im Zusammenhang mit dem energetischen Ansatz der Relaxationsgleichung Gl.(6.5), dass die Schichten, wie durch die XRD-Messung bestätigt, weder isomorph wachsen, noch vollständig relaxiert sind. Die bestimmten effektiven kritischen Schichtdicken können beim Design von MQWs verwendet werden. Die nachgewiesene teilweise Relaxierung der Halbperioden kann beim Design einer kompletten Laser-Struktur berücksichtigt werden.

6.1.4 DBR-Reflexionsspektrensimulation

Es lässt sich kein einfacher Zusammenhang zwischen Verspannungsgrad eines Spiegels, sei es für den Durchschnittsgitterparameter c_{avg} oder für die Einzelwerte der Halbperioden c_{AlGaN} und c_{AlN} , und der Reflektivität feststellen. Das ist auch nicht verwunderlich, da das reflektierte Licht nicht die Kristallverspannung „sieht“, sondern den mittleren Brechungsindex einer Halbperiode[°]. Das Licht wird von sekundären Effekten der Kristallrelaxation, wie TDs, Korngrenzen (Absorption) oder Rissen im Kristallgitter (Streuung) beeinflusst.

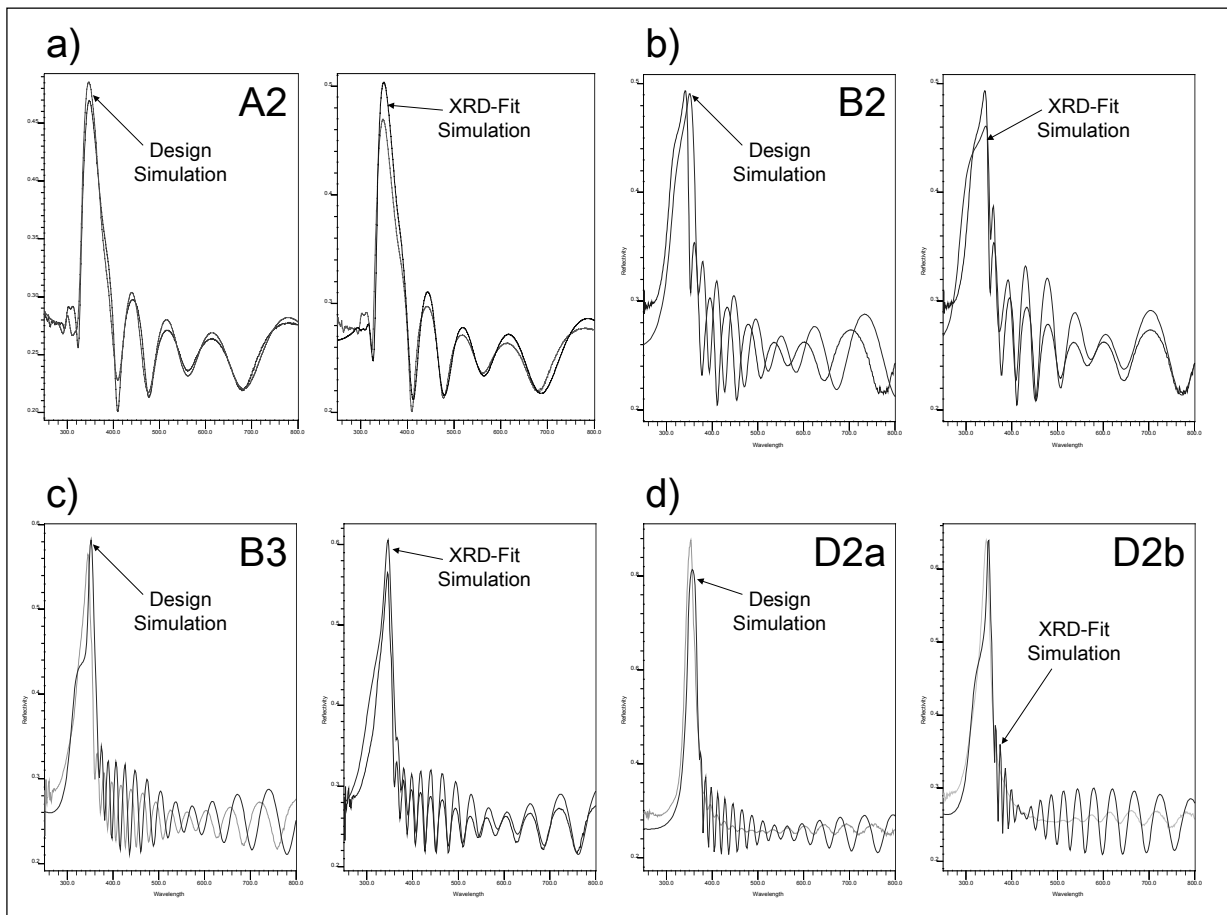


Abbildung 6.13. Optische Reflexionskurven der DBRs unter 70° Einfallswinkel. Gezeigt sind jeweils die SE-Designkurven und mit XRD-Schichtdickenangaben gemachten Fits an die mit SE gemessenen Daten. Die mit der Software Spectraray berechneten MSE-Werte nach Gl.(4.56) für den gezeigten Spektralbereich von 250-800 nm für die Fourier-Koeffizienten a_l und b_l sind a) 0,0315 (Design) und 0,0129 (XRD-Fit), b) 0,1053 und 0,0610, c) 0,0913 und 0,0491, d) 0,0718 und 0,0577.

[°] In den Brechungsindex geht zwar das durch veränderte Verspannung veränderte innere Piezofeld ein. Andere Einflüsse wie chemische Zusammensetzung und Periodizität des Spiegels haben jedoch einen deutlich größeren Einfluß.

Abbildung 6.13 zeigt eine erste Kontrolle der Reflektivität der gewachsenen Spiegel unter dem SE-Einfallswinkel von 70° . Sehr gute Übereinstimmung zwischen Design und Messkurve ergibt sich für den 5,5-Perioden-Spiegel A2. Mit Hilfe der aus dem XRD-Fit gewonnenen wahren Halbperiodendicken aus Tabelle 6.2 lässt sich der Reflexionskurven-Fit verbessern. Deutlich wird dies für alle DBRs mit mehr als 5,5 Perioden: die offenbaren Schichtdickenoszillationen stimmen mit den per XRD gefundenen Werten überein, während die Design-Kurven Abweichungen zeigen. Das gleiche gilt für die absolute Position der Resonanzwellenlänge. Quantitativ lässt sich der bessere Fit in deutlich verringerten MSE-Werten der jeweiligen berechneten Kurven fassen.

Der kleinere Spektralausschnitt in Abbildung 6.14 zeigt die relativen Positionen der Reflexionsmaxima deutlicher. Die unter 3° Lichteinfall per optischer Reflektometrie gemessenen Kurven weisen größere Unterschiede auf, als die unter 70° per SE gemessenen. Bei den DBRs A2 und C2 konnte das Design umgesetzt werden: Die gemessenen Reflektivitäten unter 70° und 3° Einfallswinkel stimmen sehr gut mit den vor dem Wachstum berechneten Kurven überein. Bei den übrigen Spiegeln wurde die Design-Resonanzwellenlänge durch die hergestellte Probe unterschritten. Hier ist entweder der Brechungsindex einer Periode im Mittel kleiner als es die Referenzprobe vorgab, oder die Wachstumsraten waren geringer. Die XRD-Messung zeigt in der Tat geringere Halbperiodenlängen als geplant für Proben B2, B3 und D2, während für DBRs A2 und C2b nahezu die Designwerte erreicht werden (Tabelle 6.2).

Auffällig ist, dass für beide B-Spiegel die Design-Simulationskurven geringere Reflektivität aufweisen als die Messung. Die von der Referenzprobe B1 dieser beiden Spiegel abgeleiteten Dispersionsparameter für die Einzelschichten der Spiegel sind offenbar nicht zutreffend für die im Anschluss hergestellten Spiegelhalbperioden. Abbildung 6.15 zeigt die per SE-Fit festgestellten Dispersionsdaten der jeweiligen DBR-Referenzschichten. Der wellenlängenabhängige Verlauf des Extinktionskoeffizienten k der Referenzprobe B1 erklärt das in Abbildung 6.14b+c gezeigte Verhalten der Simulation. Die Absorption der AlGaN-Schicht der Referenzprobe B1 setzt bereits bei ~ 375 nm ein. Damit absorbiert die AlGaN-Halbperiode des Spiegels im Bereich der gewünschten Reflektion. Die Design-Simulation kann somit keine hohen Reflektivitäten liefern. Im anschließenden Spiegelwachstum wurde eine Dispersionsrelation der AlGaN-Halbperioden erreicht, die nahe an den Parametern der C1-AlGaN-Schicht liegt.

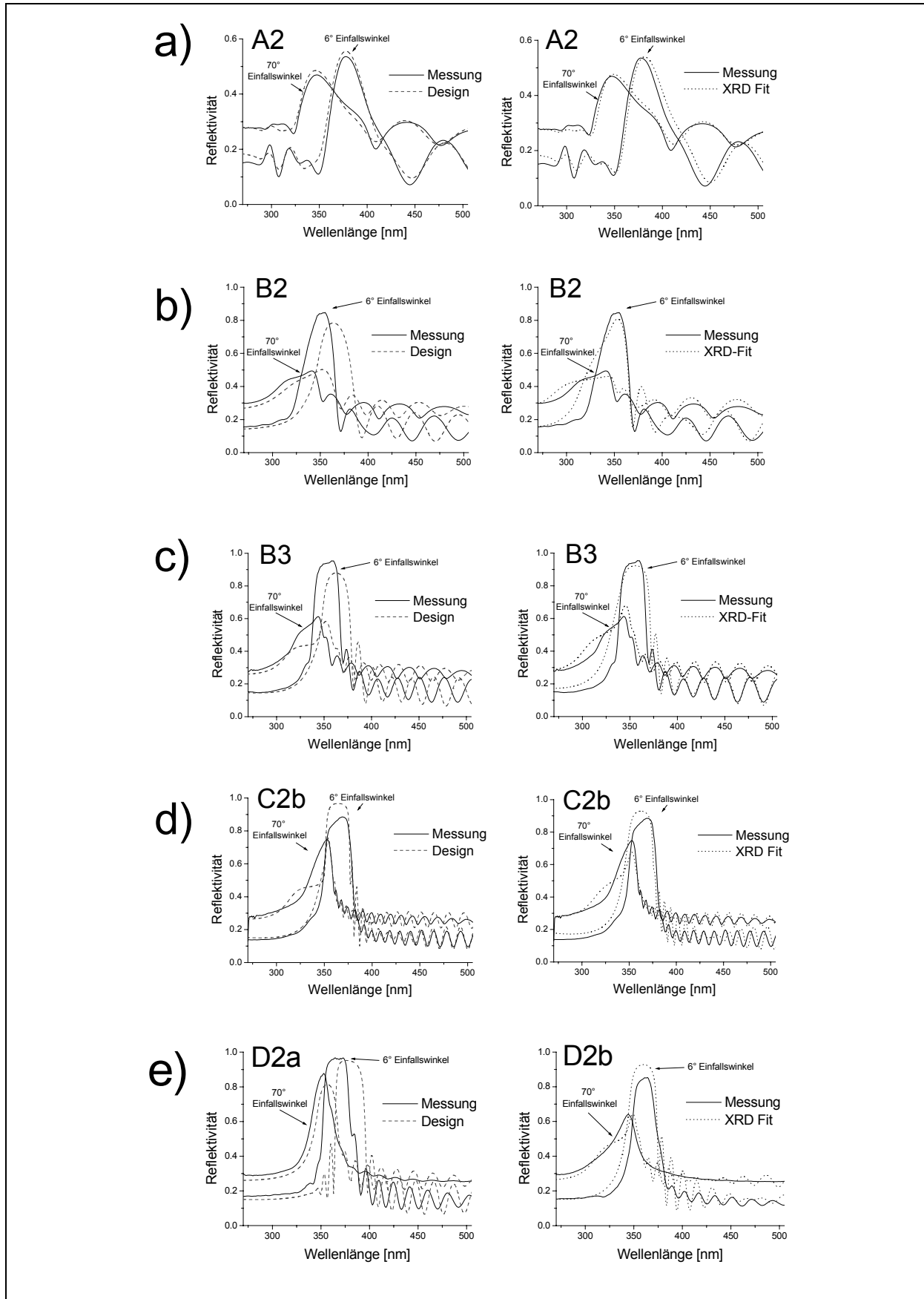


Abbildung 6.14. Vergleich der unter 70° Einfallswinkel gemessenen Reflektivitäten (SE) mit den Daten der optischen Reflexionsmessung unter 3°. a) SE-Design und XRD Schichtdicken SE-Fit für DBR A2, b) DBR B2, c) DBR B3, d) DBR C2 und DBR D2.

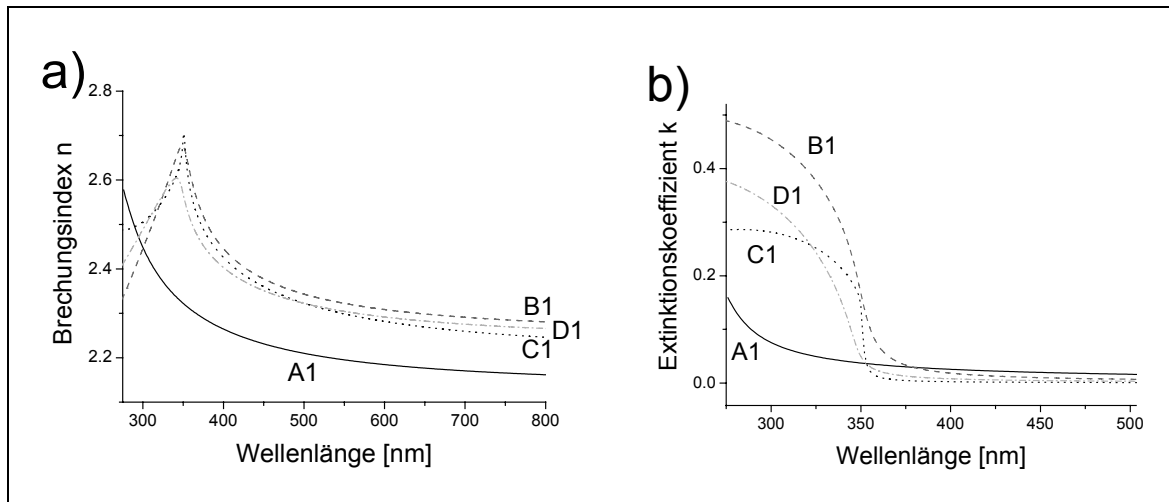


Abbildung 6.15. Aus dem SE-Fit bestimmte a) Brechungsindizes und b) Extinktionskoeffizienten für die AlGaN-Schichten der DBR-Referenzproben A1, B1, C1 und D1.

Damit werden sehr hohe Reflektivitäten möglich, da Absorption erst bei ~ 350 nm einsetzt und insgesamt niedriger ausfällt, obwohl die Bandkante nahezu an gleicher spektraler Stelle zu finden ist. Solch ein Dispersionsverlauf spricht für eine hohe Materialqualität, da das optische Verhalten an der Bandkante nicht durch optisch aktive Gitterfehler oder Kompositionsunterschiede im Kristall „aufgeweicht“ wird. Die nachträgliche Korrektur der Schichtdicken durch die XRD-Ergebnisse liefert für alle Proben eine sehr gute Nachbildung des gemessenen Reflexionssignals. Die prinzipielle Eignung der Design-Methode mit Hilfe des Tanguy-Fits ist nachgewiesen.

6.2 Aktives Medium – MQW

Das Herzstück einer Laserstruktur ist ein effektiver optischer Emitter. Der erste UV-VCSEL bediente sich einer $10 \mu\text{m}$ dicken GaN-Schicht [16]. Handelsübliche GaAs- und andere Laserstrukturen (auch GaN-Kantenemitter) benutzen QWs oder MQWs, da die innere Quanteneffizienz gegenüber dem *bulk*-Material deutlich gesteigert ist. Für den hier zu wachsenden UV-VCSEL [13] wurde eine Voruntersuchung an einer Reihe von MQW-Teststrukturen gemacht, um die Eignung für den Einsatz im UV-VCSEL festzustellen (Tabelle 6.5). Die Dicke der GaN-*wells* betrug 3-4 nm, diejenige der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -*barrier* etwa 15 nm. Um eine große Emissionsintensität zu erreichen, wurden zunächst keine einfachen QWs hergestellt, sondern MQWs mit 5, 10 und 20 QWs. Alle aktiven Schichten wurden auf einem ca. 230 nm dicken AlN-Puffer auf Saphir abgeschieden. Die Wachstumstemperatur war identisch mit jener der DBRs (720°C), um einen integrierten Prozessablauf für einen VCSEL zu ermöglichen. Stickstofffluss ($0,7 \text{ sccm}$) und OED-Wert ($2,6 \text{ V}$) wurden ebenso wie der Ga-

Probe	Al Fluß		Perioden	AFM rms nm		PL Peak [eV]	FWHM [nm]	Intens. [a.u.]
	[10 ⁻⁷ Torr]	x		1x1µm	3x3µm			
MQW1	1,8	~0,4	10.5	4.1	11.5	3.240	37.7	90.0
MQW2	0,6	~0,05	10.5	1.4	1.7	3.498	15.2	5.0
MQW3	1,8	~0,4	10.5	1.2	1.8	3.322	35.8	322.0
MQW4	5,4	1	10.5	1.0	1.7	2.914	113.2	33.8
MQW5	1,8	~0,4	20.5	1.7	2.3	3.238	40.1	929.2
MQW6	1,8	~0,4	5.5	0.9	2.0	3.242	49.3	46.9

Tabelle 6.5. Übersicht über die Proben der MQW-Vergleichsstudie. Der nach dem Zellenfluss erwartete Kompositionswert x bezieht sich auf die Al_xGa_{1-x}N-barrier. Probe MQW5 ist in den GaN-wells Si-dotiert. PL-Daten aus [13].

Fluss ($2,1 \cdot 10^{-6}$ Torr) konstant gehalten. Die Si-Dotierung der Probe MQW5 wurde mit einer Zellentemperatur von 1050°C vorgenommen und entspricht damit nach Kapitel 2.2.2 einer Ladungsträgerdichte von etwa $n=10^{18} \text{ cm}^{-3}$.

Die prozessbegleitend stattfindenden PL-Messungen zeigen die erwartete Rotverschiebung aufgrund der piezoelektrischen Bandkantenverbiegung der Quantentöpfe für alle Proben mit $x \geq 0,4$ (Abbildung 6.16)[13]. Für Probe MQW2 sind mit $x \approx 0,05$ die Al_xGa_{1-x}N-barrier so flach, dass die PL-Intensität mehrheitlich vom Al_xGa_{1-x}N stammt; daher die Blauverschiebung gegenüber einem reinen GaN-Peak.

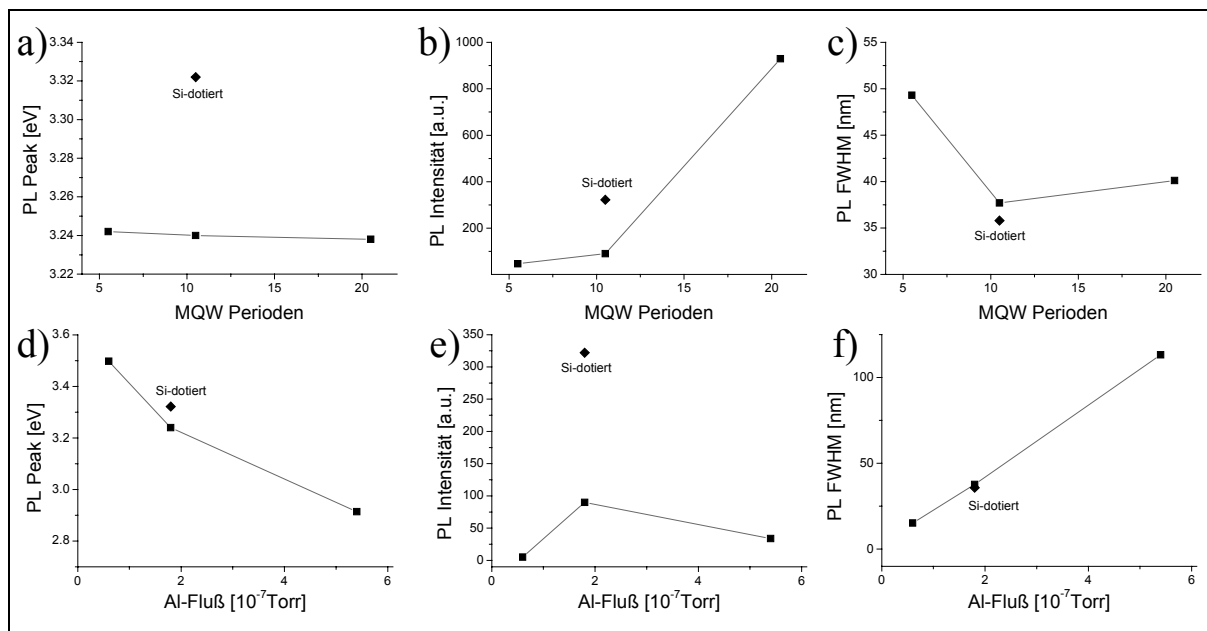


Abbildung 6.16. Veranschaulichung der PL-Daten der hergestellten MQW-Proben aus Tabelle 6.5.

Die Intensität der PL-Emission steigt mit zunehmender Anzahl der im QW befindlichen Ladungsträger und daher mit der Zahl der QWs und mit Si-Dotierung. Eine tiefergehende Diskussion der PL-Ergebnisse und eine komplexe Betrachtung der MQWs im Hinblick auf das Design der UV-VCSEL-Struktur erfolgt andernorts [13]. Hier soll genügen, dass für die ersten zu wachsenden VCSEL-Strukturen für das aktive Medium eine möglichst große Emissivität gewählt wurde. Gleichzeitig sollten Effekte durch eine übermäßige Anzahl von Ladungsträgern beim späteren Elektronenstrahlpumpen vermieden werden. Die Wahl fiel also auf einen nicht Si-dotierten 20,5-Perioden-MQW mit mittlerem AlN-Gehalt in *barrier*. Die große spektrale Halbwertsbreite der PL-Emission von 40 nm gibt zudem ausreichenden Spielraum für das darauf abzustimmende DBR-Design. Das Reflexionsmaximum des Spiegels kann so auch bei einer leichten Verschiebung der Resonanzwellenlänge des schließlich gewachsenen DBRs gegenüber Design-Werten ausgenutzt werden.

Der MQW muss nicht nur seinen Zweck als ausreichender Lichtemitter bei der gewünschten Wellenlänge erfüllen. Er muss für das Wachstum des MQWs auf einem unteren VCSEL-DBR auch gewährleisten, dass keine Oberflächenrauigkeiten eingeführt werden, die die Funktion des oben aufzuwachsenden zweiten DBRs gefährden. AFM-Aufnahmen beweisen die Ebenheit der hergestellten Strukturen (Abbildung 6.17).

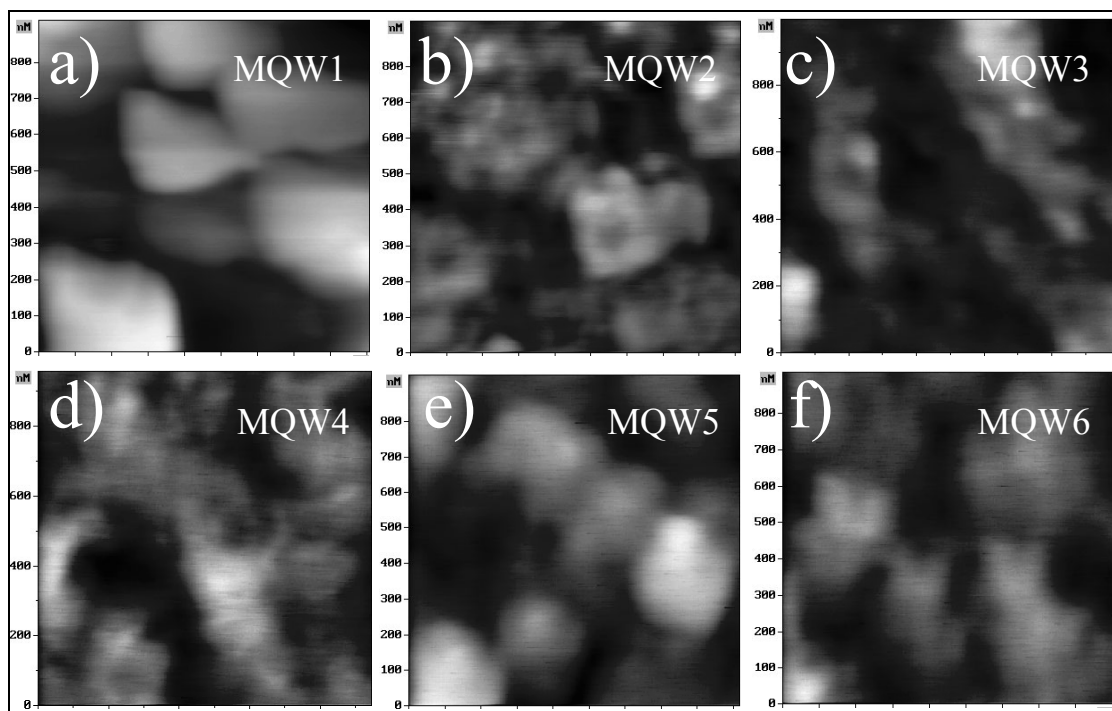


Abbildung 6.17. $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ AFM-Bilder der hergestellten MQW-Proben. Die Farbskalen sind a) MQW1: 22 nm, b) MQW2: 10 nm, c) MQW4: 7 nm, d) MQW5: 6 nm, e) MQW5: 9 nm, f) MQW6: 6 nm.

Mit Oberflächenrauigkeiten um 2 nm rms auf $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ für alle MQW-Kandidaten besteht keine Gefahr der Beeinträchtigung der Grenzflächenmorphologie für das weitere Wachstum. Nur die Struktur mit niedrigem AlN-Gehalt fällt aus dem Rahmen (11,5 nm rms), weil die für alle Proben gleich gewählte Wachstumstemperatur für $x \approx 0,05$ zu niedrig ist.

Im Gegensatz zu den in Kapitel 5.1 besprochenen HT-AlN-IL zeigen TEM-Aufnahmen keinen nutzbringenden TD-Reduzierungseffekt für die „GaN-IL“, also die *wells* des MQW. Auch die AlGaN-*barrier* zeigen sich als nicht geeignet, die TD-Anzahl zu vermindern. Für die TEM-vermessenen Strukturen MQW2 und MQW3 gilt eine vom Puffer übernommene Versetzungsliniendichte in der Größenordnung $4 \cdot 10^{10} \text{cm}^{-2}$. Diese Zahl darf wegen ähnlicher Probenstruktur (gleicher Al-Fluss wie MQW3) auch für die Proben MQW1, MQW5 und MQW6 als richtungsweisend angenommen werden. MQW4, dessen *barrier* aus reinem AlN bestehen, zeigt eine leicht reduzierte TD-Dichte von $2,8 \cdot 10^{10} \text{cm}^{-2}$. Die PL-Intensität blieb allerdings hinter den anderen zurück. Für die Entscheidung bezüglich des Einbaus in die VCSEL-Struktur gab die höhere optische Emissivität den Ausschlag.

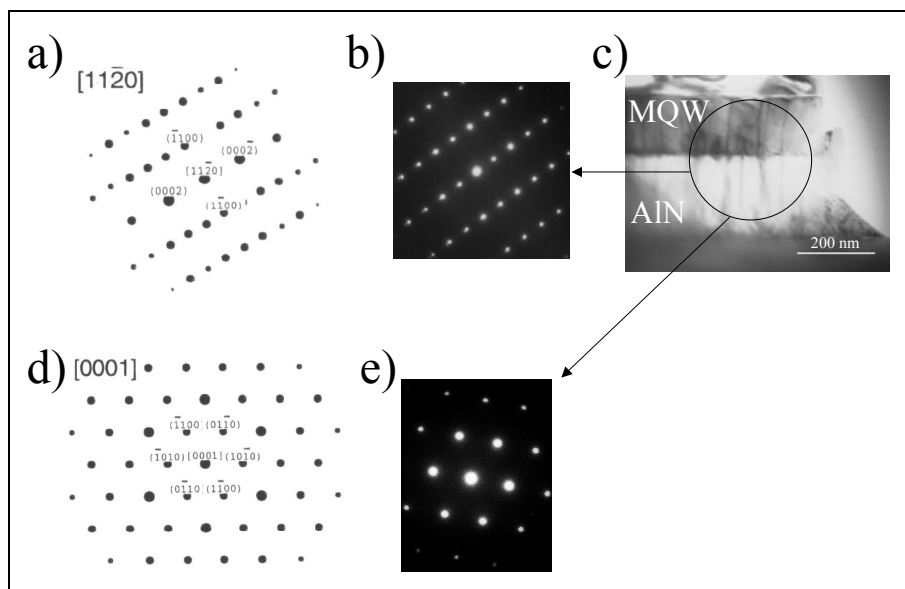


Abbildung 6.18. TEM-Aufnahmen von Probe MQW2. a) ideales SAED Beugungsbild um den [1120]-Reflex [132], b) tatsächliches Beugungsbild aus dem in c) markierten Bereich. d)+e) Gleiches für den [0001]-Reflex.

Abbildung 6.18 bis Abbildung 6.20 zeigen *selected area electron diffraction* (SAED) Bilder der Proben MQW2, MQW3 und MQW4. Zum Vergleich sind theoretische Beugungsbilder einer idealen hexagonalen Struktur angegeben [132]. In allen Fällen ist ein gemischtes Beugungsbild aus AlN-Puffer und MQW-Schichten zu sehen. Die verschiedenen Gitterkonstanten der beiden Schichten (Puffer+MQW) und die Verzerrung der Schichten

führen dazu, dass die in der idealen Struktur mit c/a Verhältnis von 1,633 verbotenen Beugungsmaxima im Probenbeugungsbild existieren (vgl. Abbildung 6.18a und b, Azimut $[1\bar{1}20]$). In den anderen SAED-Azimuten $[0001]$ und $[1\bar{1}00]$ tritt der Effekt nicht auf, da auch theoretisch keine verbotenen Reflexe auftreten.

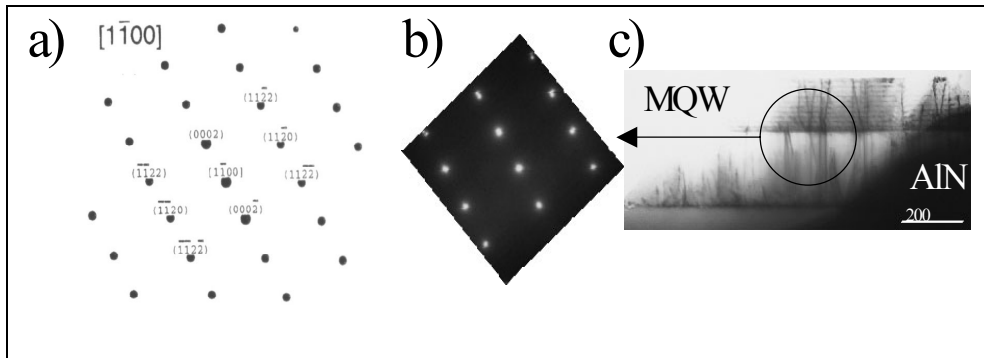


Abbildung 6.19. TEM-Aufnahmen von Probe MQW3. a) ideales SAED Beugungsbild um den $[1\bar{1}00]$ -Reflex $[132]$, b) tatsächliches Beugungsbild aus dem in c) markierten Bereichs.

Am linken unteren Bildrand von Abbildung 6.18b lässt sich eine Beugungsmaximaverdoppelung erkennen. Wegen des gemischten reziproken Gittervektors entlang der Verdopplungsrichtung kann keine eindeutige Aussage über den Verzerrungsgrad des Films gemacht werden. Anders bei Abbildung 6.19b: Die Differenzvektoren zwischen den Punkten des $[1\bar{1}00]$ -Reflex-SAED-Bildes sind der reziproke c -Achsenvektor (Diagonale von links oben nach rechts unten) und der reziproke a -Achsenvektor (Diagonale von links unten nach rechts oben). Die linken oberen drei Punkte sind doppelt zu erkennen, wobei (deutlich beim äußerst linken Reflex) eine gleichmäßige Vergrößerung des Abstandes in beide Gitterrichtungen feststellbar ist. Entlang der Symmetrieachse (reziproke c -Achse) kann die Verdopplung nur in einer Richtung auftreten (entlang der Achse nämlich: mittlerer der drei Punkte). Der MQW-Film ist demnach gegenüber dem AlN-Puffer mindestens teilweise relaxiert.

Das ist bei Probe MQW4 anders (Abbildung 6.20b). Hier ist keine Dopplung zu erkennen, weil keine Relaxation des MQW-Films vorliegt. Die *barrier* bestehen wie der Puffer aus AlN, und die GaN-*wells* geben nicht genug Signal, um eine Abweichung in c -Richtung erkennen zu lassen. Ob eine Abweichung in a -Richtung zu erwarten ist, hängt von der kritischen Schichtdicke des GaN auf AlN ab. Nach dem Fischer-Modell sollte $h_c < 1$ nm sein. Leider liegen keine XRD-Daten vor, so dass ein Fit nach dem Vorbild des vorigen Abschnitts nicht möglich ist. Für die MQW-Proben mit Al-Fluss $1,8 \cdot 10^{-7}$ Torr liegt aber selbst das Fischer-

Modell, was nach den Überlegungen des vorigen Abschnitts als untere Grenze einer kritischen Schichtdickenabschätzung verwendet werden darf, mit $h_c=8,3$ nm oberhalb der tatsächlichen Schichtdicke der GaN-wells. Alle Proben außer MQW4 sollten demnach isomorph gewachsene GaN-wells beinhalten.

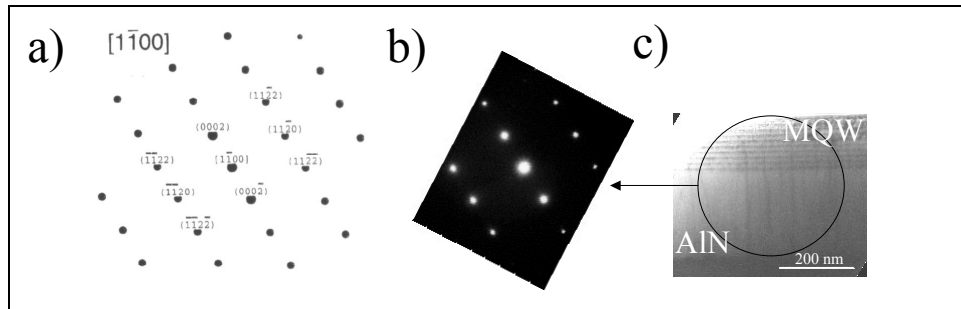


Abbildung 6.20. TEM-Aufnahmen von Probe MQW4. a) ideales SAED Beugungsbild um den $[1\bar{1}00]$ -Reflex $[132]$, b) tatsächliches Beugungsbild aus dem in c) markierten Bereichs.

Zur Herstellung des aktiven Mediums der MQWs wurde das Materialsystem nicht gewechselt. Die MQWs wurden unter den gleichen Wachstumsbedingungen hergestellt wie die DBRs. Damit sind keine neuen lateralen Verspannungen zu erwarten, wenn das aktive Medium dem unteren DBR aufgesetzt wird. Die Oberflächenrauigkeiten der MQW-Proben sind ausgezeichnet und sollten keine Störungen im Emissionswellenlängenbereich (350-400 nm) hervorrufen.

6.3 Doppel-DBR-VCSEL-Wachstum

Die Herausforderung der schließlichen UV-VCSEL-Herstellung liegt vor allem in den langen Wachstumszeiten, die eine große Belastung für die Riber MBE 32 darstellen. Insgesamt wurden vier VCSEL-Proben hergestellt. Als wichtiges Stabilitätskriterium für einen langen Prozess erwies sich die Konstanz der Temperatur im Kühlwasserkreislauf der Addon-Plasmaquelle. Zwei Prozesse mussten wegen Ausfällen der Plasmaquelle nach mehreren Stunden Wachstums abgebrochen werden.

Der zweite sehr wichtige Parameter ist die Oberflächentemperatur der Probe. Die vorhandene Prozessapparatur verfügt über keinen Regelmechanismus, der die Leistung der Manipulatorheizung nachstellen würde, wenn durch wesentlichen Materialauftrag die Wachstumstemperatur an der Oberfläche absinkt. Der resultierende Effekt soll am Beispiel der in 18 Stunden gewachsenen Struktur nach Abbildung 6.21 verdeutlicht werden. Gezeigt ist eine erfolgreich zu Ende gewachsene Doppel-DBR-VCSEL-Struktur. Der untere Spiegel

zeigt sehr gute Periodizität. Der obere Spiegel zeigt aber auch Bereiche schlechter Periodizität, wie in Abbildung 6.21 oben zu erkennen. Man beachte, dass dieses Bild nicht stellvertretend für den gesamten oberen Spiegel steht. Große Teile zeigen ähnlich gute Struktur wie der untere DBR. Die nachlassende Periodizität des oberen DBRs ist insofern besonders kritisch, weil der obere DBR aufgrund der nach unten, durch das Substrat, gewünschten Lichtauskopplung idealerweise eine höhere Reflektivität aufweisen sollte als der untere Spiegel. So erklärt sich auch die größer gewählte Periodenanzahl des oberen Spiegels im Vergleich mit dem unteren.

Die Verschlechterung der Oberflächenmorphologie während des Wachstums kann auf zwei Ursachen zurückgeführt werden. Zum einen führt die um bis zu 20°C absinkende Oberflächentemperatur zu Bedingungen, die noch für das AlGaIn-Wachstum, aber nicht mehr für AlN-Wachstum tolerabel sind. Das im vorigen Abschnitt demonstrierte, ohnehin dreidimensionale Wachstum führt bei Absenkung der Wachstumstemperatur zu einer schlechteren, raueren Oberflächenmorphologie. Das gleiche Argument kann auf die obere *spacer*-Schicht angewendet werden. Sie wird eingeführt, um die optische Länge des Resonators zu justieren. Sie besteht aus AlN, damit auch hier keine Absorption die Laser-Effektivität hemmt.

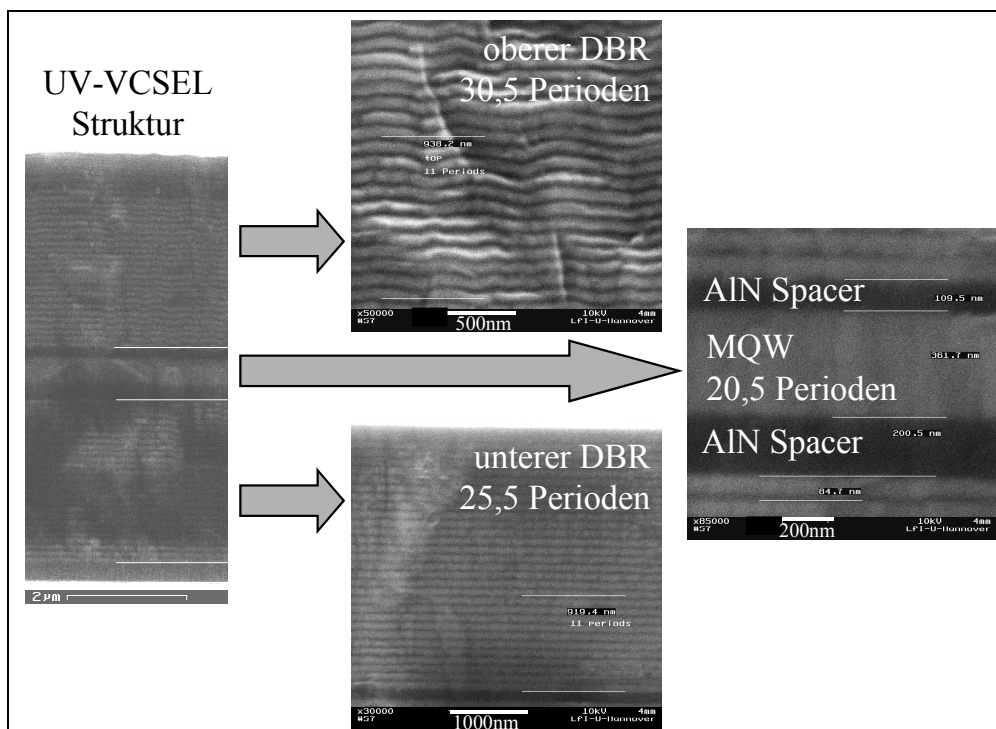


Abbildung 6.21. SEM-Bilder einer Doppel-DBR-VCSEL-Struktur. Rechts vergrößerte Bereiche im unteren DBR (25,5 Perioden), um das aktive Medium (20,5 Perioden MQW und *spacer*-Schichten), und im oberen DBR (30,5 Perioden).

Trotz dieser morphologischen Unzulänglichkeiten sind erfolgreich optische Experimente durchgeführt worden, deren Ergebnisse sowie eine detaillierte Diskussion der Zusammenhänge zwischen optischen und kristallographischen Eigenschaften der vier VCSEL-Proben in Ref. [13] vorgestellt werden.

Für die zukünftige VCSEL-Prozessoptimierung ist festzuhalten, dass eine genauere Prozessparameterkontrolle während des Wachstums unerlässlich ist. Dazu gehört in jedem Falle die regelmäßige Wachstumstemperaturnachregelung, die hier nur sporadisch von Hand erfolgte. Dazu ist zusätzlich zur *ex-situ* Ellipsenmessung eine *in-situ*-Reflektometriemethode wünschenswert, mit Hilfe derer die Kontrolle der Resonanzwellenlänge der Spiegel während des Wachstums möglich würde, und entsprechend während des Prozesses die Shutter-Zeiten nachgeregelt werden könnten, wenn Wachstumsgeschwindigkeiten driften sollten.

Die nach mehreren extrem langen Prozessen anfallenden Verschleißerscheinungen (Knudsen-Zellen leeren sich, Fensterbelegung, Shutter- und Innenraumverunreinigung durch Metalltröpfchen usw.) haben einen noch nicht genügend verstandenen Einfluss auf das Wachstumsverhalten des Kristalls. Das Metall, besonders Ga, neigt zur Oberflächenbenetzung und kriecht daher bei heißer Zelle auch auf die der Kammer zugewandten Seite des geschlossenen Shutters. Sind die Shutter vor den Effusionszellen stark belegt, wird auch bei geschlossenem Shutter Material abgedampft.

Die gewonnenen Erfahrungen lassen wichtige Schlüsse auf das Langzeitwachstumsverhalten der genutzten MBE zu. In Zukunft sollte mit deutlich größeren Substraten gearbeitet werden. Ein erster Schritt wäre die Verwendung handelsüblicher 2-Zoll-Saphirwafer. Der in Kapitel 2.3 angesprochene Vorteil der geringeren Epi-Schichtverspannung auf einem kleineren Substrat wird bei weitem von dem Nachteil ungleichmäßiger Temperaturverhältnisse ausgehebelt. Die drei unterschiedlichen Wachstumsbereiche auf einer Probe lassen keine einheitliche Optimierung der Wachstumsparameter zu, und erschweren so die Findung geeigneter Wachstumsparameter.

Eine *in-situ* Charakterisierung, sei es Pyrometerreflektometrie oder optische Reflektometrie oder eben *in-situ*-SE, sollte für zukünftige lange Wachstumsprozesse installiert werden. So kann die vorhandene Drift der Wachstumsparameter während des Prozesses kontrolliert und (gegen-) gesteuert werden. Zudem wäre nach einer an die hohen Wachstumstemperaturen angepassten Kalibrierungsphase die direkte Kontrolle der DBR-Spiegelreflektivität möglich, was besonders die Abstimmung der Reflektionsspektren der oberen und unteren DBRs

innerhalb einer Doppel-DBR-VCSEL-Struktur vereinfachte. Unter Umständen könnte auch die MQW-Emissionscharakterisierung unter optischer Anregung durch einen entsprechenden Laser bereits *in-situ* erfolgen.

Auch ohne die Umsetzung dieser Vorschläge sind mit der vorhandenen Apparatur und der beschriebenen Arbeitsweise von der Wachstumsseite her hervorragende Ergebnisse erzielt worden. Die Periodizität der Spiegel konnte über die sehr lange Wachstumszeit von 18h in Bereichen der Probe aufrecht erhalten werden. Damit ist eine hervorragende Grundlage für die Experimente zum Elektronenstrahl- und optischen Pumpen an den UV-VCSEL-Strukturen gelegt. Aus der ersten kleinen Serie der VCSEL-Proben ging in der Tat eine UV-VCSEL Struktur hervor, bei der nach Elektronenstrahl- und optischem Pumpen erfolgreich der für Mikroresonatoren spezifische Übergang von verstärkter, spontaner Emission zu stimulierter Emission nachgewiesen werden konnte [13, 133]. Die prinzipielle Eignung der vorgestellten Techniken zur Herstellung funktionsfähiger UV-VCSEL-Strukturen auf Basis von AlN/AlGaIn/GaN-Multiheterostrukturen ist damit gezeigt.

7 Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war das Wachstum einer im Ultravioletten emittierenden GaN/AlGaN/AlN VCSEL-Struktur mittels plasmaunterstützter Molekularstrahlepitaxie. Vorbereitend wurden umfassende Untersuchungen an ebenfalls hergestellten AlGaN/AlN Einzelschichten und DBRs durchgeführt. Bei mindestens einer hergestellten UV-VCSEL-Struktur konnte nach Elektronenstrahl- und optischem Pumpen erfolgreich der für Mikroresonatoren spezifische Übergang von verstärkter, spontaner Emission zu stimulierter Emission nachgewiesen werden [133].

Bevor dieses Ziel jedoch erreicht werden konnte, waren umfangreiche Vorarbeiten und Voruntersuchungen notwendig, was sich in der Aufteilung dieser Arbeit widerspiegelt. Mit der Beschreibung des Wachstums von GaN-Einzelschichten und experimentellen Ergebnissen zur Dotierung mit Si und Mg wurden in Kapitel 2 die Grundlagen der MBE-Nitridprozesstechnologie vorgestellt. Das Kapitel wandte sich auch Kristallgitterfehlern und auftretender Probeninhomogenität zu.

Um vor einem Wachstumsprozess optische Parameter einer Multiheterostruktur (hier DBR und VCSEL) simulieren zu können, bedarf es der Bestimmung dieser Parameter für hergestellte Einzelschichten. Kapitel 3 befasste ich ausführlich mit der spektroskopischen Ellipsometrie und der Anwendung des Tanguy-Modells für die optische Dispersion der epitaktischen Schichten. Die dielektrische Funktion für GaN und AlGaN konnte dabei mit Hilfe von Einzelschichtanalysen im kritischen Bereich der Bandkante erfolgreich modelliert werden.

Zwei neue Methoden der Röntgendiffraktometrie wurden in Kapitel 4 aufgezeigt: Die um die rekursive Auswertung bereicherte x-Bond-Methode und die neu entwickelte quantitativ-qualitative Übergitterspektrenanalyse. Die Kombination beider Methoden ermöglichte die umfassende kristallografische Analyse der DBR Übergitterstrukturen, deren Ergebnisse wiederum in die zuvor erarbeiteten optische Simulationen einfließen konnten.

In Kapitel 5 wurden vorbereitende Untersuchungen an GaN-Schichten mit Hochtemperatur-AlN-Zwischenschichten zum Zwecke der Versetzungslinienreduktion gezeigt. Weiterhin wurden Wachstumsmodi von AlGaN-Einzelschichten im gesamten Kompositionsbereich untersucht. Die Ergebnisse der Einzelschichtuntersuchungen lieferten wichtige Erkenntnisse für die notwendige Wachstumsparameterbestimmung zur Herstellung der Multiheterostrukturen.

In der Herstellung der DBRs und VCSEL (Kapitel 6) schließlich fanden alle bis dahin entwickelten Methoden und Erkenntnisse aus den Voruntersuchungsreihen ihre Anwendung. Die Materialeigenschaften wie Gitterparameter, Halbperiodenlängen, kritische Schichtdicken und optischen Eigenschaften der DBRs wurden untersucht und der Zusammenhang mit dem Design der Multiheterostrukturen hergestellt. Es wurde gezeigt, dass die als aktive Medien vorgesehenen GaN/AlGaIn-MQW-Strukturen sich in dem Wachstumsprozess eines UV-VCSELs integrieren lassen. Am Ende der gesamten Entwicklung steht die funktionstüchtige AlN/AlGaIn/GaN-UV-VCSEL-Struktur.

Einfach gewachsene GaN-Schichten enthalten eine Versetzungsdichte von $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Eine Untersuchung des TD-Verhaltens an Grenzschichten (AlN-GaN-Übergang) zeigte, dass die Anzahl der TDs durch Einführung von dünnen HT-AlN-ILs um mindestens eine Größenordnung gesenkt werden kann. Dies ist auch bei der VCSEL-Herstellung bedeutend, da die DBRs eines VCSELs eine große Anzahl von Grenzflächen beinhalten. Der gleiche TD-Reduzierungseffekt konnte auch für den Übergang vom AlN-Puffer zum AlGaIn/AlN-DBR beobachtet werden.

Verschiedene Wachstumsmodi von AlGaIn-Einzelschichten konnten auf verschiedene Wachstumsparameter zurückgeführt werden. Diese Kenntnis floss unmittelbar in die Herstellung hochreflektierender DBRs ein, welche den prozesstechnisch aufwendigsten Teilschritt bei der VCSEL-Herstellung darstellte. Ein gemischter, 2D- (AlGaIn-Halbperiode) 3D- (AlN-Halbperiode) Wachstumsprozess zeigte sich geeignet, um bis auf den Al-Materialfluss gleiche Wachstumsparameter für die Halbperioden anwenden zu können.

Für das Design der Spiegel ist das bisher nicht verwendete Tanguy-Modell herangezogen worden, um die optischen Parameter des AlGaIn-Halbleiters an der Bandkante korrekt nachbilden zu können. Sonst übliche Cauchy- oder Sellmeier-Modelle sind in diesem Fall für den UV-Spektralbereich nur bedingt aussagekräftig, da die UV-VCSEL-Struktur nahe an der GaN-Bandkante emittieren sollte. Es wurde eine Reihe von GaN-Einzelschichten hergestellt, um die Parameter des Tanguy-Modells zu etablieren. Danach wurden AlGaIn-Einzelschichten gewachsen, um das optische Modell in den Bereich des ternären Kristalls auszudehnen. Die Spektroskopische Ellipsometrie (SE) erwies sich als ausgezeichnetes prozessbegleitendes Analyseverfahren.

Als kritisches Element der Bestimmung der Wachstumsparameter für die DBR/VCSEL-Deposition erwiesen sich unmittelbar vor jedem Spiegelwachstum hergestellte Referenzproben. Damit konnte *ex-situ* die Prozesskontrolle per SE durchgeführt werden. Probleme der *in-situ* Wachstumskontrolle, wie Bedampfung der Messapparatur,

Temperaturabhängigkeiten und Kalibrierungsschwierigkeiten in der Vakuumumgebung konnten ausgeschaltet werden. Mit den *ex-situ* gefundenen optischen Parametern der Referenzprobe konnte unmittelbar folgend, d.h. mit möglichst geringer Wachstumsparameterschwankung des Reaktors, das DBR- oder VCSEL-Design durchgeführt und die Strukturen gewachsen werden. Das Resultat war die erfolgreiche Herstellung von AlGaN/AlN-DBRs mit Reflektivitäten bis zu 97% im gewünschten Spektralbereich um 362 nm. Mit der Feststellung allgemeiner Tanguy-Modell-Parameter konnte eine recht genaue Voraussage der optischen Parameter einzelner Schichten durch Vorgabe der Wachstumsparameter erreicht werden. Wegen mangelnder Wachstumsparameterreproduzierbarkeit gab es aber keine 100%ige Übereinstimmung.

Zur kristallographischen Charakterisierung der DBR-Strukturen wurden die im Rahmen der Arbeit entwickelten, neuen XRD-Verfahren eingesetzt. Hierbei wurde ebenfalls auf die Referenzproben zurückgegriffen, und so mit nur einem Scan der DBR-Strukturen der Verzerrungszustand und, was für die optische Simulation wesentlich wichtiger ist, die Halbperiodenlängen gefunden. Leider musste bei der Auswertung festgestellt werden, dass alle Multiheterostrukturproben Inhomogenität aufweisen.

Eine Versuchsreihe zu MQWs zur Verwendung als aktive Medien lieferte vielversprechende PL-Intensitäten und ausreichende kristallographische Qualität unter identischen Wachstumsbedingungen wie die für die DBR-Produktion gewählten. Aus der Kombination von bestgeeigneten MQWs und DBRs wurden UV-VCSEL-Strukturen gewachsen, deren Lasertauglichkeit im Rahmen einer weiteren Dissertationsarbeit geprüft wird [13]. Nach Elektronenstrahl- und optischem Pumpen konnte aber, wie schon erwähnt, bei den gewachsenen UV-VCSEL Strukturen der Übergang von verstärkter, spontaner Emission zu stimulierter Emission nachgewiesen werden.

In dieser Arbeit wurden die Grundlagen für eine erfolgreiche, zukünftige UV-VCSEL-Produktion gelegt. Grundsätzliche Prozessschwierigkeiten wurden erkannt und können in nachfolgenden Verbesserungen am Produktionsgerät und am Prozessverfahren zu deutlichen Verbesserungen der kristallographischen Qualität der hergestellten Multiheterostrukturproben führen. Es ist nachgewiesen worden, dass sich mit den entwickelten Methoden innerhalb des AlGaN-Materialsystems erfolgreich hochreflektierende Spiegel für den UV-Bereich herstellen lassen. Ebenso konnten erste UV-VCSEL-Strukturen für die optische Auswertung fertiggestellt werden.

8 Dank

Ich möchte mich bei allen, die zur Fertigstellung dieser Arbeit mit ihrer Unterstützung beigetragen haben herzlich bedanken.

Prof. J. Graul hat durch seinen Rat und stetige Aufmunterung, und nicht zuletzt das zur Verfügung stellen der notwendigen Mittel den Grundstein für diese Dissertation gelegt. Während der Dauer meiner Arbeit habe ich durch ihn den notwendigen Freiraum genossen, meine Arbeit zum Erfolg zu führen.

Prof. H. J. Osten danke ich für seinen Beistand während der finalen Phase der Promotion.

Für die wertvolle Zusammenarbeit im Bereich der Röntgenspektroskopie bleibe ich Prof. R. J. Hauenstein verbunden, der schon meine Diplomarbeit betreut hatte. Ohne sein profundes Wissen und die Nutzung seines Diffraktometers wären große Teile dieser Arbeit deutlich langsamer vorangekommen.

Meinen Mitstreiter Harald Klausung möchte ich besonders hervorheben für die enge Zusammenarbeit im LfI zum Thema Nitrid-VCSEL. Viele Gespräche halfen die eine oder andere Ungereimtheit aufzuklären, und den gemeinsamen Fortschritt zu befördern.

Dr.-Ing. Jens Stemmer danke ich für seine Geduld und Auskunftsfreude, als es zu Beginn darum ging das „Fahren“ der MBE-Anlage zu erlernen. Außerdem habe ich auf seine Pionierarbeit auf dem Gebiet der AlN-IL aufbauen können.

Mit Jochen Aderhold führte ich manch fachliche Diskussionen, und erhielt von ihm steten Zuspruch und Ruhe, wenn wieder mal etwas schiefgelaufen war.

Ich danke für die Beiträge von A. Ponce und Prof. S.I. Molina, die TEM-Messungen durchgeführt haben und mir bei der Diskussion der Ergebnisse wichtige Hinweise gaben. Dr. S. Günster führte am Laser Zentrum Hannover die optischen Reflexionsmessungen an DBR-Proben durch.

Ich danke meinen unmittelbaren Weggefährten der GaN-Gruppe am LfI: Thomas Rotter für seine Expertise und Quellenkenntnis bei allem, was mit PL-Messungen und GaN zu tun hat; David Mistele für seine Assistenz und Besprechung insbesondere von Hall-Messungen und Dr. Olga Semchinova, für die stets angenehme Arbeitsatmosphäre im gemeinsamen Büro und Tipps für dies und jenes zwischendurch.

Allen (wissenschaftlichen) Mitarbeitern des IHW und des LfI gilt darüber hinaus meine Zuneigung für die stets gute Stimmung und allzeit gern gegebenem Rat.

Meiner Familie gilt meine besondere Anerkennung für die Geduld und die Unterstützung auf dem langen Ausbildungsweg.

9 Anhang

9.1 Tanguy-Simulationsparameter

a) AlGaN-Proben nach Abschnitt 5.2 bzw. Abbildung 3.8.

AlGaN-Probe	B	C	D	E	F
x	0.4	0.56	0.71	0.86	1
[1,1] Oxide Cauchy: Thickness [nm]	4.78	2.07	2.22	0.95	1.88
Oxide Cauchy: N0	0.412	0.274	0.251	0.245	0.053
Oxide Cauchy: N1	256.9	600.6	518.5	122.6	175.8
Oxide Cauchy: N2	-49	-341.5	-292.2	10.9	143.4
Oxide Cauchy: K0	0.443	0.427	0.448	0.286	0.61
Oxide Cauchy: K1	-45.279	-94.812	-142.758	375.88	369.596
Oxide Cauchy: K2	-14.397	128.915	165.804	-258.211	-269.975
[1,2] AlGaN Tanguy: Thickness [nm]	710.67	748.88	715.95	832.55	731.81
AlGaN Tanguy: Eg	4.23	4.8	5.2	5.6	6.2
AlGaN Tanguy: R	0.0130579	0.0148951	0.0133992	0.0126772	0.0015334
AlGaN Tanguy: Gamma	0.0199716	0.0204514	0.0249408	0.0340122	0.0217787
AlGaN Tanguy: A	22.04476	22.21098	19.6543	23.43536	22.83886
AlGaN Tanguy: a	158.43469	187.21036	209.5974	221.18062	258.94464
AlGaN Tanguy: b	49.49691	57.21491	67.02934	75.23407	94.28884
[1,3] Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: Thickness [nm]	11.63	9.93	10.4	9.52	8.54
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: Fraction of inclusion	0.068	0.055	0.045	0.019	0
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: medium:N0	1	1	1	1	1
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: medium:N1	0	0	0	0	0
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: medium:N2	0	0	0	0	0
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: medium:K0	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: medium:K1	2139.84	2139.84	2139.84	2139.84	2139.84
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: medium:K2	-385.43	-385.43	-385.43	-385.43	-385.43
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: host:Eg	3.42	3.42	3.42	3.42	3.42
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: host:R	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: host:Gamma	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: host:CA	20	20	20	20	20
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: host:a	170	170	170	170	170
Int.: inclusion/GaN Tanguy Kane: host:b	55	55	55	55	55
MSE (270-850nm)	0.0095	0.009	0.0066	0.0087	0.013

b) DBR-Proben nach Kapitel 6.3.

DBR-Probe	A2 Design	A2 XRD-Fit	B2 Design	B2 XRD-Fit	B3 Design	B3 XRD-fit
[1,1] AlGaIn Tanguy: Thickness [nm]	40.25	41.47	34.55	34.40	34.55	33.25
AlGaIn Tanguy: Eg	4.55	4.3	3.55	3.55	3.55	3.55
AlGaIn Tanguy: R	0.0604	0.0763	0.0061	0.000	0.0061	0.0049
AlGaIn Tanguy: Gamma	0.2764	0.1295	0.0683	0.051	0.0683	0.0498
AlGaIn Tanguy: A	40.22	34.87	38.77	49.01	38.77	36.49
AlGaIn Tanguy: a	2146.64	1731.06	3263.29	400.98	3263.29	206.33
AlGaIn Tanguy: b	1115.43	834.42	1384.46	149.36	1384.46	70.80
[1,2] AlN Sellm. Joo et al 2000: Thickness [nm]	44.66	44.38	42.29	34.82	42.29	39.41
AlN Sellm. Joo et al 2000: A1	1.08	1.08	1.08	1.08	1.08	1.08
AlN Sellm. Joo et al 2000: B1	2.99	2.99	2.99	2.99	2.99	2.99
AlN Sellm. Joo et al 2000: C1	138.2	138.2	138.2	138.2	138.2	138.2
[1,12] AlN Sellm. Joo et al 2000: Thickness [nm]	260	257.87	260	258	260	262
MSE (270-850nm)	0.0315	0.0129	0.0745(B)	0.0575(B)	0.0972(M)	0.0407(B)

DBR-Probe	C2 Design	C2b XRD-Fit	D2 Design	D2b XRD-Fit
[1,1] AlGaIn Tanguy: Thickness [nm]	36.29	35.05	38.62	36.00
AlGaIn Tanguy: Eg	3.55	3.55	3.55	3.57
AlGaIn Tanguy: R	0.0101	0.00071	0.0101	0.0060
AlGaIn Tanguy: Gamma	0.0150	0.0581	0.0100	0.0400
AlGaIn Tanguy: A	23.66	41.64	21.98	28.00
AlGaIn Tanguy: a	213.14	51.96	247.31	247.31
AlGaIn Tanguy: b	76.43	29.17	85.91	85.91
[1,2] AlN Sellm. Joo et al 2000: Thickness [nm]	42.3	41.3	42.29	40.04
AlN Sellm. Joo et al 2000: A1	1.08	1.08	1.08	1.08
AlN Sellm. Joo et al 2000: B1	2.99	2.99	2.99	2.99
AlN Sellm. Joo et al 2000: C1	138.2	138.2	138.2	138.2
[1,12] AlN Sellm. Joo et al 2000: Thickness [nm]	260	241	260	265
MSE (270-850nm)	0.0974	0.0396	0.0894	0.0587

9.2 Tabellenverzeichnis

Tabelle 1.1. Vergleich wichtiger Halbleitereigenschaften bei Raumtemperatur.	3
Tabelle 1.2. Ausgewählte Eigenschaften des isomorphen Wurtzit-Nitridmaterialsystems bei Raumtemperatur	9
Tabelle 2.1. Gewichtungsfaktoren <i>C</i> ausgewählter Elemente für die Partialdruckmessung mit der am Manipulator befindlichen Bayard-Alpert Flußmeßröhre	17
Tabelle 2.2. Festgestellte Kennwerte der Riber MBE 32 Effusionszellen.....	28
Tabelle 2.3. Gitterkonstanten, thermische Ausdehnungskoeffizienten und Wärmeleitfähigkeit möglicher Substrate und hexagonaler Gruppe III-Nitride.....	31
Tabelle 2.4. Eigenschaften einer Reihe Si-dotierter GaN-Einzelschichten.	44
Tabelle 2.5. Je Längeneinheit verschiedenen TDs gespeicherte Energie.	50
Tabelle 3.1 Literaturwerte und gefittete Werte des Tanguy-Modells für eine GaN- Einzelschicht.	74
Tabelle 5.1 Proben und Ergebnisse zur HT-AlN-IL Untersuchung.....	104
Tabelle 5.2. Eigenschaften der untersuchten AlGaN Einzelschichten.....	113
Tabelle 5.3. Übersicht bei verschiedenen Wachstumstemperaturen hergestellter AlGaN- und AlN-Einzelschichten.	122
Tabelle 6.1. Eigenschaften des ersten hergestellten DBR Probensatzes.....	130
Tabelle 6.2. Eigenschaften der DBRs, an denen die XRD Verzerrungsanalyse durchgeführt wurde.....	138
Tabelle 6.3. XRD Verzerrungsergebnisse der untersuchten DBR-Proben nach der quantitativ- qualitativen Methode.....	140
Tabelle 6.4. Berechnete kritische Schichtdicken der DBRs.....	144
Tabelle 6.5. Übersicht über die Proben der MQW-Vergleichsstudie.	152

9.3 Veröffentlichungen

VERÖFFENTLICHUNGEN IM ZUSAMMENHANG DIESER ARBEIT

H. Klausning, N. Kamata, F. Takahashi, **F. Fedler**, D. Mistele, J. Aderhold, O. K. Semchinova, J. Graul, T. Someya, and Y. Arakawa, „**Improved quality of plasma assisted MBE-grown GaN/AlGa_N quantum wells revealed by two-wavelength excited photoluminescence**“, phys. stat. sol. (a) 195, No. 1, 3–10 (2003).

F. Fedler, H. Klausning, R. J. Hauenstein, A. Ponce, S.I. Molina, O. Semchinova, J. Aderhold, and J. Graul, „**High Reflectivity AlGa_N/AlN DBR Mirrors Grown by PA-MBE**“, phys. stat. sol. (c) 0(1), 258-262 (2002).

H. Klausning, **F. Fedler**, J. Dänhardt, R. Jaurich, A. Kariazine, S. Günster, D. Mistele, J. Graul, „**Electron Beam Pumped Nitride Vertical Cavity Surface Emitting Structures with AlGa_N/AlN DBR Mirrors**“, phys. stat. sol. (a) 194(2) 428-432 (2002).

F. Fedler, H. Klausning, D. Mistele, O. Semchinova, J. Aderhold, and J. Graul, „**PA-MBE growth of 5.5, 10.5, 20.5, and 40.5 period high reflectivity Al_xGa_{1-x}N/AlN Bragg reflectors**“, J. Crystal Growth, *submitted* (2002).

F. Fedler, R. J. Hauenstein, H. Klausning, D. Mistele, O. Semchinova, J. Aderhold, and J. Graul, „**Strain, morphological, and growth-mode changes in AlGa_N single layers at high AlN mole fraction**“, J. Crystal Growth, 241 (4), 535 (2002).

F. Fedler, J. Stemmer, R. J. Hauenstein, T. Rotter, A. M. Sanchez, A. Ponce, S. I. Molina, D. Mistele, H. Klausning, O. Semchinova, J. Aderhold, and J. Graul, „**Effect of High Temperature Single and Multiple AlN Intermediate Layers on N-polar and Ga-polar GaN Grown by Molecular Beam Epitaxy**“, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 693, I3.34.1. (2002).

A. Ponce, S.I. Molina, **F. Fedler**, H. Klausning, O. Semchinova, J. Aderhold, and J. Graul, „**HRTEM Study of Al_xGa_(1-x)N/AlN DBR Mirrors**“, conference paper DIAMOND2002, Spain, (2002).

A. Ponce, A.M. Sánchez, S.I. Molina, **F. Fedler**, J. Stemmer, J. Graul, „**Filtering Study of Threading Dislocations in AlN Buffered MBE GaN/Sapphire using Single and Multiple High Temperature AlN Intermediate Layers**“, phys. stat. sol. (a), 192(2), 424 (2002).

H. Klausung, **F. Fedler**, J. Aderhold, D. Mistele, T. Rotter, J. Stemmer, O. Semchinova, J. Graul, S. Günster, “**Characterization of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ Distributed Bragg Reflectors Grown by Plasma Assisted Molecular Beam Epitaxy**”, *accepted for publication* in *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* 693 (2002).

F. Fedler, J. Stemmer, R. J. Hauenstein, A. M. Sanchez, F. J. Pacheco, S. I. Molina, T. Rotter, D. Mistele, H. Klausung, O. Semchinova, J. Aderhold, and J. Graul, „**Quality Enhancing High Temperature AlN Intermediate Layer in GaN Grown by Molecular Beam Epitaxy**“, MRS Fall Meeting, Boston, MA, USA, November 26-30, Poster (2001).

O.K. Semchinova, J. Aderhold, V. Davydov, **F. Fedler**, H. Klausung, D. Mistele, A. Mudryi, T. Rotter, A. Sakharov, M. Sheglov, J. Stemmer, and J. Graul, ”**Optical and Structural Properties of AlGaN Alloys Grown by PAMBE and MOMBE Technique on Sapphire Substrates**”, Tenth Canadian Semiconductor Technology Conference, Ottawa, Canada, August 13-17, Talk (2001).

H. Klausung, J. Aderhold, **F. Fedler**, D. Mistele, J. Stemmer, O. Semchinova, and J. Graul; J. Dänhardt, and S. Panzer, “**Electron Beam Pumping in Nitride Vertical Cavities with $\text{GaN}/\text{Al}_{0.38}\text{Ga}_{0.62}\text{N}$ Bragg Reflectors**”, *Proc. SPIE* 3944, 844-852 (2000).

H. Klausung, J. Aderhold, **F. Fedler**, D. Mistele, J. Stemmer, O. Semchinova, and J. Graul; J. Dänhardt, and S. Panzer, “**Electron Beam Pumping in Nitride Vertical Cavities with $\text{GaN}/\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{N}$ Bragg Reflectors**”, *MRS Internet J. Nitride Semicond. Res.* 5S1, W11.21 (2000).

H. Klausung, J. Aderhold, **F. Fedler**, D. Mistele, J. Stemmer, O. Semchinova, J. Graul, J. Dänhardt, S. Panzer, “**Electron beam pumping in nitride vertical cavities with $\text{GaN}/\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{N}$ Bragg reflectors**”, *Materials Research Society Symposium Proceedings* Vol.595, p.W11.21.1-6 (2000).

J. Stemmer, **F. Fedler**, H. Klausung, D. Mistele, T. Rotter, O. Semchinova, J. Aderhold, A. M. Sanchez; F. J. Pacheco, S. I. Molina, M. Fehrer, D. Hommel, J. Graul, „**High temperature AlN intermediate layer in GaN grown by molecular beam epitaxy**”, *Journal Cryst. Growth* 216(1-4) 15-20 (2000).

F. Fedler, H. Klausung, J. Aderhold, D. Mistele, J. Stemmer, O. Semchinova, J. Graul, J. Dänhardt, and S. Panzer, “**Electron Beam Pumping in Nitride Vertical Cavities with $\text{GaN}/\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{N}$ Bragg Reflectors**”, MRS Fall Meeting, Boston, MA, USA, November 28-December 3, Poster (1999).

9.4 Bibliographie

- [1] M. Riodan, L. Hoddeson, "Crystal Fire - The Birth of the Information Age", W.W. Norton and Company, London New York (1997).
- [2] J. W. Orton, C. T. Foxon, Rep. Prog. Phys. **61** (1998).
- [3] Nichia Chemical Industries, LTD, „Optoelectronic Product Guide“.
- [4] Metzger, R. A., Compound Semicond. **1**, 26 (1995).
- [5] S. Nakamura, Semicond. Sci. Technol. **14**, R27 (1999).
- [6] Arbeitsgruppe D. Hommel, Universität Bremen, Pressemitteilung vom 12.3.2002.
- [7] Matsushita, Pioneer, Philips, Sony, Thomson, LG Electronics, Hitachi, Sharp und Samsung, Pressemitteilung vom 19.2.2002.
- [8] Lumileds Lightning Corporation, Konferenzbeitrag IWN2002, Aachen, Germany (2002).
- [9] S. J. Pearton, F. Ren, A.P. Zhang, K.P. Lee, Mat. Sci. Eng. **250**, 1 (2000).
- [10] Jens Stemmer, Dissertation, LfI, Universität Hannover (2002).
- [11] Thomas Rotter, Dissertation in Vorbereitung, LfI, Universität Hannover.
- [12] David Mistele, Dissertation, LfI, Universität Hannover (2002).
- [13] Harald Klausung, Dissertation in Vorbereitung, LfI, Universität Hannover.
- [14] J. D. Brown et al., MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **4**, 9 (1999).
- [15] T. Someya, R. Werner, R. Forchel, M. Catalano, R. Chingolani, and Y. Arakawa, Science **285**, 1905 (1999).
- [16] Joan M. Redwing, David A. S. Loeber and Neal G. Anderson, Michael A. Tischler and Jeffrey S. Flynn, Appl. Phys. Lett. **69** (1), 1 (1996).
- [17] M. Iwaya, S. Terao, T. Sano, S. Takanami, T. Ukai, R. Nakamura, S. Kamiyama, H. Amano, and I. Akasaki, phys. stat. sol. (a) **188**, 117 (2001).
- [18] M. Diagne, Yiping He, H. Zhou, E. Makarona, A. V. Nurmikko, J. Han, T. Takeuchi, M. Krames, phys. stat. sol.(a) **188**, 105 (2001).
- [19] S. K. Pugh, D. J. Dugdale, S. Brand, R. A. Abram, Semicond. Sci. and Technol. **14**, 23 (1999).
- [20] J. H. Edgar, S. Strite, I. Akasaki, H. Amano, C. Wetzel, "Properties, processing and application of GaN and related semiconductors", EMIS Datareviews Series No.23, INSPEC, IEE (1999).
- [21] Michael S. Shur, M. Asif Khan, Mat. Res. Bull. **22** (2), 44 (1997).
- [22] T. P. Chow, N. Ramungul, M. Ghezzi, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **483**, 89 (1997).
- [23] S. N. Mohammad, H. Morkoc, Prog. Quant. Electron. **20**, 361 (1996).
- [24] V. W. L. Chin, T. L. Tansley, T. Osotchan, J. Appl. Phys. **75**, 7365 (1994).
- [25] H. P. Maruska and J. J. Tietjen, Appl. Phys. Lett. **15**, 327 (1969).
- [26] A. F. Wright, J. Appl. Phys. **82**, 2833 (1997).
- [27] O. Ambacher, M. S. Brandt, R. Dimitrov, T. Metzger, M. Stutzmann, R. A. Fischer, A. Miehr, A. Bergmaier, G. Dollinger, J. Vac. Sci. Technol. **B14**, 3532 (1996).
- [28] Y. P. Varshni, Physica Netherlands **34**, 149 (1967).
- [29] M. C. Benjamin, C. Wang, R. F. Davis, R. J. Nemanich, Appl. Phys. Lett. **64**, 3288 (1994).
- [30] M. Ilegems, H. C. Montgomery, J. Phys. Chem. Solids **34**, 885 (1973).

- [31] Riber headquarters, Rueil-Malmaison, Paris / www.riber.com.
- [32] Jochen Aderhold, Dissertation in Vorbereitung, Lfl, Universität Hannover.
- [33] www.webelements.com.
- [34] Riber MBE32 „Operator’s Guide“.
- [35] M. A. Herman, H. Sitter, “Molecular Beam Epitaxy”, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg (1996).
- [36] P. Clausing, *Z. Physik* **66**, 471 (1932).
- [37] P. Clausing, *Ann. Phys. (Leipzig)* **12**, 961 (1932).
- [38] B. B. Dayton, „Gas glow patterns at entrance and exit of cylindrical tubes“, 156 National Symposium on Vacuum Technology Transactions, ed. By E. S. Perry, J. H. Durant, Pergamon, Oxford (1957).
- [39] M. Knudsen, *Ann. Phys. (Leipzig)* **47**, 697 (1915).
- [40] Addon www.addon-mbe.com.
- [41] Miyake, S. *Sci. Pap. Inst. Phys. Chem. Res. Tokyo* **31**, 161 (1937).
- [42] User’s Manual EK-2035-R, Staib Instrumente, Hagenauerstr. 22, 85416 Langenbach, Germany.
- [43] C. Heinlein, J. Grepstad, T. Berge, H. Riechert, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 3, 341 (1997).
- [44] F. Widmann, G. Feuillet, B. Daudin, J. L. Rouvière, *J. Appl. Phys.* **85**, 3, 1550 (1999).
- [45] S. Nakamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, 10A, L1705 (1991).
- [46] I. Akasaki, H. Amano, Y. Koide, K. Hiramatsu, N. Sawaki, *J. Cryst. Growth* **98**, 1-2, 209 (1989).
- [47] G. Koblmüller, R. Averbeck, H. Riechert, P. Pongratz, IWN2002 Aachen, 266-P-010 (2002).
- [48] B. Heying, R. Averbeck, L. F. Chen, E. Haus, H. Riechert, *J. S. Speck, J.A.P.* **88**(4), 1855 (2000).
- [49] H. M. Chen, Y. F. Chen, M. C. Lee, M. S. Feng, *Phys. Rev. B* **56**, 11, 6942 (1997).
- [50] Lumileds Lightning, San Jose, California, USA.
- [51] J. P. Hirth, J. Lothe, *Theory of Dislocations*, Wiley, New York (1982).
- [52] N. Aichoune, V. Potin, P. Ruterana, A. Hairie, G. Nouet, E. Paumier, *Comput. Mater. Sci.* **17**, 380 (2000).
- [53] P. Ruterana, G. Nouet, *phys. stat. sol. (b)* **227**, 177 (2001).
- [54] F. H. Stillinger, T. A. Weber, *Phys. Rev. B* **38**, 1537 (1985).
- [55] A. Bere, A. Serra, *Phys. Rev. B*, **65**, 205323-1 (2002).
- [56] L. Sugiura, *J. Appl. Phys* **81**(4), 1633 (1997).
- [57] J. Amin *Ann. de chim. et phys.* **29**, 263 (1850).
- [58] P. Drude, *Ann. d. Phys. Chem. (Leipzig)* **34**, 489 (1888).
- [59] D. E. Aspnes, A. A. Studna, *Phys. Rev.* **B27**, 985 (1983).
- [60] R. M. Azzam, N. M. Bashara, “Ellipsometry and Polarized Light”, North Holland, Amsterdam (1989).
- [61] Sentech Instruments GmbH, Berlin.
- [62] D. E. Aspnes, *J. Opt. Soc. Am.* **64**, 812 (1974).
- [63] P. Yu., M. Cardona, „Fundamentals of Semiconductors“, Kap.6, Springer, Berlin (1996).
- [64] U. Richter, Sentech Seminar für Dünnschichtmeßtechnik, Berlin, 24.10.2000.
- [65] Sentech Spectraray Software Handbuch.
- [66] M. Born, “Optik“, S. 501 ff, Springer Verlag, Berlin, (1972).
- [67] S. Y. Kim, K. Vedam, *Thin Solid Films* **166**, 325 (1988).
- [68] C. Tanguy, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4090 (1995).
- [69] C. Tanguy, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **32**, 1746 (1996).

-
- [70] C. Kittel, "Einführung in die Festkörperphysik", Kap.11, 7. Auflage, R. Oldenbourg Verlag GmbH, München (1988).
- [71] F. Stern, Phys. Rev. **133**, A1653 (1964).
- [72] R. Enderlein, G. M. Sipahi, L. M. R. Scolfaro, J. R. Leite, Phys. Stat. Sol. (b) **206**, 623 (1998).
- [73] G. A. Baker, Jr., J. L. Gammel, Eds., "The Padé Approximant in Theoretical Physics", Mathematics in Science and Engineering **71**, Academic, New York (1970).
- [74] D.E. Aspnes, Thin Solid Films **89**, 249 (1982).
- [75] J. C. Maxwell-Garnett, Phil. Tr. Of the Roy. Soc. Of London **203**, 385 (1904) und **205A**, 237 (1906).
- [76] D. A. G. Bruggemann, Ann. D. Phys. (Leipzig) **24**, 636 (1935).
- [77] D. Bergmann, Phys. Rep. **C43**, 377 (1978).
- [78] I. N. Bronstein, K. A. Semendjajew, „Taschenbuch der Mathematik“, Kap.18.1.3, Verlag Harri Deutsch, Frankfurt am Main (1995).
- [79] A. T. Meney, E. P. O'Reilly, A. R. Adams, Semicon. Sci. Technol. **11**, 897 (1996).
- [80] S. Logothetidis, J. Petalas, Phys. Rev. B **50**, 18017 (1994).
- [81] R. Enderlein, G.M. Sipahi, L. M. R. Scolfaro, J. R. Leite, Phys. Stat. Sol. (b) **206**, 623 (1998).
- [82] A. V. Rodina, B. K. Meyer, Phys. Rev. B **64**, 245209 (2001).
- [83] M. Suzuki, T. Uenoyama, Jpn. J. Appl. Phys. **35**, 543 (1996).
- [84] T. A. Kennedy, E. R. Glaser, W. E. Carlos, P. P. Ruden, Shuji Nakamura, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **4S1**, G7.4 (1999).
- [85] G. Yu, G. Wang, H. Ishikawa, M. Umeno, T. Soga, T. Egawa, J. Watanabe, T. Jimbo, Appl. Phys. Lett. **70**, 3209 (1997).
- [86] M. Passlack, E. F. Schubert, W. S. Hobson, M. Hong, N. Moriya, S. N. G. Chu, K. Konstadinidis, J. P. Mannaerts, M. L. Schnoes, G. J. Zyzik, J. Appl. Phys. **77** (2), 686 (1995).
- [87] J. Wagner, H. Obloh, M. Kunzer, M. Maier, K. Köhler, J. Appl. Phys. **89**, 2779 (2001).
- [88] R. Goldhahn, S. Shokhovets, J. Scheiner, G. Gobsch, T. S. Cheng, C. T. Foxon, U. Kaiser, G. D. Kipshidze, W. Richter, Phys. Stat. Sol. (a) **177**, 107 (2000).
- [89] G. Yu, H. Ishikawa, M. Umeno, T. Egawa, J. Watanabe, T. Jimbo, T. Soga, Appl. Phys. Lett. **72**, 2202 (1998).
- [90] T. Yang, S. Goto, M. Kawata, K. Uchida, A. Niwa, J. Gotoh, Jpn. J. Appl. Phys **37**, L1105 (1998).
- [91] H. Y. Joo, H. J. Kim, S. J. Kim, S. Y. Kim, Thin Solid Films **368**, 67 (2000).
- [92] H. Lipson, C. A. Taylor, "Fourier Transforms and X-Ray Diffraction", Bell and Sons, London (1958).
- [93] S. Grosswig, K.-H. Jäckel, R. Kittner, B. Dietrich, U. Schellenberger, Cryst. Res. Technol. **20**, 1093 (1985).
- [94] F. Fedler, Master's Thesis, Oklahoma State University (1998).
- [95] G. Bauer, W. Richter, „Optical Characterisation of Epitaxial Semiconductor Layers“, Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York (1996).
- [96] A. M. Sanchez, F. J. Pacheco, S. I. Molina, J. Stemmer, J. Aderhold and J. Graul, Mater. Sci. Eng. B **80**, 299 (2001).
- [97] A. M. Sanchez, F. J. Pacheco, S. I. Molina, J. Stemmer, J. Aderhold, J. Graul, J. Electron. Mat. **30**, L17 (2001).
- [98] K. Uchida, K. Nishida, M. Kondo, H. Munekata, J. Cryst. Growth **189/190**, 270 (1998).

- [99] M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Yamaguchi, C. Wetzel, H. Amano, I. Akasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37** (3B), L316 (1998).
- [100] C. Yang, M. Wu, C. Chang, G. Chi, *J. Appl. Phys.* **85** (12), 8427 (1999).
- [101] L. K. Li, B. Turk, W. I. Wang, S. Syed, D. Simonian, H. L. Stormer, D. V. Lang, *J. Vac. Sci. Technol. B* **18** (3), 1472 (2000).
- [102] S. A. Nikishin, N. N. Faleev, V. G. Antipov, S. Francoeur, L. Grave de Peralta, G. A. Seryogin, H. Temkin, T. I. Prokofyeva, M. Holtz, and S. N. G. Chu, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 2073 (1999).
- [103] J. Stemmer, F. Fedler, H. Klausung, D. Mistele, T. Rotter, O. Semchinova, J. Aderhold, A. M. Sanchez, F. J. Pacheco, S. I. Molina, M. Fehrer, D. Hommel, and J. Graul, *J. Cryst. Growth* **216**, 15-20 (2000).
- [104] J. Zhang, D. Sun, X. Wang, X. Li, M. Kong, Y. Zeng, J. Li, L. Lin, *J. Cryst. Growth* **192**, 471 (1998).
- [105] B. Heying, I. Smochkova, C. Poblentz, C. Elsass, P. Fini, S. Den Baars, U. Mishra, J. S. Speck, *Appl. Phys. Lett.* **77** (18), 2885 (2000).
- [106] J. Zhang, D. Sun, X. Wang, X. Li, M. Kong, Y. Zeng, J. Li, L. Lin, *J. Cryst. Growth* **192**, 471 (1998).
- [107] Shiping Guo, Milan Pophistic, Ian Ferguson, Boris Peres, Phil Lamarre, Steve Tobin, Kwok Wong, Marion Reine, Ashok Sood, *Mat. Res. Soc. Smp. Proc.* **693**, I11.18.1 (2001).
- [108] Jung Han, Jeffrey J. Figiel, Gary A. Petersen, Samuel M. Myers, Mary H. Crawford, Michael A. Banas, Sean J. Hearne, *MRS Fall 1999 online proceedings*, W6.2.1 (1999).
- [109] H. M. Ng, T. D. Moustakas, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2818 (2000) und darin enthaltene Referenzen.
- [110] H. Edgar, S. Strite, I. Akasaki, H. Amano, C. Wetzel, B4.1 in *Properties, processing and applications of Gallium Nitride and related semiconductors*, INSPEC, (1999).
- [111] B. Daudin, G. Feuillet, Guido Mula, H. Mariette, J. L. Rouviere, N. Pelekanos, G. Fishman, C. Adelman, J. Simon, *phys. stat. sol.* **176**, 621 (1999).
- [112] Valery Y. Davydov, Igor N. Goncharuk, Marina V. Baidakova, Alexander N. Smirnov, Arsen V. Subashiev, Jochen Aderhold, Jens Stemmer, Thomas Rotter, Dirk Uffmann, Olga Semchinova, *Mat. Sci. Eng. B* **59**, 222 (1999).
- [113] V. Yu. Davydov, I. N. Goncharuk, A. N. Smirnov, et al., *Phys. Rev. B*, to be published.
- [114] Guido Mula, C. Adelman, S. Moehl, J. Oullier, B. Daudin, *Phys. Rev. B* **64**, 195406 (2001).
- [115] S. R. Lee, A. F. Wright, M. H. Crawford, G. A. Petersen, J. Han, R. M. Biefeld, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3344 (1999).
- [116] A. F. Wright, J. S. Nelson, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 3051 (1995).
- [117] H. J. Joo, H. J. Kim, S. J. Kim, S. Y. Kim, *Thin Solid Films*, **368** (1), 67 (2000).
- [118] M. Asif Khan, J. N. Kuznia, J. M. Van Hove, D. T. Olson, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 1449 (1991).
- [119] T. Someya, Y. Arakawa, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3653 (1998).
- [120] G. Kipshidze, V. Kuryatkov, K. Choi, Iu. Gherasoiu, B. Borisov, S. Nikishin, M. Holtz, D. Tsvetkov, V. Dmitriev, H. Temkin, *phys. stat. sol. (a)* **188**, 881 (2001).
- [121] H. M. Ng, T. D. Moustakas, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2818 (2000) und darin enthaltene Referenzen.
- [122] F. Semond, N. Antoine-Vincent, N. Schnell, G. Malpuech, M. Leroux, J. Massies, P. Disseix, J. Leymarie, A. Vasson, *phys. stat. sol. (a)* **183**, 163 (2001).
- [123] K. E. Waldrip, J. Han, J. J. Figiel, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3205 (2001).

-
- [124] H. Klausning, F. Fedler, T. Rotter, D. Mistele, O. Semchinova, J. Stemmer, J. Aderhold, J. Graul, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **693**, I6.12.1 (2002).
- [125] F. Fedler, J. Stemmer, R. J. Hauenstein, T. Rotter, A. M. Sanchez, A. Ponce, S. I. Molina, D. Mistele, H. Klausning, O. Semchinova, J. Aderhold, J. Graul, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **693**, I3.34.1 (2002).
- [126] F. Fedler, R. J. Hauenstein, H. Klausning, D. Mistele, O. Semchinova, J. Aderhold, and J. Graul, *J. Crystal Growth*, **241** (4), 535 (2002).
- [127] F. Fedler, H. Klausning, D. Mistele, O. Semchinova, J. Aderhold, and J. Graul, "PA-MBE growth of 5.5, 10.5, 20.5, and 40.5 period high reflectivity $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{AlN}$ Bragg reflectors", *J. Crystal Growth*, *submitted*.
- [128] D. Hull, „Introduction to Dislocations“, Pergamon Press (1975).
- [129] A. Fischer, H. Kühne, H. Richter, *Phys. Rev. Lett.* **73** (20), 2712 (1994).
- [130] R. Hull, J. C. Bean, F. Cerdeira, A. T. Fiory, J. M. Gibson, *Appl. Phys. Lett.* **48**, 56 (1985).
- [131] Chinkyoo Kim, I. K. Robinson, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2358 (1996).
- [132] Z.L. Wang, "Reflection Electron Microscopy for Surface Analysis", Cambridge University Press (1996).
- [133] H. Klausning, F. Fedler, J. Dänhardt, R. Jaurich, A. Kariazine, S. Günster, D. Mistele, J. Graul, *physica status solidi (a)* **194**(2), 428-432 (2002).

Lebenslauf

Fritz Fedler, geb. am 1.10.1971 in Nienburg/Weser, Niedersachsen

05.1991 Abitur, Gymnasium Hindenburgschule, Nienburg

07.1991 Bundeswehr, Ausbildung zum Reserveoffizier

10.1993 Universität Hannover, Studienfach "Physik (Diplom)"

08.1996 Oklahoma State University, "Physics Masters Program"

12.1998 Master of Science, Oklahoma State University

04.1999 Diplom-Physiker, Universität Hannover

07.1999 Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Laboratorium für
Informationstechnologie, Universität Hannover (Prof. Graul)

10.2002 Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Halbleiter-
bauelemente und Werkstoffe, Universität Hannover (Prof. Osten)