



FAKULTÄT FÜR
NATURWISSENSCHAFTEN

Effekte freier Ladungsträger auf die optischen Eigenschaften von kubischem Galliumnitrid

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)

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

von: M.Sc. Elias Baron
geb. am: 14.09.1994 in: Spremberg

Gutachter: Prof. Dr. Martin Feneberg
Prof. Dr. Stefan Krischok

eingereicht am: 19.12.2022
verteidigt am: 10.05.2023

Bisherige wissenschaftliche Veröffentlichungen

- [1] E. Baron, R. Goldhahn, M. Deppe, D.J. As und M. Feneberg, *Influence of the free-electron concentration on the optical properties of zincblende GaN up to $1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$* , Phys. Rev. Materials **3**, 104603 (2019).
- [2] E. Baron, R. Goldhahn, M. Deppe, D.J. As und M. Feneberg, *Photoluminescence Line-Shape Analysis of Highly n-type Doped Zincblende GaN*, Phys. Status Solidi B **257**, 1900522 (2020).
- [3] E. Baron, M. Feneberg, R. Goldhahn, M. Deppe, F. Tacke und D.J. As, *Optical evidence of many-body effects in the zincblende $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ alloy system*, J. Phys. D: Appl. Phys. **54**, 025101 (2021).
- [4] F. Meier, M. Protte, E. Baron, M. Feneberg, R. Goldhahn, D. Reuter und D.J. As, *Selective area growth of cubic gallium nitride in silicon (001) and 3C-silicon carbide (001)*, AIP Advances **11**, 075013 (2021).
- [5] E. Baron, R. Goldhahn, S. Espinoza, M. Zahradník, M. Rebarz, J. Andreasson, M. Deppe, D.J. As und M. Feneberg, *Femtosecond pump-probe absorption edge spectroscopy of cubic GaN*, arXiv:2206.02223 [cond-mat.mtrl-sci] (2022).

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis	iii
Symbolverzeichnis	v
1 Einleitung	1
2 Gruppe III-Nitride	5
2.1 Probeneigenschaften	7
3 Dielektrische Funktion	10
3.1 Phononen und Plasmonen	11
3.2 Elliott-Modell nahe der Bandkante	17
4 Bandstruktur	20
4.1 Kane-Modell	21
4.2 Vielteilcheneffekte	25
4.3 Effektive Masse	29
5 Ladungsträgerverhalten nach Hochenergieanregung	32
5.1 Relaxation	33
5.2 Diffusion und Rekombination	36
6 Experimentelle Untersuchungsmethoden	40
6.1 Spektroskopische Ellipsometrie	40
6.1.1 Laborellipsometer und Datenanalyse	41
6.1.2 Zeitaufgelöste Ellipsometrie	44
6.2 Photolumineszenz	51
6.3 Raman-Spektroskopie	53

7 Ergebnisse	55
7.1 GaN-Proben	55
7.1.1 Infraroter Spektralbereich	55
7.1.2 Bandkantennaher Spektralbereich	66
7.1.3 Zeitaufgelöste Untersuchungen	73
7.1.4 Photolumineszenz Ergebnisse	87
7.2 AlGaIn-Proben	93
7.2.1 Infraroter Spektralbereich	93
7.2.2 Bandkantennaher Spektralbereich	98
8 Zusammenfassung und Ausblick	104
Anhang	107
Literatur	111

Abkürzungsverzeichnis

3C-SiC	kubisches Siliziumcarbid
Al, AlN, AlGaN	Aluminium, -nitrid bzw. Aluminiumgalliumnitrid
BN	Bornitrid
BMS	<i>Burstein-Moss shift</i>
BGR	<i>band gap renormalization</i>
BZ	Brillouin-Zone
CCD	<i>charge-coupled device</i>
D ⁰ A ⁰	Donator-Akzeptor-Paar-Übergang
DF	Dielektrische Funktion
DGL	Differentialgleichung
FBG	<i>function based grading</i>
EM	elektromagnetisch
EMA	<i>effective medium approximation</i>
EPM	<i>empirical pseudopotential method</i>
e ⁻ A ⁰	Leitungsband-Akzeptor-Übergang
Ga, GaAs, GaN	Gallium, -arsenid, bzw. -nitrid
Ge	Germanium
HRXRD	<i>high-resolution x-ray diffraction</i>
HSE+SOC	Heyd–Scuseria–Ernzerhof und <i>spin-orbit coupling</i>
hh	<i>heavy holes</i>
In, InGaN	Indium, -nitrid bzw. Indiumgalliumnitrid
IRSE	Infrarot-Spektroskopische-Ellipsometrie
IR-DF	Infrarot-Dielektrische-Funktion
IR-VASE	<i>infrared variable-angle spectroscopic ellipsometer</i>
LA, LO	longitudinal akustisch bzw. optisch
LBM	Leitungsbandminimum
LD	Laser-Diode
LED	Licht-Emitter-Diode
lh	<i>light holes</i>
LPP	Longitudinal-Phonon-Plasmon
MBE	Molekularstrahlepitaxie
MOVPE	metallorganische Gasphasenepitaxie
N	Stickstoff
PA-MBE	Plasma-unterstützte Molekularstrahlepitaxie
PDOS	<i>phonon density of states</i>
PL	Photolumineszenz
PSEMI	<i>parameterized semiconductor oscillator function</i>
pbp	<i>point-by-point</i>

QCSE	<i>Quantum-Confined-Stark-Effect</i>
RHEED	<i>reflection high-energy electron diffraction</i>
SE	Spektroskopische Ellipsometrie
Si	Silizium
SIMS	Sekundärionen-Massenspektrometrie
so	<i>split-off</i>
TA, TO	transversal akustisch bzw. optisch
trSE	zeitaufgelöste Ellipsometrie
UVSE	Ultraviolett-Spektroskopische-Ellipsometrie
uid	<i>unintentionally doped</i>
VASE	<i>variable-angle spectroscopic ellipsometer</i>
VBM	Valenzbandmaximum
wz-GaN	wurtzit Galliumnitrid
zb-AlN, zb-AlGaN, zb-GaN	zinkblende Aluminiumnitrid, -Aluminiumgalliumnitrid bzw. -Galliumnitrid

Symbolverzeichnis

Symbol	Bedeutung
α	Absorptionskoeffizient
β_0, β_2	Position des Wendepunkts der Linienform der Relaxation bzw. der <i>gain</i> -Rekombination
β_3	Position des Wendepunkts der Linienform des Aufheizens durch Absorption des Laser-Pulses
γ_P	Plasmaverbreiterung
$\gamma_{\text{Kont}}, \gamma_X$	Verbreiterung der Linienform des Exziton-Kontinuums bzw. des diskreten Exzitons
γ_L	Verbreiterung der Linienform des Laser-Pulses
$\gamma_{\text{TO}}, \gamma_{\text{LO}}$	Verbreiterung des TO- bzw. LO-Phonons
Δ	ellipsometrischer Winkel, Phasendifferenz zwischen senkrecht und parallel polarisierten reflektierten Licht
ΔE_{BGR}	Beitrag der Bandkantenrenormierung
$\Delta E_C, \Delta E_V$	Bandbefüllung des Leitungs- bzw. Valenzbandes
$\Delta E_{\text{ee}}, \Delta E_{\text{ei}}$	Elektron-Elektron- bzw. Elektron-Ion-Wechselwirkung
Δ_{so}	<i>split-off</i> Energie
δ_s, δ_p	Phasenlage des senkrecht bzw. parallel polarisierten einfallenden Lichts
$\varepsilon, \bar{\varepsilon}$	DF als Skalar und als Tensor
ε_0	Dielektrizitätskonstante
$\varepsilon_1, \varepsilon_2$	Real- und Imaginärteil der DF
$\varepsilon_2^{\text{Kont}}, \varepsilon_2^X$	ε_2 des Exziton-Kontinuums bzw. des diskreten Exzitons
$\varepsilon_{\perp}, \varepsilon_{\parallel}$	ordentliche bzw. außerordentliche DF
$\varepsilon_S, \varepsilon_{\infty}$	statische Dielektrizitätskonstante bzw. Hochenergiebeitrag
$\langle \varepsilon \rangle, \langle \varepsilon_1 \rangle, \langle \varepsilon_2 \rangle$	Pseudo-DF bzw. Real- und Imaginärteil der Pseudo-DF
μ	reduzierte Masse
μ_{Hall}	Ladungsträgerbeweglichkeit bestimmt aus Hall-Messungen
ρ	Verhältnis der Fresnelkoeffizienten
σ	Pauli-Matrizen
τ_0, τ_1, τ_2	charakteristische Relaxationszeit, Rekombinationszeit bzw. <i>gain</i> -Rekombinationszeit
τ_3, τ_4	charakteristische Aufheiz- bzw. Abkühlzeit
Φ	Einfallswinkel in der Ellipsometrie
Φ'	auf die Relativkoordinate bezogene Elektron-Loch-Wellenfunktion
χ	Suszeptibilität
χ'	Amplitudenverhältnis des senkrecht und parallel polarisierten einfallenden Lichts
χ_{∞}, χ_P	Suszeptibilität des TO-Phonons und des Plasmons

Ψ	ellipsometrischer Winkel, Änderung des Amplitudenverhältnisses durch Reflexion
$\Psi'(\vec{R}_e, \vec{R}_h)$	Elektron-Loch-Wellenfunktion
Ω	Dielektrische Verlustfunktion
ω, ω'	Kreisfrequenz (im infraroten Spektralbereich auch Wellenzahl)
$\omega_{LPP\pm}$	Resonanzfrequenz der LPP-Mode
ω_P, ω_P^*	Plasmafrequenz bzw. abgeschirmte Plasmafrequenz
ω_{TO}, ω_{LO}	Resonanzfrequenz des TO- bzw. LO-Phonons
A	beliebige Amplitude
A, B, C	materialspezifische Konstanten des ABC-Rekombinationsmodells
A', B', C'	Abkürzungen für einen längeren Formel Ausdruck
A_0	Amplitude des PSEMI-M0-Oszillators
a	Gitterparameter
a_B^*	effektiver Bohr-Radius
a_{bX}^*	effektiver Bohr-Radius des Exziton
a_T, Δ_T, Θ_T	Pässler-Parameter für eine temperaturabhängige Bandlücke
B_0	Verbreiterung des PSEMI-M0-Oszillators
b	<i>bowing</i> - Parameter
C_{Kont}	Amplitude der Linienform des Exziton-Kontinuums
C_X	Amplitude der Linienform des diskreten Exzitons
c_0	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum
D	Diffusionskonstante
D'	Zustandsdichte
\vec{D}	Dielektrische Verschiebung
$d_{refl}, d_{SIMS}, d_{UVSE}$	Schichtdicke des zb-GaN bestimmt durch Reflexions-Messungen, SIMS oder UVSE
E	Energie
E'	Energieeigenwert der Matrix H
E_A, E_D	Akzeptor- bzw. Donator-Niveau
E_{BMS}	Verschiebung der Absorptionsenergie durch Burstein-Moss-Verschiebung
E_{bX}	Exziton-Bindungsenergie
E_{CV}	Übergangsenergie zwischen Leitungs- und Valenzband
$E_{CV,UVSE}$	durch UVSE bestimmte Übergangsenergie
E_{CV}^{FBG}	Verhalten der Übergangsenergie durch das Ladungsträgerprofil im FBG-Modell
E_C, E_V	Dispersion des Leitungs- bzw. Valenzbandes
E_{exci}, E_{unex}	Übergangsenergien des angeregten (engl.: <i>excited</i>) bzw. unangeregten (engl.: <i>unexcited</i>) zb-GaN im Ladungsträgerprofil
E_{e-A^0}	Energie des Leitungsband-Akzeptor-Überganges

$E_{e,s}, E_{e,p}$	senkrecht bzw. parallel polarisiertes einfallendes Licht
E_G	Bandlücke (engl.: <i>band gap</i>)
E_k	Energie im Zustand mit der Wellenzahl k
E_n	Energie im Zustand n
E_L, E_V	Energieeigenwert des Leitungs- und Valenzbandes
E_{lok}	Lokalisierungsenergie
E_P	Umrechnung des P -Parameters in eine Energie
E_{ren}	renormierte Bandlücke
$E_{r,s}, E_{r,p}$	senkrecht bzw. parallel polarisiertes reflektiertes Licht
E_X	Energieposition des Exzitons
E_r	Energie im Zustand r
\vec{E}	elektrische Feldstärke
E_0	Energieposition des PSEMI-M0-Oszillators
e	Elementarladung
$F(...)$	Fourier-transformierte Funktion
f_e	Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion
G	Amplitude im FBG-Modell
H	Hamiltonmatrix
\hbar	reduziertes Planck'sches Wirkungsquantum
I_0	maximale Anzahl absorbierter Photonen
I_{WW}	Wechselwirkungsmatrix
\vec{K}	Impuls des Schwerpunkts
k	Betrag der Wellenzahl bzw. des Wellenvektors
k_F	Betrag des Fermi-Vektors
k_{TF}	Betrag des Thomas-Fermi-Abschirmvektor
\tilde{k}	Extinktionskoeffizient
L_D	Diffusionslänge
L'	Intensität
l	Laufvariable
m	Masse
$m_0^*(\Gamma)$	effektive Elektronmasse am Γ -Punkt der Brillouin-Zone
m_e	freie Elektronmasse, Ruhemasse des Elektrons
m_e^*	effektive Elektronmasse
$m_e^*(k_F)$	effektive Elektronmasse am Fermi-Vektor k_F
m_h^*	effektive Lochmasse
\bar{m}_h^*	gemittelte effektive Lochmasse
$m_{hh}^*, m_{lh}^*, m_{so}^*$	effektive Lochmasse im hh-, lh- und so-Valenzband
m_{opt}^*	optische effektive Elektronmasse
N	Anzahl an freien Ladungsträgern
N_0	durch optisches Pumpen erzeugte Gesamtanzahl an freien Ladungsträgern

N_2	maximal durch die <i>gain</i> -Rekombination verlorene Ladungsträgerkonzentration
N_{LBM}	Anzahl von Elektronen im LBM
\tilde{N}	komplexer Brechungsindex
n	Hauptquantenzahl
n	freie Ladungsträgerkonzentration
n_{diff}	freie Ladungsträgerkonzentration im LBM mit Diffusion und Rekombination
n_{gain}	durch die <i>gain</i> -Rekombination verlorene Ladungsträgerkonzentration
n_{gm}	freie Ladungsträgerkonzentration im LBM unter Berücksichtigung von Relaxation, Rekombination, Diffusion und <i>gain</i> -Rekombination
n_{model}	freie Ladungsträgerkonzentration im LBM unter Berücksichtigung von Relaxation, Rekombination und Diffusion
n_{opt}	optische Ladungsträgerdichte
n_{relax}	ins LBM relaxierte freie Ladungsträgerkonzentration
n_{Hall}	Ladungsträgerdichte bestimmt aus Hall-Messungen
\tilde{n}	realer Brechungsindex
P	Impulsmatrixelement, <i>P</i> -Parameter
\vec{P}	Polarisation
$\vec{P}_{\text{ges}}, \vec{P}_{\text{HG}}$	Gesamt- und Hintergrundpolarisation
\vec{P}_{p}	Polarisation durch Plasmon
p	Position des Wendepunkts des Verlaufs der Übergangsenergie im Ladungsträgerprofil
\hat{p}	Impulsoperator
Q	Gesamtladung
q	Verbreiterung des Verlaufs der Übergangsenergie im Ladungsträgerprofil
R	Anzahl relaxierter Elektronen
$\vec{R}_{\text{e}}, \vec{R}_{\text{h}}$	Ortsvektoren von Elektron und Loch
R_{y}^*	effektive Rydberg-Energie
\vec{R}, \vec{r}	Schwerpunkts- und Relativkoordinaten
$r_{\text{s}}, r_{\text{p}}$	Fresnelkoeffizienten für senkrecht bzw. parallel polarisiertes Licht
S	Amplitude des TO-Phonons
S', Z'	Zustände des Leitungs- bzw. Valenzbandes
s	Eindringtiefe bei Absorption
T	Temperatur
T_0, T_1	Anfangs- (Raumtemperatur) und End-Temperatur beim Aufheizen durch den Laser-Puls
$T_{\text{Ge,Si}}$	Temperatur der Ge- oder Si-Effusionszellen
t, t'	Zeit (engl.: <i>time, delay-time</i>)

t_L	zeitliche Position des Maximums des Laser-Pulses
U	Vorfaktor der Fourier-Transformation
u	Anzahl der Phononen
u_k	gitterperiodische Funktion
V	Kristallvolumen
V'	Kristallpotential
x	Al-Gehalt ($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$)
\vec{x}	Auslenkung
y	Fourier-Variable
z	Position innerhalb der zb-GaN-Schicht zwischen Oberfläche ($z=0$) und Grenzschicht zum Substrat ($z \approx 600$ nm)
π	Kreiszahl
e	Euler'sche Zahl
i	imaginäre Einheit
$\exp(\dots)$	Exponentialfunktion
$\text{erf}(\dots)$	Fehlerfunktion (engl.: <i>error-function</i>)
$\text{erfc}(\dots)$	komplementäre Fehlerfunktion
$\Theta(\dots)$	Stufen- / Heaviside-Funktion

1 Einleitung

Spätestens seit dem Nobelpreis 2014 für die Entwicklung der blauen Leucht-Emitter-Diode (LED) [1–4] sind die Gruppe III-Nitride im Fokus von wissenschaftlichem und industriellem Interesse. Nicht nur der große Bereich von möglichen Bandlücken (engl.: *band gap*, E_G) zwischen 0.6 und 6.3 eV [5–10], welche die Herstellung von LEDs oder Laser-Dioden (LD) im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich ermöglichen, sondern auch die inzwischen gut etablierten Wachstumstechnologien, wie metallorganische Gasphasenepitaxie (MOVPE) oder Molekularstrahlepitaxie (MBE), eröffnen den Gruppe III-Nitriden ein weites Feld an Anwendungs- und Forschungsmöglichkeiten. Ein Vergleich zwischen den einstellbaren Bandkantenbereichen in Abhängigkeit des Gitterparameters der kubischen Nitriden, Arseniden und Phosphiden ist in Abb. 1 dargestellt.

Die elektrischen und optischen Eigenschaften der binären Nitridhalbleiter Aluminiumnitrid (AlN), Galliumnitrid (GaN) und Indiumnitrid (InN) sowie ihren ternären Mischkristallen werden natürlich schon deutlich länger untersucht. Der Schwerpunkt der Forschung liegt hierbei auf der hexagonalen Phase, bei der die Kristalle in Wurtzit-Struktur wachsen. Die Gruppe III-Nitride weisen jedoch zusätzlich auch eine kubische Kristallstruktur (β -Phase) auf. Obwohl diese Zinkblende-Struktur nur metastabil ist [11] und besondere Wachstumsparameter benötigt, verspricht sie einige Vorteile gegenüber ihrem hexagonalen Verwandten [12–15]. Hierzu zählen zum Beispiel die Abwesenheit von spontaner und piezoelektrischer Polarisierung [16, 17], die in der Wurtzit-Phase durch die hexagonale Kristallstruktur verursacht wird. Lange Zeit wurde vermutet, dass diese Polarisierungen und der damit einhergehende *Quantum-Confined-Stark-Effect* (QCSE) Grund für das sogenannte *green-gap* (dt.: grüne Lücke) ist. Hierbei handelt es sich um einen signifikanten Leistungseinbruch von LEDs im grünen Spektralbereich, der bisher nicht überwunden werden konnte. In den letzten Jahren haben verschiedene Untersuchungen jedoch nahegelegt, dass andere Effekte, wie erhöhte Defektdichten, den Hauptgrund für das *green-gap* ausmachen [18, 19].

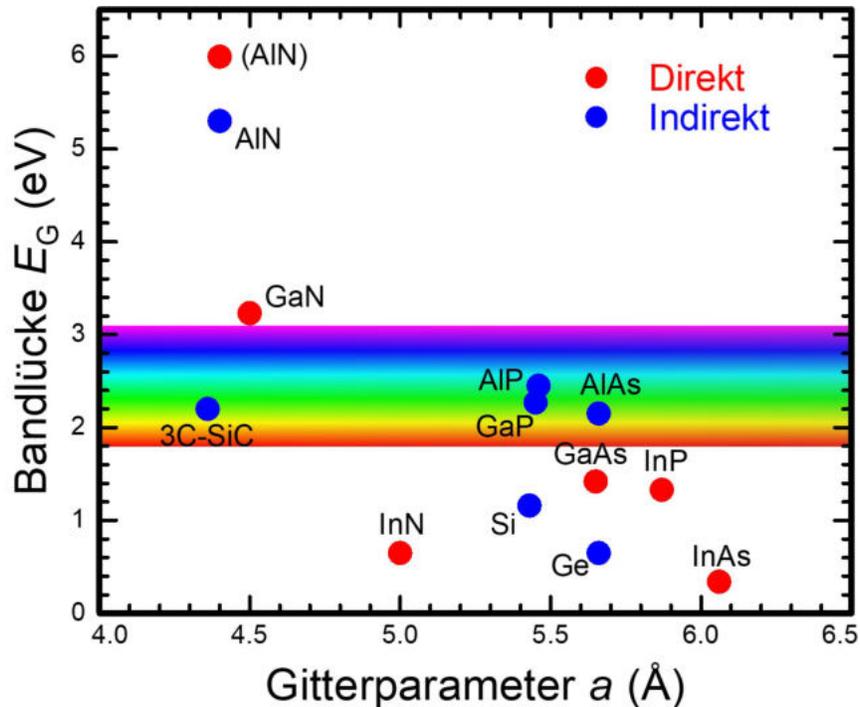


Abbildung 1: Bandkanten und Gitterparameter ausgewählter kubischer Halbleiter [5, 20–28]. Die Unterschiede zwischen direkten und indirekten Bandlücken sind durch verschieden farbige Symbole gekennzeichnet.

Nichtsdestotrotz soll besonderes Interesse den kubischen Vertretern der Gruppe III-Nitride zukommen. So sind zum Beispiel zinkblende GaN (zb-GaN) und sein Mischkristall zinkblende Indiumgalliumnitrid (zb-InGaN) vielversprechende Kandidaten für Hochgeschwindigkeitsbauelemente [29], qubit-Anwendungen [30] oder eben doch zur Schließung des *green-gaps* [31–33] und Quantenstruktur-Anwendungen [34–36]. Hierfür sind unter anderem erhebliche Verbesserungen im Wachstum und damit in der Kristallqualität der kubischen Materialien verantwortlich [32, 37, 38]. Als Beispiel kann die Verwendung von kubischem Siliciumcarbid (3C-SiC) als Substrat genannt werden. Das Ersetzen des vorher verwendeten Galliumarsenids (GaAs) oder Siliziums (Si) durch 3C-SiC bringt den Vorteil, dass die Gitterfehlpassung von zb-GaN auf einem 3C-SiC-Substrat deutlich geringer ausfällt als auf einem GaAs-Substrat [39, 40].

Viele technische Anwendungen benötigen zudem dotiertes Material [41, 42]. Das Einbringen von Fremdatomen zur Generierung von freien Elektronen oder Elektronenfehlstellen (Löcher) erhöht auf der einen Seite zwar die Leitfähigkeit des Materials, kann jedoch auch erheblichen Einfluss auf die optischen Eigenschaften nehmen. Durch Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander

der sowie mit dem Kristallgitter kann die energetische Bandstruktur des Materials verändert werden. Gleichzeitig werden die jeweiligen Bänder mit den entsprechenden Ladungsträgern gefüllt, wodurch bestimmte optische Übergänge nicht mehr möglich sind. In zb-GaN konnten durch die Nutzung von Germanium (Ge) freie Ladungsträgerkonzentrationen von über 10^{20} cm^{-3} erreicht werden [43, 44]. In so stark n -dotiertem Material wird die Fermi-Energie hoch in das Leitungsband geschoben, was zu einer Veränderung der Übergangsenergie zwischen Leitungs- und Valenzband führt. Das Verständnis über derartige Vielteilcheneffekte ist folglich signifikant für die Entwicklung entsprechender Anwendungen. Damit einhergehend ist die Kenntnis über die Bandstruktur des Materials essentiell, da beispielsweise eine Nichtparabolizität des Leitungsbandes zu unterschiedlichen Verschiebungen der Absorptionskante führen kann [45, 46].

Die optischen Eigenschaften von Materialien werden durch die Dielektrische Funktion (DF) beschrieben. Aus der DF kann man folglich auch auf diverse Bandstruktur-Parameter, wie die fundamentale Bandlücke, schließen. Zur Bestimmung der DF bietet sich die Spektroskopische Ellipsometrie (SE) an. Hierbei handelt es sich um ein kontakt- und zerstörungsfreies optisches Untersuchungsverfahren, welches prinzipiell die Polarisationsänderung von reflektiertem Licht analysiert. Zudem wird der SE eine hohe Genauigkeit zugesprochen, was sie auch für die Untersuchung dünner Schichten prädestiniert.

Der Trend moderner Technologien verläuft zu immer leistungsfähigeren und komplexeren Systemen. Dies wird durch immer schneller reagierende elektrische oder optische Bauelemente erreicht. Für die Entwicklung und Verwendung solcher Anwendungen wie optische Hochgeschwindigkeitsschalter [47,48], transparente Elektroniken [49,50] oder Femtosekundenlaser [51] ist das Verstehen und Kontrollieren von sehr schnell ablaufenden Prozessen in Halbleitermaterialien eine grundlegende Notwendigkeit [52]. Relaxation und Rekombination von angeregten Ladungsträgern in einem Material sind hier von besonderem Interesse. Um diese Prozesse untersuchen zu können werden entsprechende Untersuchungsmethoden benötigt. Hierfür hat sich in den letzten Jahren eine Spezialisierung der SE entwickelt, welche zeitaufgelöste Messungen nach einer Hochenergieanregung ermöglicht [53–57]. Diese zeitaufgelöste Spektroskopische Ellipsometrie (engl.: *time-resolved spectroscopic ellipsometry*, trSE) kann, mithilfe eines *Pump-Probe*

(dt.: Pumpen/Anregen und Untersuchen/Messen) Verfahrens, den Einfluss solcher Prozesse wie Absorption oder Rekombination auf die DF eines Materials im Femtosekundenbereich genau beobachten und analysieren.

Im Laufe dieser Arbeit werden das technisch relevante zb-GaN und sein ternärer Verwandter zb-AlGaN durch verschiedene Untersuchungsmethoden im infraroten, sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich charakterisiert. Dabei werden die optischen Eigenschaften, insbesondere die DF, bestimmt und mathematisch modelliert. Zudem wird ein neuartiger Ansatz zur Analyse von Messdaten motiviert, die durch trSE-Untersuchungen aufgenommen wurden.

2 Gruppe III-Nitride

Zu den bekanntesten Nitriden zählen InN, GaN und AlN, jedoch gewinnt auch Bornitrid (BN) durch verschiedene Anwendungen an Interesse [58,59]. Dieses wird für diese Arbeit jedoch nicht berücksichtigt. Die thermodynamisch stabile Kristallform der Gruppe III-Nitride, im Gegensatz zu den Arseniden oder Phosphiden, ist die hexagonale Wurtzit-Struktur. Auf der anderen Seite können Nitride auch in der metastabilen kubischen Zinkblende-Struktur kristallisieren. Die Kristallstrukturen von zb-GaN und wurtzit GaN (wz-GaN) sind schematisch in Abb. 2 dargestellt. Unter sehr hohen Drücken ist es ebenfalls möglich, dass die Gruppe III-Nitride in der Kochsalz-Struktur kristallisieren.

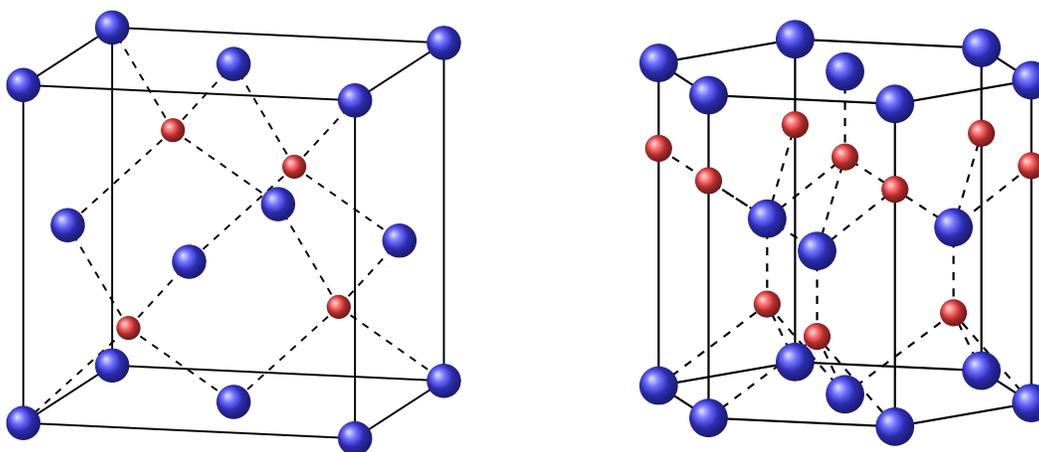


Abbildung 2: Vergleich der Kristallstrukturen von zinkblende (links) und wurtzit (rechts) GaN (Ga: blau, N: rot).

Die kubische Zinkblende-Struktur folgt der Diamantstruktur mit zwei kubisch-flächenzentrierten Untergittern, welche um ein Viertel der Raumdiagonalen verschoben sind. Anders als beim Diamant ist jedoch jedes Atom einer Atomsorte (Ga oder N) von vier gleich weit entfernten Atomen der anderen Sorte umgeben. Durch die kubische T_d^2 -Symmetrie ($F\bar{4}3m$) der Zinkblende-Struktur resultieren Kristalle, die keine Polarisationsfelder in (001)-Orientierung aufweisen [60]. Grundlegende Kristalleigenschaften der kubischen Nitride sind in Tab. 1 zusammengefasst.

Tabelle 1: Gitterparameter a , fundamentale direkte Bandlücke E_G , *split-off*-Energie der Valenzbänder Δ_{so} , effektive Elektronenmasse am Γ -Punkt der Brillouin-Zone $m_0^*(\Gamma)$ und statische Dielektrizitätskonstante ϵ_s der kubischen Nitride [5, 20–22, 61, 62].

	InN	GaN	AlN
a (Å)	5.0	4.5	4.4
E_G (eV)	0.60	3.23	5.99
Δ_{so} (meV)	5	17	19
$m_0^*(\Gamma)$ (m_e)	0.05	0.19	0.31
ϵ_s	12.3	9.44	8.07

Aus der Kristallstruktur kann man auf die sogenannte Brillouin-Zone (BZ) schließen. Diese ist die Wigner-Seitz-Zelle des reziproken Gitters des Kristalls. In der BZ können ausgezeichnete Punkte markiert werden, wie das Zonen-Zentrum als Γ -Punkt oder der Schnittpunkt der Raumdiagonale mit dem Rand der BZ als L-Punkt. Diese Punkte dienen zudem als ausgezeichnete Punkte der Bandstruktur, siehe Kap. 4. Die BZ beider Kristallstrukturen ist in Abb. 3 zu sehen.

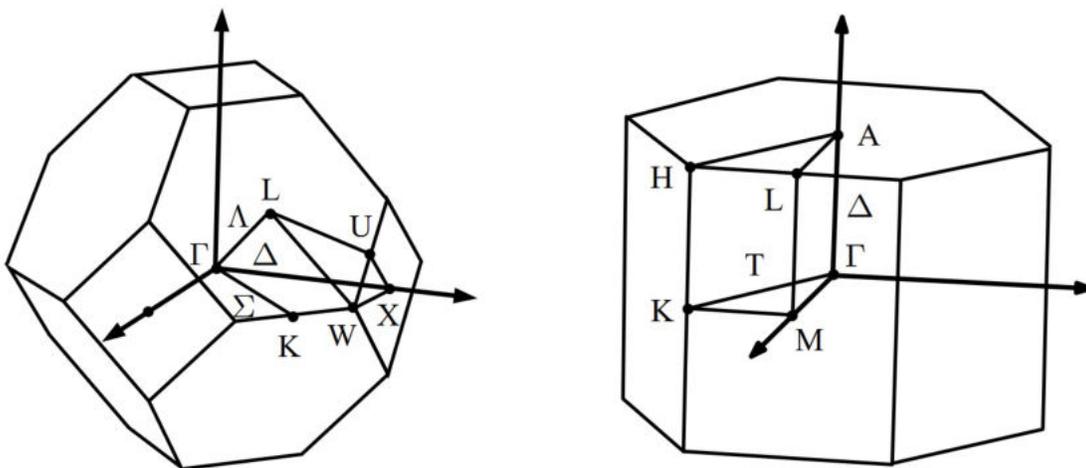


Abbildung 3: Vergleich der Brillouin-Zone von zinkblende (links) und wurtzit (rechts) GaN sowie Benennung von ausgezeichneten Punkten [63]. Der Γ -Punkt ist für beide Fälle das Zentrum der Brillouin-Zone.

2.1 Probeneigenschaften

Sämtliche in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden an der Universität Paderborn hergestellt. Hierfür wurde ein 3C-SiC Substrat, bestehend aus 500 μm Si in (001)-Orientierung und 10 μm 3C-SiC, als Grundlage verwendet. Auf dieses wurde durch Plasma-unterstützte Molekularstrahlepitaxie (engl.: *plasma-assisted molecular beam epitaxy*, PA-MBE) die jeweils zu untersuchenden Schichten aufgetragen. Das Schichtsystem der Proben ist am Beispiel der unbeabsichtigt dotierten (engl.: *unintentionally doped*, uid) Referenzprobe GND2518 schematisch in Abb. 4 dargestellt. Alle anderen Proben besitzen den gleichen prinzipiellen Aufbau, jedoch mit unterschiedlichen obersten Schichten. So haben die zb-GaN-Probe alle unterschiedliche Schichtdicken und Dotierkonzentrationen, während die zb-AlGaN-Proben zusätzlich in ihrem Al-Gehalt variiert werden. Das Wachstum von zb-GaN erfolgte in zwei Schritten: Zunächst wurde zb-GaN auf dem 3C-SiC angewachsen. Laut RHEED (engl.: *reflection high-energy electron diffraction*) erfolgte die Nukleation über das Wachstum von Inseln [64]. Anschließend konnte die zb-GaN-Schicht durchgehend aufgewachsen werden.

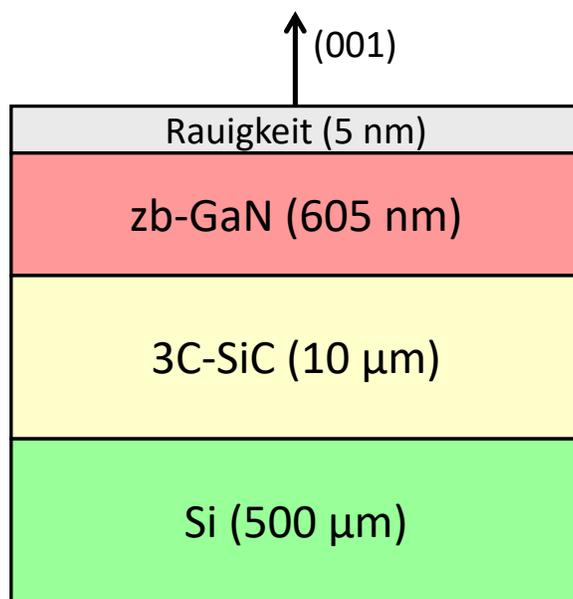


Abbildung 4: Schichtaufbau der Probe GND2518. Durch die (001)-Orientierung des 3C-SiC/Si-Substrates weist auch die zinkblende GaN-Schicht diese Kristallrichtung auf. Sämtliche anderen Proben aus Tab. 2 und 3 besitzen das gleiche Schichtsystem, jedoch mit unterschiedlichen GaN-Schichtdicken und Rauigkeiten, sowie eventueller Dotierung mit Ge oder Si. Die Rauigkeit bezieht sich auf die Auswertung mittels Spektroskopischer Ellipsometrie (siehe Kap. 6.1.1).

Bis auf die uid Referenzprobe sind sämtliche zb-GaN-Proben entweder mit Ge oder Si n -dotiert. Die unterschiedlichen Dotierkonzentrationen wurden durch Variation der Temperatur der verwendeten Effusionszellen erreicht und ermöglichen die Untersuchung von ladungsträgerabhängigen optischen Eigenschaften. Nach dem Wachstum wurden die Proben unter anderem durch Hall-Messungen in der Van-der-Pauw-Geometrie, Sekundärionen-Massenspektrometrie und anderen Untersuchungsmethoden charakterisiert. Diese Ergebnisse zusammen mit einer detaillierten Beschreibung des Wachstums sind in [43,44,64] zu finden. Eine Auflistung der untersuchten zb-GaN-Proben sowie einigen Parametern ist in Tab. 2 zusammengetragen.

Tabelle 2: Auflistung der zinkblende GaN-Proben mit vom Hersteller angegebenen Effusionszellen-Temperaturen $T_{\text{Ge,Si}}$, GaN-Schichtdicke gemessen mit Sekundärionen-Massenspektroskopie (SIMS) d_{SIMS} oder Reflexionsmessungen d_{refl} sowie aus Hall-Untersuchung bestimmte Ladungsträgerkonzentration n_{Hall} und Beweglichkeit μ_{Hall} .

Probe	Dotant	$T_{\text{Ge,Si}}$ (°C)	d_{SIMS} (nm)	d_{refl} (nm)	n_{Hall} (cm^{-3})	μ_{Hall} (cm^2/Vs)
GND2524	Ge	1000	365	363	3.7×10^{20}	63
GND2523	Ge	900	437	460	8.7×10^{19}	90
GND2522	Ge	800	617	543	2.7×10^{18}	105
GND2518	–	–	612	612	–	–
GND2512	Si	1100	–	564	3.8×10^{19}	74
GND2511	Si	1050	–	611	7.6×10^{18}	77
GND2510	Si	1000	–	647	1.7×10^{18}	84

Die AlGaIn-Proben wurden auf eine, zu den zb-GaN-Proben, sehr ähnliche Weise hergestellt. Die wenigen Unterschiede bestehen darin, dass die AlGaIn-Proben ausschließlich mit Ge dotiert sind und verschiedene Proben mit unterschiedlichem Al-Gehalt x hergestellt wurden. Es stehen drei unterschiedliche AlGaIn-Probenserien (A, B und C) zur Verfügung. In Probenserie A wird vor allem der Al-Gehalt stark variiert, um dessen Effekt auf die Bandlücke und weitere Materialeigenschaften zu untersuchen. Die Serien B und C weisen hingegen einen etwa konstanten Al-Gehalt auf, während verschiedene Dotierkonzentrationen eingestellt sind. Somit wird die Untersuchung der ladungsträgerabhängigen Effekte auch für AlGaIn gewährleistet. Alle Proben sind

in Tab. 3 aufgeführt. Zusätzliche Informationen sind in [65] zu finden.

Tabelle 3: Auflistung der zinkblende AlGaIn-Probenserien A, B und C mit vom Hersteller durch hochauflösende Röntgenbrechung (engl.: *high-resolution x-ray diffraction*, HRXRD) ($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$) bestimmten Al-Konzentrationen x_{HRXRD} , AlGaIn-Schichtdicke aus Reflexionsmessungen d_{refl} und Ge-Effusionszellen-Temperatur T_{Ge} . Sämtliche Proben der Serie A wurden bereits in einer früheren Arbeit [66] charakterisiert und dienen hier lediglich als Ergänzung.

Probenname	x (HRXRD)	d_{refl} (nm)	Dotierung	T_{Ge} (°C)
A-GNF2701	0.000	506	–	–
A-GNF2692	0.000	427	Ge	800
A-GNF2703	0.088	484	–	–
A-GNF2706	0.103	480	Ge	800
A-GNF2707	0.232	487	–	–
A-GNF2708	0.263	456	Ge	800
A-GNF2709	0.365	430	–	–
A-GNF2710	0.376	336	Ge	800
A-GNF2712	0.458	200	–	–
A-GNF2714	0.482	160	Ge	800
A-GNF2716	0.585	150	–	–
A-GNF2720	0.621	140	Ge	800
B-GND2934	0.230	455	Ge	700
B-GND2936	0.260	437	Ge	800
B-GND2939	0.280	409	Ge	850
B-GND2940	0.260	438	Ge	900
B-GND2964	0.280	475	Ge	950
B-GND2942	0.220	467	Ge	1000
C-ANL3196	0.410	-	Ge	700
C-ANL3197	0.440	-	Ge	800
C-ANL3198	0.420	-	Ge	850
C-ANL3199	0.380	-	Ge	900
C-ANL3200	0.440	-	Ge	950
C-ANL3201	0.360	-	Ge	1000

3 Dielektrische Funktion

Die optischen Eigenschaften eines Materials werden durch die DF beschrieben. Die DF gibt die lineare Antwort eines Materials auf eine einfallende elektromagnetische (EM) Welle wieder. Im Allgemeinen ist die kreisfrequenz- (ω) bzw. energie- ($\hbar\omega$) abhängige DF definiert über die Dielektrische Verschiebung \vec{D} , bzw. die elektrische Feldstärke \vec{E} und die Gesamtpolarisation \vec{P}_{ges} :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \bar{\varepsilon} \vec{E} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}_{\text{ges}}. \quad (3.1)$$

Da in dieser Arbeit ausschließlich Gruppe III-Nitride betrachtet werden, kann der allgemeine dielektrische Tensor vereinfacht werden. Für das bekannte hexagonale GaN weist er folgende Gestalt auf:

$$\bar{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{\parallel} \end{pmatrix}, \quad (3.2)$$

wobei ε_{\perp} und ε_{\parallel} die ordentliche bzw. außerordentliche DF darstellen, die senkrecht bzw. parallel zur c -Achse des Materials stehen. Da kubisches GaN isotrop und damit richtungsunabhängig ist, sind die Elemente der Hauptdiagonalen hier identisch. Damit lässt sich die DF in der vereinfachten Form über den Realteil ε_1 und den Imaginärteil ε_2 aufschreiben:

$$\varepsilon(\hbar\omega) = \varepsilon_1(\hbar\omega) + i\varepsilon_2(\hbar\omega). \quad (3.3)$$

Der Real- und Imaginärteil der DF stehen über die Kramers-Kronig-Relation miteinander in Verbindung:

$$\begin{aligned} \varepsilon_1(\omega) - 1 &= \frac{2}{\pi} \cdot \mathcal{P} \int_0^{\infty} \frac{\omega' \cdot \varepsilon_2(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \\ \varepsilon_2(\omega) &= -\frac{2\omega}{\pi} \cdot \mathcal{P} \int_0^{\infty} \frac{\varepsilon_1(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega'. \end{aligned} \quad (3.4)$$

Eine alternative Darstellung der optischen Eigenschaften kann über den komplexen Brechungsindex \tilde{N} erfolgen. Hierbei entspricht \tilde{n} dem realen Brechungsindex und \tilde{k} dem Extinktionskoeffizienten:

$$\tilde{N}(\omega) = \tilde{n}(\hbar\omega) + i\tilde{k}(\hbar\omega). \quad (3.5)$$

Die DF und der komplexe Brechungsindex sind über $\varepsilon(\hbar\omega) = \tilde{N}^2(\omega)$ miteinander verbunden. Die Real- und Imaginärteile lassen sich also ineinander umrechnen. Zusätzlich ergibt sich der Absorptionskoeffizient α mittels der Vakuumlichtgeschwindigkeit c_0 :

$$\begin{aligned} \tilde{n}^2 &= \frac{1}{2} \left(\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} + \varepsilon_1 \right), \\ \tilde{k}^2 &= \frac{1}{2} \left(\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} - \varepsilon_1 \right), \\ \alpha &= \frac{\omega \cdot \varepsilon_2}{\tilde{n} \cdot c_0}. \end{aligned} \quad (3.6)$$

Generell haben also sowohl ε_1 als auch ε_2 einen Einfluss auf die Absorption und Brechung (Dispersion) eines Materials. Dennoch kann man vereinfacht den Imaginärteil der DF vor allem mit der Absorption verknüpfen (für $\varepsilon_1 \approx \text{konst}$) und den Realteil mit der Dispersion (für $\varepsilon_2 \approx 0$).

3.1 Phononen und Plasmonen

Werden Gitteratome der Kristallstruktur periodisch gegeneinander verschoben, so nennt man diese Gitterschwingungen Phononen. Man unterscheidet Phononen nach der Art der Schwingung in vier grundsätzliche Typen, die in Abb. 5 für eine lineare Kette mit 2-atomiger Basis schematisch dargestellt sind. Für akustische Phononen schwingen Gitteratome als kohärenter Zusammenhang, ähnlich zu Schallwellen in Luft (daher akustisch). Bei Optische Phononen hingegen schwingen die Gitteratome diskret zueinander. Zusätzlich erfolgt die Unterscheidung in transversale und longitudinale Schwingung entsprechend der Ausbreitungsrichtung der Schwingung. Folglich werden transversal akustische (TA), longitudinal akustische (LA), transversal optische (TO) und longitudinal optische (LO) Phononen definiert.

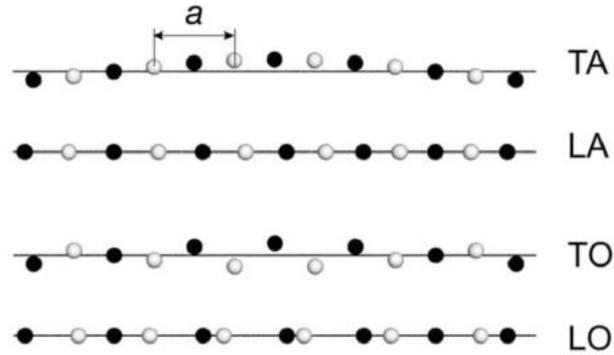


Abbildung 5: Schematische Darstellung von transversalen (T-) bzw. longitudinalen (L-) akustischen (-A) und optischen (-O) Phononen. Bearbeitet nach [67].

Abhängig vom Material bzw. der Kristallstruktur kann es nun mehrere Phononen eines Typs geben. In hexagonalen Systemen gibt es beispielsweise mehrere TO-Moden während in der hier betrachteten Zinkblende-Struktur nur eine TO-Mode vorkommt. Die Resonanzfrequenz der entsprechenden Phononen sind \vec{k} -abhängig. Sie werden in der Phonon-Dispersion oder Phonon-Zustandsdichte (engl.: *phonon density of states*, PDOS) für zb-GaN in Abb. 6 dargestellt.

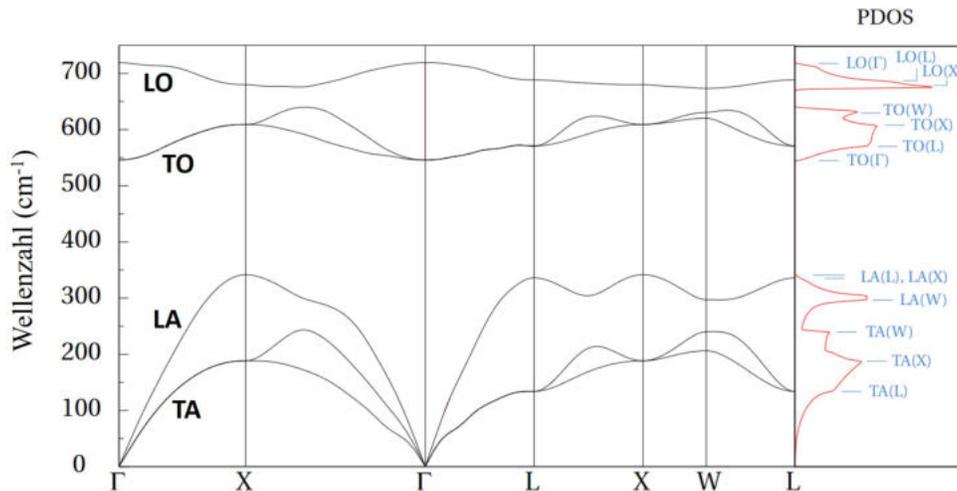


Abbildung 6: Theoretisch berechnete Phonon-Dispersion (links) und -Zustandsdichte (rechts, PDOS) von zinkblende GaN. Bearbeitet nach [68].

Verändern Phononen das Dipolmoment, so spricht man von infrarot-aktiven Phononen. Diese können mithilfe von EM-Wellen im infraroten Spektralbereich angeregt und untersucht werden. Phononen, die durch Raman-Streuung (siehe Kap. 6.3) angeregt werden, werden Raman-aktiv genannt. Es ist möglich, dass ein Phonon sowohl infrarot- als auch Raman-aktiv ist.

Um den Einfluss der Phononen auf die optischen Eigenschaften und damit die DF zu bestimmen, wird folgende Differentialgleichung (DGL) zur Beschreibung der entstehenden Schwingung betrachtet:

$$m \frac{d^2 \vec{x}(t)}{dt^2} + m\gamma_{\text{TO}} \frac{d\vec{x}(t)}{dt} + m\omega_{\text{TO}}^2 \vec{x}(t) = e\vec{E}(t). \quad (3.7)$$

Eine einfallende Lichtwelle \vec{E} regt eine Gitterschwingung der Resonanzfrequenz ω_{TO} und der Verbreiterung γ_{TO} an. Da Licht eine Transversalwelle ist, gehen wir davon aus, dass nur TO-Phononen angeregt werden können. Die Schwingungs-DGL kann mit dem Ansatz $x(t) = Ae^{i\omega t}$ gelöst werden zu:

$$-m\omega^2 \vec{x}(t) - im\gamma_{\text{TO}}\omega \vec{x}(t) + m\omega_{\text{TO}}^2 \vec{x}(t) = e\vec{E}(t) \quad (3.8)$$

$$\Rightarrow \vec{x}(t) = \frac{e\vec{E}(t)}{m(\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2 - i\gamma_{\text{TO}}\omega)}. \quad (3.9)$$

Um die DF aus Gl. (3.1) zu erhalten, wird nun die Polarisation $\vec{P} = \chi\varepsilon_0\vec{E}(t) = Q\vec{x}(t) = Ne\vec{x}(t)$ bestimmt. Die Gesamtpolarisation \vec{P}_{ges} ergibt sich aus der Hintergrundpolarisation \vec{P}_{HG} und der durch das Phonon erzeugten Polarisation \vec{P} :

$$\vec{P}_{\text{ges}} = \vec{P}_{\text{HG}} + \vec{P} = \underbrace{\chi_{\infty}\varepsilon_0\vec{E}(t)}_{\text{Hintergrund}} + \frac{Ne^2\vec{E}(t)}{m} \cdot \frac{1}{\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2 - i\gamma_{\text{TO}}\omega}. \quad (3.10)$$

Mit dem Wissen, dass $\vec{P}_{\text{ges}} = (\varepsilon - 1)\varepsilon_0\vec{E}(t)$, kann die DF bestimmt werden zu:

$$\varepsilon(\omega) = \chi_{\infty} + 1 + \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m} \cdot \frac{1}{\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2 - i\gamma_{\text{TO}}\omega}. \quad (3.11)$$

Es werden nun noch zwei Abkürzungen eingeführt. Zum einen die statische Dielektrizitätskonstante ε_S , zum anderen die Amplitude S :

$$\varepsilon_S = \varepsilon(0) = \chi_{\infty} + 1 + \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m} \cdot \frac{1}{\omega_{\text{TO}}^2} = \varepsilon_{\infty} + \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m} \cdot \frac{1}{\omega_{\text{TO}}^2}, \quad (3.12)$$

$$\frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m} = (\varepsilon_S - \varepsilon_\infty) \cdot \omega_{\text{TO}}^2 = S \omega_{\text{TO}}^2 . \quad (3.13)$$

Hierbei bezeichnet ε_∞ den Beitrag höherenergetischer Übergänge zum Realteil der DF. Zusammengefasst kann der Beitrag eines Phonons zur DF also als Lorentz-Oszillator formuliert werden:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{S \omega_{\text{TO}}^2}{\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2 - i\gamma_{\text{TO}}\omega} . \quad (3.14)$$

Neben Phononen reagieren auch freie Ladungsträger auf eine optische Anregung im infraroten Spektralbereich. Man bezeichnet diesen Beitrag als Plasmon. Die mathematische Beschreibung des Plasmon-Beitrags erfolgt analog zu den Phononen, wobei die Schwingungs-DGL jedoch keinen Rückstellterm enthält [69], da freie Ladungsträger im Gegensatz zu Kristallatomen nicht gebunden sind:

$$m_{\text{opt}}^* \frac{d^2 \vec{x}(t)}{dt^2} + m_{\text{opt}}^* \gamma_P \frac{d\vec{x}(t)}{dt} = e \vec{E}(t) . \quad (3.15)$$

Hier bezeichnet m_{opt}^* die optische effektive Masse der freien Ladungsträger, welche in Kap. 4.3 genauer diskutiert wird. Im einfachsten Fall entspricht die optische Masse der effektiven Masse der freien Ladungsträger in ihren jeweiligen Bändern. Auch die DGL in Gl. (3.15) kann über den oben verwendeten Ansatz gelöst werden zu:

$$\vec{x}(t) = -\frac{e \vec{E}(t)}{m_{\text{opt}}^* (\omega^2 + i\gamma_P \omega)} , \quad (3.16)$$

woraus die durch Plasmonen verursachte Polarisation \vec{P}_P folgt:

$$\vec{P}_P = \varepsilon_0 \chi_P \vec{E}(t) = ne \vec{x}(t) = -\frac{e^2 n}{m_{\text{opt}}^*} \cdot \frac{\vec{E}(t)}{\omega^2 + i\gamma_P \omega} . \quad (3.17)$$

Damit ergibt sich für die Gesamtpolarisation nun $\vec{P}_{\text{ges}} = \vec{P}_{\text{HG}} + \vec{P} + \vec{P}_P = (\varepsilon - 1) \varepsilon_0 \vec{E}(t)$. Die DF folgt demnach zu:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{S\omega_{\text{TO}}^2}{\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2 - i\gamma_{\text{TO}}\omega} - \frac{e^2 n}{\varepsilon_0 m_{\text{opt}}^*} \cdot \frac{1}{\omega^2 + i\gamma_{\text{P}}\omega}. \quad (3.18)$$

Schlussendlich wird noch eine weitere Abkürzung eingeführt, welche die Plasmafrequenz ω_{P} definiert als:

$$\omega_{\text{P}}^2 = \frac{e^2 n}{\varepsilon_0 m_{\text{opt}}^*}. \quad (3.19)$$

Um einen allgemeineren Fall zu beschreiben, für Systeme die mehr als ein TO-Phonon aufweisen, kann die DF als Summe über u -viele Phonon-Beiträge im sogenannten Summenansatz geschrieben werden als:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \sum_{l=1}^u \frac{S_l \omega_{\text{TO},l}^2}{\omega_{\text{TO},l}^2 - \omega^2 - i\gamma_{\text{TO},l}\omega} - \frac{\omega_{\text{P}}^2}{\omega^2 + i\gamma_{\text{P}}\omega}, \quad (l, u \in \mathbb{N}). \quad (3.20)$$

Die Werte für den Beitrag höherer Übergänge und die Resonanzfrequenz des TO-Phonons konnten bereits früher für zb-GaN ermittelt werden zu $\varepsilon_\infty = 5.31$ [22] und $\omega_{\text{TO}} = 552 \text{ cm}^{-1}$ [68, 70–72]. Für den Fall eines einzelnen TO-Phonons ist der Verlauf der DF in Abb. 7 dargestellt. Die typische Linienform des Lorentz-Oszillators für das Phonon sowie das Ansteigen bzw. Abfallen des Real- bzw. Imaginärteils für das Plasmon sind deutlich zu erkennen.

Obwohl Gl. (3.14) mathematisch nur TO-Phononen erfasst, ist es dennoch möglich auf LO-Phononen zu schließen. Für den Spezialfall, dass $\gamma_{\text{TO}} = 0$, folgt für die DF:

$$\varepsilon(\omega = \omega_{\text{LO}}) = 0. \quad (3.21)$$

Demnach entspricht die Nullstelle des Realteils der DF der LO-Resonanzfrequenz. Sollte es zudem den Betrag freier Ladungsträger geben, spricht man hingegen von gekoppelten Longitudinal-Phonon-Plasmon (LPP) Moden. Diese werden in Kap. 6.3 detaillierter beschrieben. TO- und LO-Resonanzfrequenzen stehen über die Lyddane-Sachs-Teller-Beziehung mit der statischen und Hintergrund-Dielektrizitätszahl in Verbindung:

$$\frac{\epsilon_s}{\epsilon_\infty} = \frac{\omega_{LO}^2}{\omega_{TO}^2}. \quad (3.22)$$

Alternativ zum Summenansatz in Gl. (3.20) kann man einen Produktansatz aufstellen als:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty \cdot \prod_{l=1}^m \frac{\omega_{LO,l}^2 - \omega^2 - i\gamma_{LO,l}\omega}{\omega_{TO,l}^2 - \omega^2 - i\gamma_{TO,l}\omega}. \quad (3.23)$$

In dieser Arbeit wird jedoch ausschließlich der Summenansatz aus Gl. (3.20) verwendet. Dies liegt zum einen an der geringeren Anzahl freier Parameter im Vergleich zum Produktansatz. Zum anderen können im hier durchgeführten Experiment der SE (Anregung durch Licht, welches eine Transversalwelle ist) keine LO-Phononen angeregt werden.

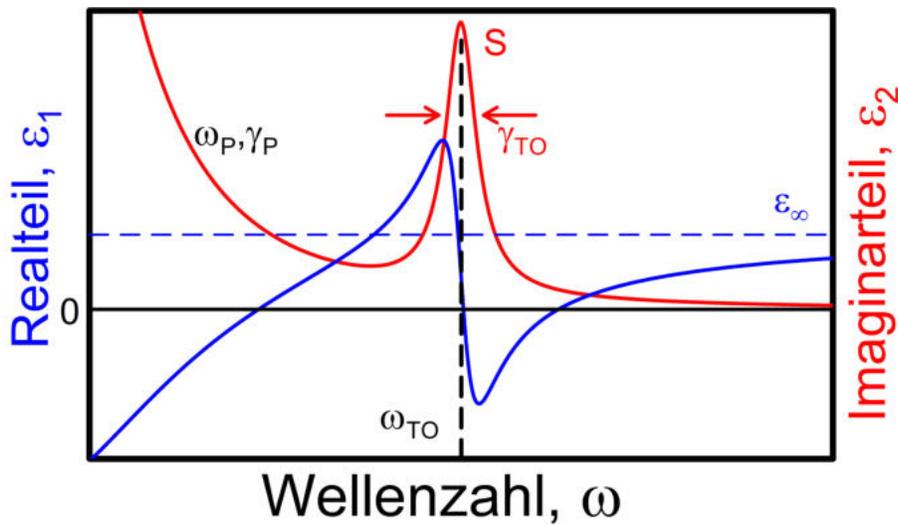


Abbildung 7: Schematische Darstellung des Phonon- und des Plasmon-Beitrags zur Dielektrischen Funktion $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$. Der Phonon-Beitrag wird durch die Amplitude S , die Resonanzfrequenz ω_{TO} und die Verbreiterung γ_{TO} charakterisiert, während der Plasmon-Beitrag nur über die Plasmafrequenz ω_P und -verbreiterung γ_P beschrieben wird. Der Hochenergiebeitrag zu ϵ_1 wird durch ϵ_∞ dargestellt.

3.2 Elliott-Modell nahe der Bandkante

Während die Absorption im infraroten Spektralbereich durch Phononen und Plasmonen bestimmt wird, wird der anschließende sichtbare bzw. ultraviolette Spektralbereich durch Band-Band-Übergänge von Elektronen zwischen dem Leitungsband und den Valenzbändern dominiert. Wird ein Elektron durch Absorption ins Leitungsband gehoben, hinterlässt es ein Loch im Valenzband. Das so entstandene Elektron-Loch-Paar weist Coulomb-Wechselwirkung auf und wird als Exziton bezeichnet. Elektron und Loch sind hier, ähnlich zum Elektron und Proton im Wasserstoffatom, aneinander gebunden. Man unterscheidet zwischen Frenkel-Exzitonen, bei denen die Ausdehnung des Exzitons kleiner als die Gitterkonstante des Systems ist, und Wannier-Mott-Exzitonen, die schwächer gebundene Elektron-Loch-Paare beschreiben. Die Begründung hierfür liegt darin, dass das Wannier-Mott-Exziton über mehrere Gitterkonstanten ausgedehnt ist und somit die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Loch durch die Valenzelektronen abgeschirmt wird. In dieser Arbeit wird ausschließlich der Effekt der Wannier-Mott-Exzitonen diskutiert. Der Einfluss von Wannier-Exzitonen auf die Absorptionseigenschaften und damit auf ε_2 wurde von Elliott mathematisch beschrieben [73]. Die zu lösende Schrödingergleichung lautet:

$$\left[E_G - \frac{\hbar^2}{2m_e^*} \Delta_{\vec{R}_e} - \frac{\hbar^2}{2m_h^*} \Delta_{\vec{R}_h} - \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_S |\vec{R}_e - \vec{R}_h|} \right] \cdot \Psi'(\vec{R}_e, \vec{R}_h) = E \cdot \Psi'(\vec{R}_e, \vec{R}_h). \quad (3.24)$$

Hierbei entsprechen \vec{R}_e und \vec{R}_h bzw. m_e^* und m_h^* den Ortsvektoren bzw. effektiven Massen des Elektrons und Lochs. Um das Problem zu vereinfachen, werden Schwerpunktskoordinaten $\vec{R} = \frac{m_e^* \vec{R}_e + m_h^* \vec{R}_h}{m_e^* + m_h^*}$, Relativkoordinaten $\vec{r} = \vec{R}_e - \vec{R}_h$ und reduzierte Masse $\mu = \frac{m_e^* m_h^*}{m_e^* + m_h^*}$ eingeführt. Die Wellenfunktion Ψ' lässt sich somit teilweise als Bewegung des Schwerpunkts durch Ort und Impuls \vec{K} ausdrücken:

$$\Psi'(\vec{r}, \vec{R}) = e^{i\vec{K}\vec{R}} \cdot \Phi'(\vec{r}). \quad (3.25)$$

Für die Relativkoordinaten führt dies auf die Schrödingergleichung des bekannten Wasserstoff-Problems:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta_{\vec{r}} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_S |\vec{r}|} \right] \cdot \Phi'(\vec{r}) = E_r \cdot \Phi'(\vec{r}). \quad (3.26)$$

Unter Berücksichtigung der reduzierten effektiven Masse und der Abschirmung des Coulomb-Potentials können die Energieeigenwerte E_n des Elektron-Loch-Paars im Zustand n bestimmt werden, die sowohl Kontinuums- als auch diskrete Zustände umfassen [74]:

$$E_n(\vec{K}) = E_G + \frac{\hbar^2 \vec{K}^2}{2(m_c^* + m_h^*)} - \frac{R_y^*}{n^2}. \quad (3.27)$$

Die effektive Rydberg-Energie $R_y^* = \frac{\mu e^4}{2(4\pi\epsilon_0\epsilon_S \hbar)^2}$ ist dabei materialabhängig. Die Energie des Exzitons für den Spezialfall von $n = 1$ wird als E_X bezeichnet. Im Halbleiter kann somit die Exziton-Bindungsenergie als $E_{bX} = E_G - E_X$ eingeführt werden. Befinden sich allerdings zusätzliche Ladungsträger n im Material, z. B. durch unbeabsichtigte Dotierung, so vermindert sich die Exziton-Bindungsenergie durch zusätzliche Abschirmung zu [75]:

$$E_{bX} = \frac{e^2}{8\pi\epsilon_0\epsilon_S a_{bX}^*} - \frac{3e^2 (3\pi^2 n)^{1/3}}{(4\pi)^2 \epsilon_0 \epsilon_S}. \quad (3.28)$$

Hierbei wird der effektive Bohr-Radius des Exzitons definiert zu:

$$a_{bX}^* = \frac{4\pi\epsilon_0\epsilon_S \hbar^2}{\mu e^2}. \quad (3.29)$$

Die Linienform des Imaginärteils der DF (ϵ_2) im bandkantennahen Bereich wird im Zuge der Elliott-Theorie als Summe von diskreten Exzitonen (ϵ_2^X) und dem Exzitonen-Kontinuum (ϵ_2^{Kont}) modelliert:

$$\epsilon_2 = \epsilon_2^X + \epsilon_2^{\text{Kont}}. \quad (3.30)$$

Im idealisierten Fall (0 K, perfekter Kristall) wird ein diskretes Exziton als Dirac-Funktion und das Exziton-Kontinuum als Stufenfunktion modelliert. Für den Realfall von Raumtemperatur und nicht idealen Kristallen kommt es (durch Temperatur- und statistische Effekte) zu einer Verbreiterung der Linienformen. Diese könnte als Lorentz-Funktion aufgrund der endlichen Lebenszeit der Exzitonen beschrieben werden. Die Verbreiterung des tatsächlich gemessenen Signals ist jedoch noch größer, weshalb diskrete Exzitonen in dieser Arbeit als Gauß-verbreitertes Signal an der Position E_X beschrieben werden:

$$\varepsilon_2^X = \frac{C_X}{\gamma_X E^2} \cdot \exp\left(-\frac{(E - E_G + E_{bX})^2}{\gamma_X^2}\right). \quad (3.31)$$

Die Amplitude C_X und Verbreiterung γ_X sind proben- und temperaturabhängig. Das Exziton-Kontinuum wird hingegen als Fehlerfunktions (engl.: *error-function*) -artige Linienform beschrieben, die den fundamentalen Band-Band-Übergang repräsentieren soll:

$$\varepsilon_2^{\text{Kont}} = \frac{C_{\text{Kont}}}{E^2} \cdot \frac{1 + \operatorname{erf}\left(\frac{E - E_G}{\gamma_{\text{Kont}}}\right)}{1 - \exp\left(-2\pi \sqrt{\left|\frac{E_{bX}}{E - E_G}\right|}\right)}. \quad (3.32)$$

Amplitude und Verbreiterung werden hier ebenfalls als C_{Kont} bzw. γ_{Kont} bezeichnet.

4 Bandstruktur

Die elektronische Struktur von Halbleitern wird durch die Bandstruktur beschrieben. Sie gibt die Dispersion von Elektronen im Impuls- (\vec{k} -) Raum wieder, die durch das gitterperiodische Kristallpotential erzeugt wird. Aus der Bandstruktur lassen sich grundlegende Eigenschaften des Halbleiters, wie direkte oder indirekte Übergänge sowie die fundamentale Bandlücke des Materials ablesen. Die Bandstruktur von zb-GaN ist in Abb. 8 zusammen mit einer vergrößerten Darstellung der Valenzbänder am Γ -Punkt der BZ abgebildet. Materialien mit Zinkblende-Struktur weisen am Γ -Punkt ein isotropes Leitungsband und drei Valenzbänder auf. Das energetisch oberste Valenzband wird durch schwere Löcher (engl.: *heavy holes*, hh) mit der effektiven Lochmasse m_{hh}^* repräsentiert. Das darunter liegende Band, modelliert mit sogenannten leichten Löchern (engl.: *light holes*, lh, m_{lh}^*), ist mit den hh-Band am Γ -Punkt entartet. Das unterste Band ist durch Spin-Bahn-Kopplung (engl.: *spin-orbit coupling*) von den anderen Valenzbändern abgespalten (engl.: *split-off*, so, m_{so}^*) [28]. Die gezeigte Bandstruktur wurde durch *empirical pseudopotential method* (EPM) berechnet. Hierbei wurde leider auf die Berücksichtigung des so-Band verzichtet. Stattdessen wurden die Valenzbänder in der Nähe des Γ -Punktes separat über Dichtefunktionaltheorie basierend auf Heyd–Scuseria–Ernzerhof und *spin-orbit coupling* (HSE+SOC) ermittelt. Das hh-Band spaltet zusätzlich in L-Richtung durch *crystal-field splitting* auf.

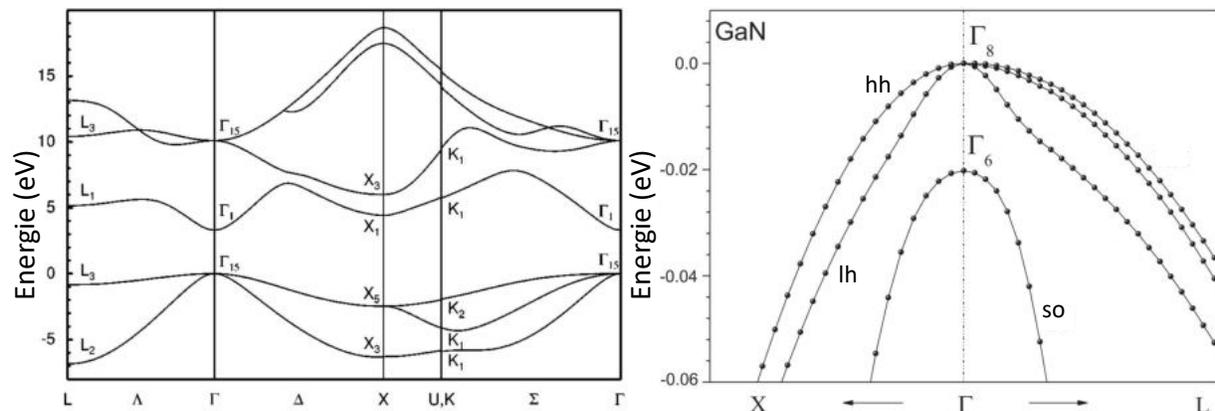


Abbildung 8: Die durch EPM berechnete Bandstruktur von zinkblende GaN (links), ohne Berücksichtigung des *split-off*-Bands. Bearbeitet nach [76]. Eine theoretische Berechnung durch HSE+SOC der drei tatsächlichen Valenzbänder (rechts) mit ≈ 20 meV *split-off*-Energie. Bearbeitet nach [61].

Für die in Kap. 6 beschriebenen optischen Experimente ist die Umgebung des Γ -Punktes von besonderer Bedeutung, da hier die fundamentalen Band-Band-Übergänge stattfinden. Theoretische Berechnungen [61, 62] liefern die in Tab. 4 aufgelisteten Bandparameter der vier beteiligten Bänder für zb-GaN und zb-AlN.

Tabelle 4: Auflistung der effektiven Massen von Elektronen am Γ -Punkt der Brillouin-Zone $m_0^*(\Gamma)$ [61, 62, 77] und Löchern der drei Valenzbänder (*heavy hole*: m_{hh} , *light hole*: m_{lh} und *split-off*: m_{so}^*) in verschiedenen Richtungen der Brillouin-Zone für zinkblende GaN (zb-GaN) und -AlN (zb-AlN) [61].

	E_G	$m_0^*(\Gamma)$	$m_{hh}^{\Gamma-X}$	$m_{hh}^{\Gamma-K}$	$m_{hh}^{\Gamma-L}$	$m_{lh}^{\Gamma-X}$	$m_{lh}^{\Gamma-K}$	$m_{lh}^{\Gamma-L}$	m_{so}^*
	(eV)	(m_e)	(m_e)	(m_e)	(m_e)	(m_e)	(m_e)	(m_e)	(m_e)
zb-GaN	3.23	0.19	0.83	1.59	1.95	0.28	0.25	0.23	0.34
zb-AlN	5.99	0.30	1.32	2.32	3.98	0.44	0.39	0.38	0.55

Die Bandlücke von AlGaN (E_G^{AlGaN}) kann durch Variation des Al-Gehalts x beliebig zwischen den Bandlücken von GaN (E_G^{GaN}) und AlN (E_G^{AlN}) eingestellt werden. Hierbei weist E_G^{AlGaN} jedoch keinen linearen Zusammenhang mit x auf, sondern einen quadratischen. Dieses sogenannte *band gap bowing* wird mathematisch über den *bowing*-Parameter b folgendermaßen beschrieben:

$$E_G^{\text{AlGaN}} = x \cdot E_G^{\text{AlN}} + (1 - x) \cdot E_G^{\text{GaN}} + x \cdot (x - 1) \cdot b . \quad (4.1)$$

Für zb-AlGaN konnte ein *bowing*-Parameter von $b = 0.85$ eV ermittelt werden [23, 78]. Da AlN ein indirekter Halbleiter ist, kommt es bei der Legierung von zb-GaN mit Al ab einem Al-Gehalt von $x \approx 0.71$ zu einem *direct-indirect band gap crossover* (dt.: Wechsel von direkten zu indirekten Bandlücken) [23].

4.1 Kane-Modell

Zur Modellierung der Bandstruktur in der Nähe des Γ -Punktes soll die Formulierung nach Kane [79] verwendet werden. Diese beruht auf der $k \cdot p$ Störungstheorie. Die nötigen Annahmen für die analytische Beschreibung umfassen eine direkte Bandlücke am Γ -Punkt, isotrope Bänder und daher skalare effektive Massen. Das zu betrachtende Leitungsband für Zinkblende-Materialien

erfüllt diese Annahmen. Grundlage für das Kane-Modell ist die Lösung folgender Schrödinger-Gleichung:

$$\left\{ \frac{\hat{p}^2}{2m_e} + V' + \left(\frac{\hbar^2}{m_e} \right) k \hat{p} + \left(\frac{\hbar}{4m_e^2 c_0^2} \right) [\nabla V \times \hat{p}] \sigma + \left(\frac{\hbar^2}{4m_e^2 c_0^2} \right) [\nabla V \times k] \sigma \right\} u_k(r) = E'_k u_k(r). \quad (4.2)$$

Hierbei sind u_k die gitterperiodische Funktion, \hat{p} der Impulsoperator, V' das Kristallpotential und σ ein Ausdruck für die Pauli-Matrizen. Außerdem soll c_0 der Vakuumlichtgeschwindigkeit und m_e der freien Elektronmasse (Ruhemasse des Elektrons) entsprechen. Die Gleichung soll gelöst werden über E_k , der Energie im Zustand mit der Wellenzahl k :

$$E'_k = E_k - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e}. \quad (4.3)$$

Die Wechselwirkung zwischen Leitungs- und Valenzband wird über die 8×8 -Matrix

$$I_{\text{WW}} = \begin{bmatrix} H & 0 \\ 0 & H \end{bmatrix} \quad (4.4)$$

mit

$$H = \begin{pmatrix} E_L & 0 & kP & 0 \\ 0 & E_V - \Delta_{\text{so}}/3 & \sqrt{2}\Delta_{\text{so}}/3 & 0 \\ kP & \sqrt{2}\Delta_{\text{so}}/3 & E_V & 0 \\ 0 & 0 & 0 & E_V + \Delta_{\text{so}}/3 \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

ausgedrückt. Die Energieeigenwerte für das jeweilige Leitungs- bzw. Valenzband werden als E_L bzw. E_V ausgedrückt, während das *spin-orbit splitting* der Valenzbänder durch Δ_{so} beschrieben wird. Für den P -Parameter, der einem Ausdruck für das Impulsmatrixelement entspricht, wird an dieser Stelle die Definition nach Bastard [80] verwendet:

$$P = \frac{-i}{m_0} \langle S' | \hat{p}_z | Z' \rangle. \quad (4.6)$$

Nun müssen die Energieeigenwerte von Gl. (4.4) bestimmt werden. Setzt man $E_L = E_G$ und $E_V = -\Delta_{\text{so}}/3$, so können die vier Eigenwerte E' der Matrix H geschrieben werden als:

$$E' = 0 \quad (4.7)$$

und

$$E' (E' - E_G)(E' + \Delta_{so}) - k^2 P^2 \left(E' + \frac{2\Delta_{so}}{3} \right) = 0. \quad (4.8)$$

Dies ermöglicht es uns die Dispersion des Leitungsbandes und der Valenzbänder zu bestimmen, wenn folgende kubische Gleichung gelöst wird:

$$E'^3 + (\Delta_{so} - E_G) E'^2 - (P^2 k^2 + E_G \Delta_{so}) E' - \frac{2}{3} P^2 k^2 \Delta_{so} = 0. \quad (4.9)$$

Mithilfe des Satzes von Cardano folgen, zusammen mit der Lösung von Gl. (4.7), die folgenden vier Dispersionen:

$$E_{LB} = \sqrt{-\frac{4}{3} A'} \cdot \cos \left(\frac{1}{3} \arccos \left(-\frac{B'}{2} \sqrt{-\frac{27}{A'^3}} \right) \right) - \frac{C'}{3} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e}, \quad (4.10)$$

$$E_{VB1} = -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_e}, \quad (4.11)$$

$$E_{VB2} = -\sqrt{-\frac{4}{3} A'} \cdot \cos \left(\frac{1}{3} \arccos \left(-\frac{B'}{2} \sqrt{-\frac{27}{A'^3}} \right) + \frac{\pi}{3} \right) - \frac{C'}{3} - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e}, \quad (4.12)$$

$$E_{VB3} = -\sqrt{-\frac{4}{3} A'} \cdot \cos \left(\frac{1}{3} \arccos \left(-\frac{B'}{2} \sqrt{-\frac{27}{A'^3}} \right) - \frac{\pi}{3} \right) - \frac{C'}{3} - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} \quad (4.13)$$

mit den Abkürzungen:

$$\begin{aligned} A' &= -\left(P^2 k^2 + E_G \Delta_{so} \right) - \frac{(\Delta_{so} - E_G)^2}{3}, \\ B' &= \frac{2(\Delta_{so} - E_G)^3}{27} + \frac{(\Delta_{so} - E_G)(P^2 k^2 + E_G \Delta_{so})}{3} - \frac{2}{3} P^2 k^2 \Delta_{so}, \\ C' &= \Delta_{so} - E_G. \end{aligned} \quad (4.14)$$

Diese relativ umständlichen Ausdrücke sind zu komplex, um mit ihnen weitere Analysen durchzuführen. Daher kann Gl. (4.9) für $\Delta_{so} \ll E_G$ oder $\Delta_{so} \gg E_G$ vereinfacht werden, was auf die umgänglicheren Formulierungen für die Leitungsbanddispersion führt [81, 82]:

$$\Delta_{\text{so}} \ll E_G \Rightarrow E_C(k) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} + \frac{1}{2} \left(E_G + \sqrt{E_G^2 + 4P^2 k^2} \right), \quad (4.15)$$

$$\Delta_{\text{so}} \gg E_G \Rightarrow E_C(k) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} + \frac{1}{2} \left(E_G + \sqrt{E_G^2 + \frac{8}{3} P^2 k^2} \right). \quad (4.16)$$

Ab diesem Punkt wird ausschließlich Gl. (4.15) als Leitungsbanddispersion für weitere Untersuchungen verwendet, da die Näherung $\Delta_{\text{so}} \ll E_G$ für zb-GaN mit der Bandlücke von 3.23 eV und dem *spin-orbit splitting* von 20 meV eindeutig zutrifft. Zudem wird P als k -unabhängig angenommen [83]. Die drei Valenzbänder werden als parabolische Bänder mit den effektiven Massen aus Tab. 4 angenähert. Eine schematische Darstellung der betrachteten Bänder im Kane-Modell nahe des Γ -Punktes ist in Abb. 9 zu sehen. In diesem vereinfachten Bild werden keine Symmetrie-Eigenschaften berücksichtigt, so dass es zu Kreuzungspunkten der Valenzbänder kommen kann (Vergleich mit HSE+SOC Berechnungen in Abb. 8).

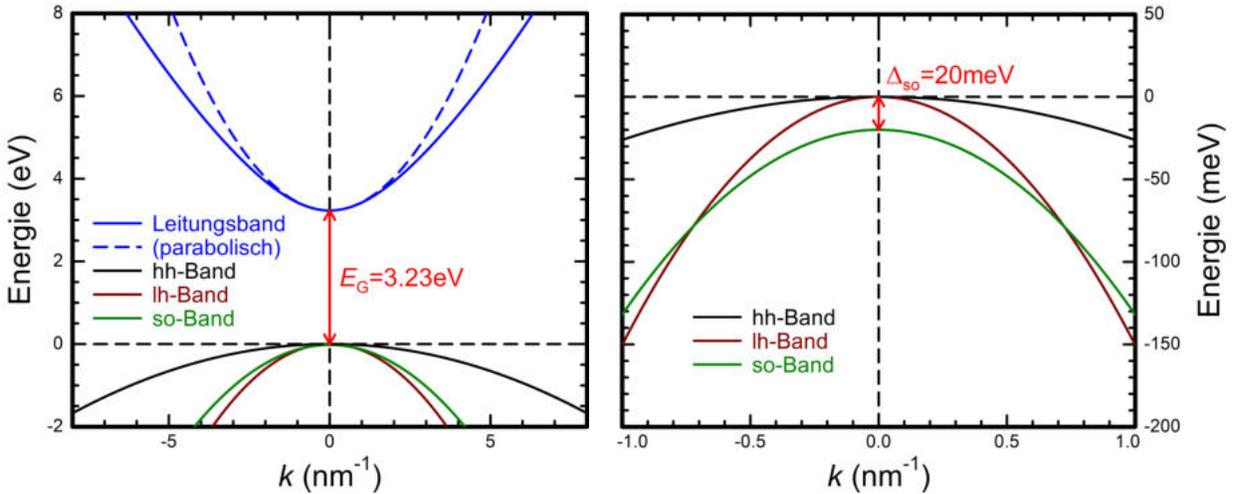


Abbildung 9: Links: Modell der Bandstruktur in der Nähe des Γ -Punktes der Brillouin-Zone. Die Leitungsbanddispersion (blau, durchgezogen) entspricht Gl. (4.15) und wird mit einem parabolischen Band (blau, gestrichelt) verglichen. Beiden Kurven liegt eine Γ -Punktsmasse von $0.19 m_e$ zugrunde. Für die drei Valenzbänder werden parabolische Näherungen mit gemittelten Lochmassen aus Tab. 4 genutzt. Rechts: Vergrößerte Darstellung der Valenzbänder. Das *spin-orbit splitting* Δ_{so} am Γ -Punkt ist zu erkennen. Für $k > 0.7 \text{ nm}^{-1}$ kommt es, aufgrund der unterschiedlichen Lochmassen in der rein parabolischen Näherung für die Valenzbänder, zu einem Wechsel in der energetischen Reihenfolge von lh- und so-Band.

Um eine andere vergleichbare Größe als den P -Parameter zwischen verschiedenen Materialien zu erhalten, wird dieser in eine Energie E_P umgewandelt [80]:

$$E_P = \frac{2m_e}{\hbar^2} P^2. \quad (4.17)$$

Der E_P - bzw. P -Parameter ist ein Maß für die Nichtparabolizität des Leitungsbandes. Eine alternative Gleichung zur Bestimmung des E_P -Parameters folgt, wenn man die effektive Elektronenmasse am Γ -Punkt $m_0^*(\Gamma)$ aus der Leitungsbanddispersion ermittelt. Es zeigt sich, dass der E_P -Parameter nur von der Bandlücke (3.23 eV) und der Γ -Punktsmasse (0.19 m_e) abhängt [81]:

$$E_P = E_G \cdot \left(\frac{m_e}{m_0^*(\Gamma)} - 1 \right) = 13.77 \text{ eV}. \quad (4.18)$$

4.2 Vielteilcheneffekte

Befinden sich freie Ladungsträger in einem Material, so nehmen diese Einfluss auf die Bandstruktur und damit auf die DF. Die zusätzlichen Ladungsträger interagieren dabei sowohl mit dem Kristallgitter als auch mit sich selbst. In diesem Kapitel werden die beiden ausschlaggebenden Effekte der Burstein-Moss-Verschiebung (engl.: *Burstein-Moss shift*, BMS) [84, 85] und der Bandkantenrenormierung (engl.: *band gap renormalization*, BGR) [86, 87] beschrieben und für den Fall freier Elektronen (n -Dotierung) mathematisch modelliert.

Unter dem BMS versteht man die Verschiebung der Absorptionskante zu höheren Energien aufgrund der Befüllung des Leitungs- oder des Valenzbandes (für p -Dotierung) mit freien Ladungsträgern. Aus der Absorptionskante ergibt sich der Energiewert, den ein Photon mindestens besitzen muss, um ein Elektron aus einem besetzten Valenzband in das Leitungsband anzuheben. Diese Energie für den Band-Band-Übergang wird im Folgenden als Übergangsenergie (E_{CV}) bezeichnet. Da ein Photon im Vergleich zur Ausdehnung der BZ keinen nennenswerten Impuls mit sich führt, erfolgt diese Absorption praktisch senkrecht im $E(k)$ -Diagramm. Befinden sich nun z. B. aufgrund von n -Dotierung bereits freie Elektronen im Leitungsband, so sammeln sich diese im Leitungsbandminimum (LBM) und füllen das Band auf. Je nach Dotierkonzentration

wird das Leitungsband verschieden stark gefüllt. Damit sind jedoch die energetisch niedrigsten Zustände im Leitungsband bereits besetzt und stehen somit einem Valenzelektron nicht als freier Zustand zur Verfügung. Den k -Vektor, bis zu welchem (bei $T = 0$ K) sämtliche Zustände besetzt sind, nennt man Fermi-Vektor $k_F = (3\pi^2 n)^{1/3}$, mit der Ladungsträgerkonzentration n . Die Folge der Befüllung des Leitungsbandes ist also, dass nur Elektronen mit $k \geq k_F$ durch Photonen ins Leitungsband angehoben werden können. Die dafür notwendige Energie (E_{BMS}) muss also größer als die fundamentale Bandkante sein und setzt sich zusammen aus einem Leitungsband- (ΔE_C) und einem Valenzbandbeitrag (ΔE_V):

$$E_{\text{BMS}} = \Delta E_C + \Delta E_V = E_C(k_F) + |E_V(k_F)|. \quad (4.19)$$

Die Beiträge der Bänder entsprechen ihrer jeweiligen Dispersion am Fermi-Vektor. Für das Leitungsband entspricht dies Gl. (4.15). Im zb-GaN sind drei Valenzbänder bestimmbar, mit jeweils eigenen Übergangswahrscheinlichkeiten, die zur Absorption beitragen. Aus diesem Grund wird die vereinfachte Annahme eines einzelnen parabolischen Valenzbandes getroffen, welches die Beiträge der drei Valenzbänder über eine gemittelte Lochmasse \bar{m}_h^* wiedergeben soll [81]:

$$E_V(k) = -\frac{\hbar^2 k^2}{2\bar{m}_h^*}. \quad (4.20)$$

Der BMS führt also stets zu einer Erhöhung der gemessenen Übergangsenergie. Dieser Effekt ist vor allem für hohe Ladungsträgerdichten (im zb-GaN: $n > 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) stark ausgeprägt, da sich die Bandfüllung für geringe Ladungsträgerdichten auf den Bereich nahe des Γ -Punktes beschränkt und der energetische Abstand zwischen Leitungs- und Valenzband sich kaum ändert. Im Gegensatz zum BMS führt der BGR zu einer Verringerung der Absorptionskante um ΔE_{BGR} . Die renormierte Bandlücke E_{ren} lässt sich darstellen als [87, 88]:

$$\begin{aligned} E_{\text{ren}}(n) &= E_G - \Delta E_{\text{BGR}}(n) \\ &= E_G - \Delta E_{\text{ce}}(n) - \Delta E_{\text{ei}}(n). \end{aligned} \quad (4.21)$$

Diese Verringerung erfolgt zum einen aufgrund der Wechselwirkung der freien Ladungsträger

untereinander (Elektron-Elektron-Wechselwirkung, ΔE_{ee}), zum anderen durch die Interaktion der freien Ladungsträger mit den zurückbleibenden Donatorrümpfen (Elektron-Ion-Wechselwirkung, ΔE_{ei}). Beide Anteile entsprechen also Coulomb-Austauschwechselwirkungen und lassen sich mathematisch durch folgende Gleichungen nach [86] approximieren:

$$\Delta E_{ee}(n) = \frac{e^2 k_F}{2\pi^2 \epsilon_0 \epsilon_s} + \frac{e^2 k_{TF}}{8\pi \epsilon_0 \epsilon_s} \left[1 - \frac{4}{\pi} \arctan \left(\frac{k_F}{k_{TF}} \right) \right], \quad (4.22)$$

$$\Delta E_{ei}(n) = \frac{e^2 n}{\epsilon_0 \epsilon_s a_B^* k_{TF}^3}. \quad (4.23)$$

Hierbei entspricht k_{TF} dem Thomas-Fermi-Abschirmvektor und a_B^* dem effektiven Bohr-Radius:

$$k_{TF} = \sqrt{\frac{4k_F}{\pi a_B^*}}, \quad a_B^* = \frac{4\pi \epsilon_0 \epsilon_s \hbar^2}{m^* e^2}. \quad (4.24)$$

Es ist noch nicht eindeutig experimentell erwiesen, ob durch die BGR das Leitungsband nach unten oder das Valenzband nach oben gezogen wird. Ebenso möglich, und vermutlich realistisch, ist eine Aufteilung der Renormierung auf beide Bänder. Das LBM würde in diesem Fall z. B. um $\frac{1}{3}\Delta E_{BGR}$ absinken, während das Valenzbandmaximum (VBM) um $\frac{2}{3}\Delta E_{BGR}$ ansteigt.

In dotierten Halbleitern treten also die BGR und der BMS als gegenläufige Effekte gleichzeitig auf. In Abb. 10 ist das Prinzip beider Effekte schematisch dargestellt. Für geringe freie Ladungsträgerkonzentrationen überwiegt der Effekt der BGR und es wird eine Verringerung der Übergangsenergie gemessen. Ab einer bestimmten Ladungsträgerkonzentration kompensieren sich BGR und BMS genau gegenseitig. In zb-GaN ist dies bei $n \approx 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ der Fall, was zu einer Übergangsenergie von $\approx 3.207 \text{ eV}$ führt. Dies stimmt mit der sogenannten Mott-Dichte überein [89]. Ab diesem Punkt erhöht sich die gemessene Übergangsenergie stetig aufgrund des Bandfüllung-Effekts des BMS. Der Wert der fundamentalen Bandlücke (3.23 eV) ist erneut für eine Ladungsträgerkonzentration von $6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ erreicht. Folglich kann allein aus der gemessenen Übergangsenergie nicht auf die Dotierkonzentration geschlossen werden. Allerdings

sollten dotierte Halbleiter eine verbreiterte Absorptionskante aufweisen [90], was eine Bestimmung des Unterschieds, ob dotiert oder nicht-dotiert, ermöglichen könnte.

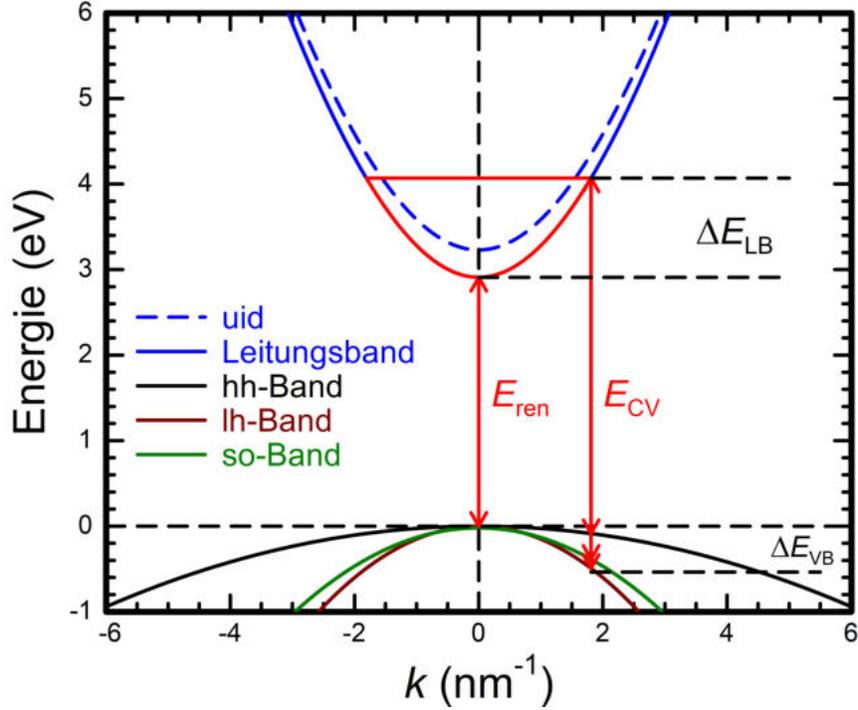


Abbildung 10: Schematische Darstellung der untersuchten Vielteilchen-Effekte am Beispiel von zinkblende GaN (zb-GaN). Die Bandkantenrenormierung verringert die fundamentale Bandkante auf E_{ren} , während die Burstein-Moss-Verschiebung den Übergang zwischen Leitungs- (blau, durchgezogen) und Valenzbändern (schwarz, braun, grün) zu höheren k -Vektoren verschiebt, aufgrund von Füllung des Leitungsbandes mit Elektronen. Die effektive Übergangsenergie E_{CV} ergibt sich aus dem Leitungsband-Beitrag ΔE_{LB} und dem gemittelten Valenzband-Beitrag ΔE_{VB} . Zum Vergleich ist das Leitungsband von undotierten zb-GaN (uid, blau, gestrichelt) eingezeichnet.

Es lässt sich nun die messbare Absorptionskante bzw. Übergangsenergie modellieren, in dem man BMS und BGR kombiniert. Hierzu reicht es aus, die Bandlücke in Gl. (4.19) durch die renormierte Bandlücke aus Gl. (4.21) zu ersetzen und dann den BMS zu berechnen. Die Übergangsenergie zwischen Leitungs- und Valenzband in Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte ergibt sich dann zu [81]:

$$E_{CV} = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2} \left(\frac{1}{m_e} + \frac{1}{\bar{m}_h^*} \right) + \frac{1}{2} \left(E_{ren} + \sqrt{E_{ren}^2 + 4P^2 k_F^2} \right). \quad (4.25)$$

Die einzelnen Beiträge der BGR und des BMS auf die Übergangsenergie sind im Anhang am

Beispiel von zb-GaN dargestellt. Dort kann auch der Umkehr- bzw. Kompensationspunkt beider Effekte bestimmt werden.

4.3 Effektive Masse

In Halbleiterphysik Grundvorlesungen wird die effektive Masse als reziproke Krümmung der Banddispersion über $m^* = \hbar^2 \cdot \left(\frac{\partial^2 E}{\partial k^2}\right)^{-1}$ eingeführt. Bandstruktur und effektive Massen hängen also direkt voneinander ab. Im letzten Abschnitt wurde der Einfluss großer Ladungsträgerkonzentrationen auf die Bandstruktur untersucht und modelliert. Hier soll nun der Zusammenhang zur Änderung der effektiven Masse und die Bedeutung der optischen Masse erläutert werden. Hierfür wird folgende alternative Definition der effektiven Masse von Elektronen genutzt [46, 91–93]:

$$m_e^*(k) = \frac{\hbar^2 k}{\partial E_C / \partial k}. \quad (4.26)$$

Diese Gleichung ist geeigneter, um die effektive Masse als Transportgröße und somit ihren Einfluss auf die optische Eigenschaften zu beschreiben. Untersucht man hochdotierte Materialien im infraroten Spektralbereich, wie in Kap. 3.1 für die DF beschrieben, so muss man sich verdeutlichen, dass sämtliche im System vorhandenen freien Ladungsträger von der EM-Welle angeregt werden. Da sich die einzelnen Ladungsträger aber an verschiedenen Positionen im Band befinden, reagiert jedes Elektron auf die Anregung mit seiner k -spezifischen effektiven Masse. Für perfekt parabolische Bänder ist die Masse natürlich für jedes Elektron gleich. Betrachtet man jedoch nicht-parabolische Bänder, so hat jedes Elektron eine leicht andere effektive Masse. Um die optische Antwort des Elektronensystems zu beschreiben, muss daher über sämtliche Elektronen gemittelt werden. Der so entstehende Ausdruck wird als optische effektive Masse m_{opt}^* definiert, da sie für die optische Antwort ausschlaggebend ist. Viele Arbeiten machen jedoch die Vereinfachung, dass nur die Ladungsträger am Fermi-Vektor k_F berücksichtigt werden müssen, womit sich die Plasmafrequenz aus Gl. (3.19) ergibt zu [5, 94, 95]:

$$\omega_P^2 = \frac{e^2 n}{\varepsilon_0 m_e^*(k_F)}, \quad (4.27)$$

wobei die Masse am Fermi-Vektor natürlich $m_e^*(k_F) = \left. \frac{\hbar^2 k}{\partial E_C / \partial k} \right|_{k_F}$ entspricht. Für den Fall schwacher Dotierung liefert diese Näherung ausreichend gute Ergebnisse.

Um die Wirkung der Nichtparabolizität zu erfassen, muss wie bereits erwähnt, eine Mittelung über sämtliche angeregten Elektronen erfolgen. Dies wird realisiert, in dem man den Quotienten aus Ladungsträgerkonzentration und optischer Masse berechnet [81, 91, 96]:

$$\frac{n}{m_{\text{opt}}^*} = 2 \int_0^\infty \frac{D'(k) f_e}{V m_e^*(k)} d^3 k = \frac{2}{(2\pi)^3} \int_0^{k_F} \frac{1}{m_e^*(k)} d^3 k = \frac{1}{\pi^2} \int_0^{k_F} \frac{k^2}{m_e^*(k)} dk. \quad (4.28)$$

Hierbei steht $D'(k)$ für die Zustandsdichte, V für das Kristallvolumen und f_e für die Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion. Diese wird als Stufenfunktion approximiert, was streng genommen nur für $T = 0$ gültig ist. Grundlage für Gl. (4.28) ist die Definition der Ladungsträgerkonzentration:

$$n = \frac{N}{V} = 2 \int_0^\infty \frac{D'(k) f_e}{V} d^3 k = \frac{2}{(2\pi)^3} \int_0^{k_F} d^3 k = \frac{1}{4\pi^3} \cdot \frac{4}{3} \pi k_F^3 = \frac{k_F^3}{3\pi^2}, \quad (4.29)$$

die ebenfalls als Definitionsgleichung für den Fermi-Vektor $k_F = (3\pi^2 n)^{1/3}$ genutzt werden kann. Der Faktor 2 vor dem Integral kommt aus der Berücksichtigung des Spins. Einsetzen der effektiven Masse in Gl. (4.28) liefert die Integralgleichung:

$$\frac{n}{m_{\text{opt}}^*} = \frac{1}{\hbar^2 \pi^2} \int_0^{k_F} k \frac{\partial E_C}{\partial k} dk. \quad (4.30)$$

Dieses Integral, welches streng genommen immer noch nur für $T = 0$ gilt, ist analytisch lösbar. Berücksichtigt man zusätzlich die in Kap. 4.2 definierte BGR, erhält man folgende Lösung für den Quotienten aus Ladungsträgerkonzentration und optischer Masse [81]:

$$\frac{n}{m_{\text{opt}}^*} = \frac{1}{\hbar^2 \pi^2} \left[\frac{\hbar^2 k_F^3}{3m_e} + \frac{1}{4} k_F \sqrt{E_{\text{ren}}^2 + 4P^2 k_F^2} - \frac{E_{\text{ren}}^2}{8P} \ln \left(\frac{2Pk_F + \sqrt{E_{\text{ren}}^2 + 4P^2 k_F^2}}{E_{\text{ren}}} \right) \right] = \frac{\omega_P^2 \epsilon_0}{e^2}. \quad (4.31)$$

Somit entsteht eine Gleichung, welche die zuvor definierte Plasmafrequenz ω_p in abhängig von der Ladungsträgerkonzentration n und den Bandparametern E_G und P darstellt. Sind diese Bandparameter aus anderen Messungen bereits bekannt, ist man in der Lage, anhand der Plasmafrequenz die Ladungsträgerdichte zu ermitteln. Der Wert der optischen Masse folgt dann vollkommen analog.

Es ergibt sich nun jedoch das Problem, dass zur Berechnung der renormierten Bandlücke E_{ren} eine effektive Masse benötigt wird (siehe Gl. (4.24)). Die Frage nach der Art dieser effektiven Masse, z. B. ob m_{opt}^* oder $m_e^*(k_F)$, ist nicht vollständig geklärt. Da die Berechnung der effektiven Masse von der renormierten Bandlücke abhängt und diese aber von der effektiven Masse, ergeben sich transzendente Gleichungen, die nicht analytisch gelöst werden können. In dieser Arbeit wird daher ein Iterationsverfahren verwendet. Im ersten Schritt wird die BGR über die Bandmasse $m_0^*(\Gamma)$ berechnet. Danach wird die optische Masse gemäß Gl. (4.31) ermittelt und zur Berechnung einer zweiten BGR genutzt. Die erste BGR-Rechnung wird dabei verworfen. Es kommt folglich nicht zu einer Addition mehrere Effekte. Es zeigt sich, dass bereits nach zwei Iterationsschritten keine signifikanten Änderungen in der renormierten Bandlücke oder der effektiven Masse mehr auftreten.

5 Ladungsträgerverhalten nach Hochenergieanregung

Wird ein Photon durch einen Halbleiter absorbiert, so entsteht ein Elektron-Loch-Paar. Die Position des Elektron-Loch-Paares im k -Raum wird durch die Energie des Photons festgelegt, da diese dem energetischen Abstand zwischen Leitungs- und Valenzband entspricht. Ausnahme hiervon ist der Spezialfall des Exzitons. Hochenergieanregung beschreibt die Situation, dass die Photon-Energie deutlich größer als die Bandlücke des zu untersuchenden Halbleiters ist. Für zb-GaN (Bandlücke 3.23 eV) ist dies durch die Verwendung eines 266nm-Lasers (4.66 eV) umsetzbar. Die Leistung des verwendeten Lasers beeinflusst hier nur die Anzahl der Photonen pro Laser-Puls. Die erzeugten, freien Elektronen und Löcher relaxieren nun innerhalb ihrer Bänder und sammeln sich im LBM bzw. VBM. Anschließend rekombinieren Elektronen und Löcher miteinander, was strahlend über die Abgabe eines Photons oder nicht-strahlend durch Phonon-Beteiligung oder über sogenannte *trap*- (dt.: Falle) Zustände stattfinden kann. Zudem können die freien Ladungsträger innerhalb des Materials diffundieren. Eine schematische Darstellung der beteiligten Prozesse zeigt Abb. 11.

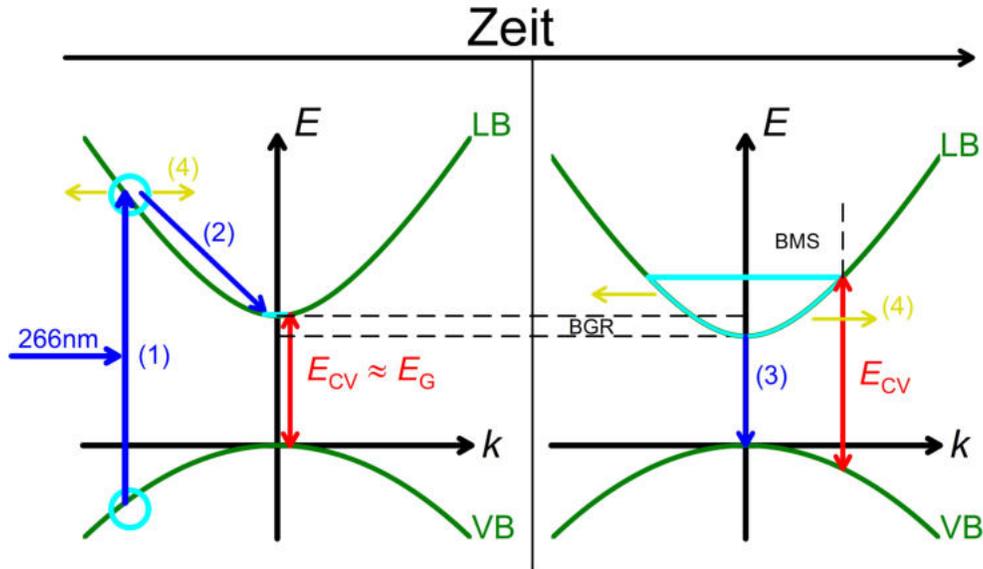


Abbildung 11: Schematische Darstellung der modellierten Prozesse, welche die Ladungsträgerkonzentration nach Hochenergieanregung verändern (dargestellt nur für Elektronen): Absorption (1) vom Valenzband (VB) ins Leitungsband (LB), Relaxation (2) ins Leitungsbandminimum, Rekombination (3) zurück ins Valenzband, gleichzeitig findet eine Diffusion (4) der Ladungsträger statt (im Realraum, keine k -Veränderung). Vielteilcheneffekte (BGR, BMS) beeinflussen die Übergangsenergie E_{CV} .

In diesem Kapitel werden die beteiligten Prozesse nach einer Hochenergieanregung beschrieben und mathematisch modelliert, um ihren Einfluss auf die optischen Eigenschaften zu erfassen. Hierbei beschränkt sich diese Arbeit auf die Beschreibung der Elektronen, da diese die Absorptionseigenschaften diktieren. Grund hierfür ist die Tatsache, dass der Fermi-Vektor der Elektronen stets größer ist als der Fermi-Vektor der Löcher. Die erzeugten Löcher müssen sich auf drei Valenzbänder aufteilen, im Gegensatz zu den Elektronen, die sich nur in einem Leitungsband aufhalten.

5.1 Relaxation

Direkt nach der Anregung durch optisches Pumpen befinden sich N_0 Elektronen innerhalb des Leitungsbandes im sogenannten Pump-Reservoir. Von dort relaxieren sie gemäß $N_0 \cdot e^{-t/\tau_0}$ ins LBM, wobei die Relaxationszeit τ_0 als konstant angenommen wird. Entsprechend lässt sich die Anzahl N der Elektronen im LBM angeben als $N = N_0 \cdot (1 - e^{-t/\tau_0})$. Dies ist in Abb. 12 schematisch dargestellt.

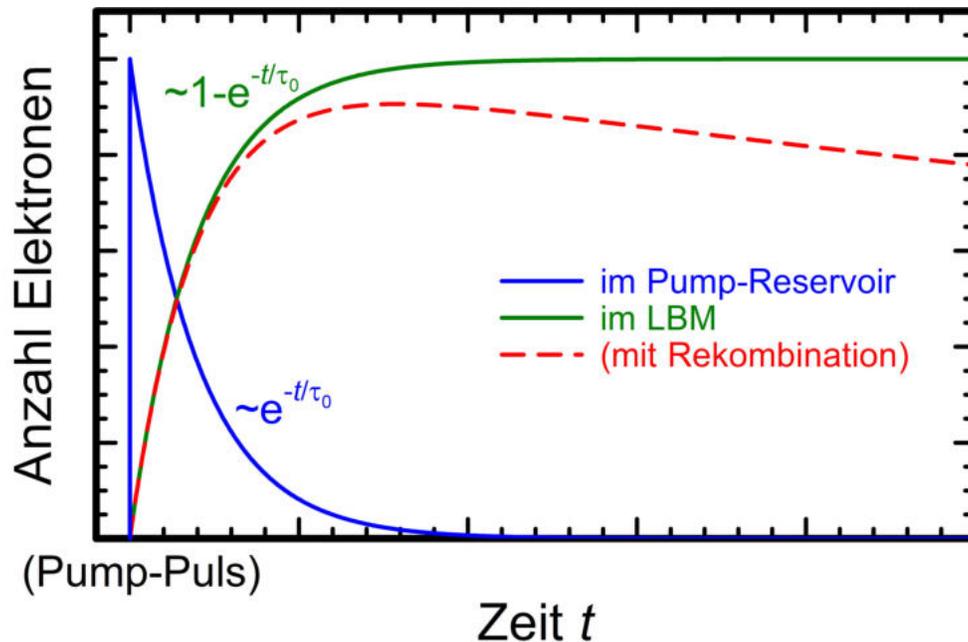


Abbildung 12: Schematische Darstellung der absoluten Anzahl von Elektronen im Pump-Reservoir (blau) und Leitungsbandminimum (LBM, grün) nach der Erzeugung des Pump-Reservoirs zum Zeitpunkt 0. Zusätzlich ist der Effekt von Rekombination auf die im LBM befindlichen Elektronen (rot) gezeigt.

Diese vereinfachte Darstellung ist für sehr kurze Zeiten (im Femtosekunden-Bereich) jedoch nicht ausreichend. Hierfür muss das Profil des Laser-Pulses, welcher die Elektronen anregt (engl: *pump-beam*), berücksichtigt werden. Wird ein Gauß-artiges Profil für den *pump-beam* angenommen, so kann die Intensität L' als Funktion der Zeit t' angegeben werden zu:

$$L'(t') = \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma_L^2}} \cdot \exp\left(-\frac{(t' - t_L)^2}{2\gamma_L^2}\right). \quad (5.1)$$

Hier entspricht γ_L der Puls-Verbreiterung und t_L der Position des Maximums des Laser-Pulses. Gleichzeitig kann der Ausdruck für die Anzahl der relaxierten Elektronen zur Zeit t geschrieben werden als:

$$R(t) = N_0 \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{t - t'}{\tau_0}\right)\right) \cdot \Theta(t - t'), \quad (5.2)$$

mit der Heaviside-Funktion Θ . Der Relaxationsprozesse startet hier zum Zeitpunkt t' . Da sich die Intensität des *pump-beam* jedoch mit t' ändert, wird die tatsächliche Anzahl der Elektronen im Leitungsbandminimum N_{LBM} über die Faltung des Laser-Pulses mit der Relaxation ermittelt:

$$N_{\text{LBM}}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} L(t') \cdot R(t) dt'. \quad (5.3)$$

Vereinfacht ausgedrückt, beginnt mit jedem Zeitschritt von t' ein neuer Teilprozess der Gesamtre-
laxation. Löst man das Integral, so erhält man die in Abb. 13 schematisch dargestellte Gleichung:

$$N_{\text{LBM}}(t) = \frac{N_0}{2} \cdot \left[\operatorname{erfc}\left(\frac{t_L - t}{\sqrt{2}\gamma_L}\right) - \exp\left(\frac{\gamma_L^2 + 2\tau_0(t_L - t)}{2\tau_0^2}\right) \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{\gamma_L^2 + \tau_0(t_L - t)}{\sqrt{2}\gamma_L\tau_0}\right) \right]. \quad (5.4)$$

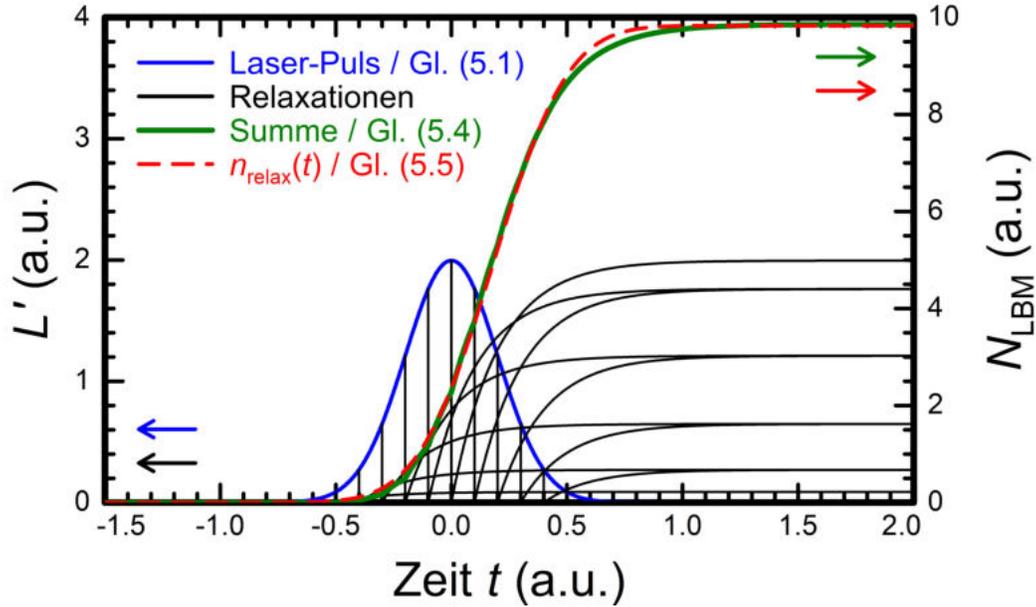


Abbildung 13: Prinzip zur Begründung des Relaxations-Modells. Jeder Punkt des Gauß-förmigen Laser-Pulses (blau, linke Achse) dient als Start für einen einzelnen Relaxations-Prozesses (schwarz, linke Achse). Summiert man all diese auf (grün, rechte Achse) bzw. führt die Faltung in Gl. (5.4) durch, kann die entstehende Linienform durch Gl. (5.5) (rot, gestrichelt, rechte Achse) beschrieben werden.

Für den Fall, dass τ_0 und γ_L in der gleichen Größenordnung sind, so ähnelt der Verlauf von Gl. (5.4) einer *error-function*. Da das konkrete Profil des Laser-Pulses nicht bekannt ist, wird die Relaxation der Elektronen im Leitungsband demnach folgendermaßen approximiert [97]:

$$n_{\text{relax}}(t) = \frac{N_0}{2} \cdot \left(\operatorname{erf} \left(\frac{t - \beta_0}{\tau_0} \right) + 1 \right). \quad (5.5)$$

Die Anzahl der insgesamt angeregten Elektronen sei hier N_0 , während τ_0 die Verbreiterung und β_0 und die Position des Wendepunkts der *error-function* angeben. Es ist zu beachten, dass in dieser Näherung τ_0 nicht exakt der Relaxationszeit entspricht. Gleichwohl wird sie in dieser Arbeit als solche behandelt. Die in Gl. (5.5) angegebene Anzahl von Elektronen, bzw. die Elektronenkonzentration, beeinflussen nun die Absorptionskante aufgrund der in Kap. 4.2 beschriebenen Vielteilcheneffekte. Die Verschiebung der Übergangsenergie durch Bandfüllung (BMS) ist hierbei leicht zu verstehen. Es bleibt jedoch die Frage, ob die erzeugten Ladungsträgerpaare bereits im Pump-Reservoir mittels Coulomb-Wechselwirkung Einfluss auf die Bandstruktur durch BGR nehmen. Die experimentellen Daten, beschrieben in Kap. 7.1.3, deuten jedoch darauf hin, dass

dies nicht der Fall ist. Somit kann davon ausgegangen werden, dass auch der Beitrag der BGR nur für relaxierte Ladungsträger betrachtet wird.

5.2 Diffusion und Rekombination

Im Gegensatz zur Relaxation, die die Anzahl der Elektronen im LBM erhöht, verursachen die Prozesse der Rekombination und Diffusion eine Verringerung der Ladungsträgerkonzentration. Während die Rekombination den Übergang eines Elektrons zurück in das Valenzband angibt, beschreibt die Diffusion die räumliche Ausbreitung von Ladungsträgern im Material. Betrachtet man beispielsweise nur einen oberflächennahen Bereich einer Halbleiter-Probe nach Hochenergieanregung, so werden die dort erzeugten freien Ladungsträger-Paare in die Tiefe der Probe hinein diffundieren, was eine Verringerung der Ladungsträgerkonzentration an der Oberfläche bedeutet. Der kombinierte Effekt aus Rekombination und Diffusion auf eine Ladungsträgerkonzentration n kann über folgende DGL beschrieben werden [28]:

$$\frac{\partial n(z, t)}{\partial t} = -\frac{n(z, t)}{\tau_1} + D \cdot \frac{\partial^2 n(z, t)}{\partial z^2}. \quad (5.6)$$

Hierbei bezeichnet z die Position innerhalb der Probe, bezogen auf das Tiefenprofil (von Oberfläche bis Substrat). Die Rekombinationszeit τ_1 und die Diffusionskonstante D sind natürlich materialabhängig. Innerhalb eines Materialsystems sollte die Relaxation jedoch deutlich schneller als die Rekombination ablaufen ($\tau_1 \gg \tau_0$).

Bevor die DGL gelöst werden kann, muss das Absorptionsprofil berücksichtigt werden. Für die Hochenergieanregung von Proben, deren Schichtdicke größenordnungsmäßig im Bereich der Eindringtiefe liegt, kann man die Annahme einer homogenen Anregung von freien Ladungsträgern treffen. Im Falle dieser Arbeit ist die Schichtdicke mit ≈ 600 nm jedoch deutlich größer als die zu erwartende Eindringtiefe von ≈ 60 nm eines 4.66 eV Laser-Pulses in zb-GaN [81]. Als Folge entsteht bereits durch die Absorption ein tiefenabhängiges Ladungsträgerprofil. Oberflächennah werden daher mehr freie Ladungsträger erzeugt als an der Probenrückseite. Entsprechend ist auch der Einfluss auf die optischen Eigenschaften an der Oberfläche stärker als an der

Rückseite. Somit kann folgende Anfangsbedingung für die DGL in Gl. (5.6) aufgestellt werden:

$$n(z = s, t = 0) = \begin{cases} I_0 \cdot e^{-\alpha s} & , s \geq 0 \\ 0 & , s < 0 \end{cases} . \quad (5.7)$$

Diese Anfangsbedingung entspricht dem Lambert-Beerschen Absorptionsgesetz für die Eindringtiefe s , den Absorptionskoeffizienten α und der Anfangsintensität I_0 (die in unserem Fall für die maximale Anzahl absorbiertes Photonen und damit erzeugten Ladungsträgerpaaren steht).

Nun wird die DGL mittels Fourier-Transformation gelöst. Gemäß den Regeln der Fourier-Transformation ergibt sich:

$$\frac{\partial F(n)}{\partial t} = -\frac{F(n)}{\tau_1} + (-y^2 \cdot D \cdot F(n)) = \left(-\frac{1}{\tau_1} - y^2 D\right) \cdot F(n) \quad (5.8)$$

mit:

$$F(n) = U \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau_1} - y^2 D t\right). \quad (5.9)$$

Gleichzeitig muss die Anfangsbedingung transformiert werden, was den Vorfaktor U liefert:

$$U = F(n(s, 0))(y) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\infty} I_0 \cdot \exp(-\alpha s) \cdot \exp(-iys) ds. \quad (5.10)$$

Zur Lösung von Gl. (5.6) muss nun $F(n)$ rücktransformiert werden:

$$n_{\text{diff}}(z, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} F(n) \cdot \exp(iyz) dy. \quad (5.11)$$

Nach Einsetzen und Umformen gilt es folgende Integrale zu lösen:

$$n_{\text{diff}}(z, t) = \frac{I_0}{2\pi} \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\infty} \exp(-\alpha s) \cdot \exp(-iys) \cdot \exp(-y^2 D t) \cdot \exp(iyz) ds dy. \quad (5.12)$$

Es handelt sich hierbei um Standard-Integrale, die relativ einfach gelöst werden können. Somit folgt als Lösung der Rekombinations- und Diffusions-DGL [97]:

$$n_{\text{diff}}(z, t) = \frac{I_0}{2} \cdot \exp\left(\alpha^2 D t - \alpha z - \frac{t}{\tau_1}\right) \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{2\alpha D t - z}{\sqrt{4 D t}}\right). \quad (5.13)$$

Das Verhalten dieser Gleichung ist schematisch für die ersten 100 ps nach der Absorption des *pump-beams* in Abb. 14 dargestellt. Um mathematisch zu verhindern, dass die Ladungsträger für $x < 0$ aus der Probe herausdiffundieren, wird angenommen, dass sie von der Oberfläche zurück in die Probe reflektiert werden. Dies führt gleichzeitig dazu, dass das Maximum von n_{diff} immer bei $x = 0$ liegt und entspricht vernachlässigbarer Oberflächenrekombination [98].

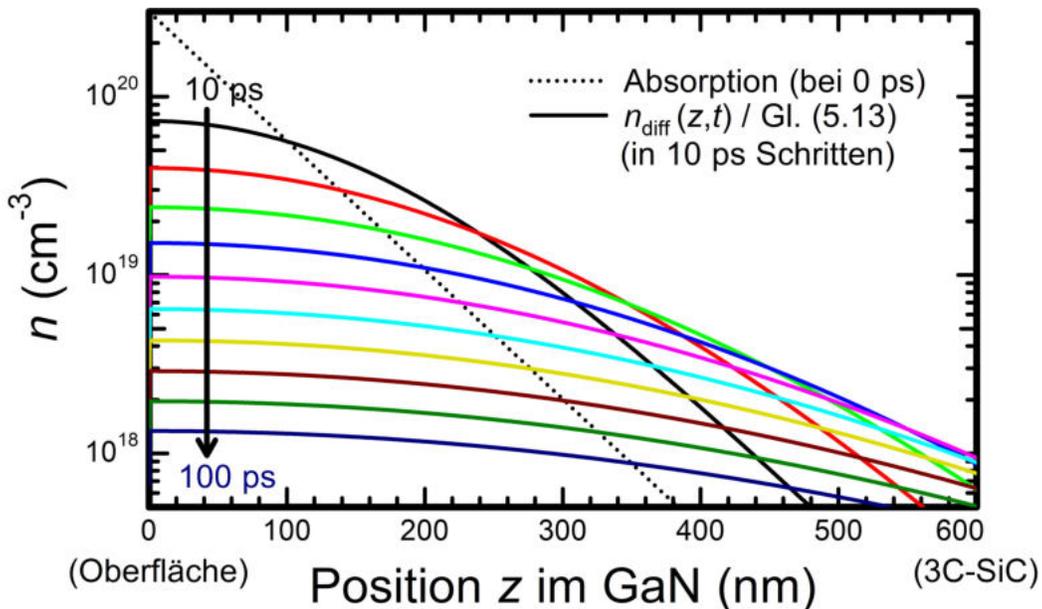


Abbildung 14: Ladungsträgerverhalten (Gl. (5.13)) in den ersten 100 ps nach der Hochenergieanregung, aufgetragen über der GaN-Schichtdicke in Zeitschritten von 10 ps (durchgezogene Linien). Die Absorption (gepunktet) zum Zeitpunkt $t = 0$ ist zum Vergleich ebenfalls dargestellt. Parameter für dieses Bild: $I_0 = 3 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, $\alpha = 1/60 \text{ nm}^{-1}$, $\tau_1 = 30 \text{ ps}$, $D = 7 \frac{\text{cm}^2}{\text{s}}$.

Die Lösung in Gl. (5.13) enthält offensichtlich keinen Beitrag der Relaxation. Um eine Gesamtlösung für das Ladungsträgerverhalten nach Hochenergieanregung zu erhalten, wird I_0 in Gl. (5.13) ersetzt durch den Relaxationsterm aus Gl. (5.5). Diese Operation setzt voraus, dass sowohl Rekombination als auch Diffusion nur für relaxierte Elektronen stattfinden. Für die Re-

kombination ist dies eine vernünftige Annahme, da die Überlappung von Elektron- und Loch-Wellenfunktionen am Γ -Punkt der BZ am größten ist. Auf der anderen Seite ist es für die Diffusion nicht offensichtlich diese Annahme zu treffen, da es sich hier um ein Realraum- (z -Raum) Phänomen handelt. Da die Diffusion jedoch deutlich langsamer stattfindet als Relaxation und Rekombination, sollte die getroffene mathematische Vereinfachung des Ersetzens von I_0 durch n_{relax} dennoch gültig sein. Verbindet man also Relaxation, Rekombination und Diffusion und betrachtet nur die Ladungsträgerkonzentration an der Oberfläche ($z = 0$), so erhält man folgende Modell-Gleichung [97]:

$$n_{\text{model}}(t) = \frac{n_{\text{relax}}(t)}{2} \cdot e^{\alpha^2 Dt - \frac{t}{\tau_1}} \cdot \text{erfc}(\sqrt{\alpha^2 Dt}). \quad (5.14)$$

Die am Anfang erwähnte Vernachlässigung der Effekte der freien Löcher ermöglicht die hier vorgestellte quasi-analytische Modellierung des Ladungsträgerverhaltens. Bedauerlicherweise werden dadurch einige physikalische Prozesse ignoriert, die für eine akkurate Beschreibung und dementsprechende Bestimmung von Materialparametern nötig sind. Besonders das Ausblenden des ambipolaren Charakters des Experiments, welcher sich auf Relaxation, Rekombination und Diffusion auswirkt, sollte zu Abweichungen führen. So müsste beispielsweise die DGL (5.6) n^2 statt nur n für den Rekombinationsterm aufweisen, da beide Sorten von Ladungsträgern vorhanden sind und somit die Rekombinationswahrscheinlichkeit erhöht.

Eine Aufteilung des allgemein gehaltenen Rekombinationsprozesses nach dem ABC-Modell [100, 101] wäre ebenfalls eine sinnvolle Erweiterung der momentanen Modellierung. ABC steht hierbei repräsentativ für nicht-strahlende (Shockley-Read-Hall, $A \cdot n$ oder $A \cdot p$), strahlende ($B \cdot np$) und Auger- ($C \cdot n^2 p$ oder $C \cdot np^2$) Rekombination.

Auch der zusätzliche BGR-Beitrag der freien Löcher auf die Übergangsenergie ist zu beachten. Allerdings legen frühere Arbeiten nahe, dass die durch Löcher verursachte BGR deutlich schwächer als die BGR der freien Elektronen ist [99]. Dennoch wäre eine andere Formulierung des BGR allein schon für die zusätzliche Elektron-Loch-Wechselwirkung und die fehlende Elektron-Ion-Wechselwirkung nötig.

6 Experimentelle Untersuchungsmethoden

Die in Kap. 2.1 aufgelisteten Proben wurden durch verschiedene optische Messmethoden untersucht. In diesem Kapitel werden die Grundprinzipien, die experimentellen Aufbauten und die Herangehensweise zur Analyse der aufgenommenen Messdaten für jede genutzte Messmethode erklärt.

6.1 Spektroskopische Ellipsometrie

Trifft eine polarisierte EM-Welle auf Materie, so kann sich der Polarisationszustand der Welle ändern. Aus dem Polarisationsunterschied lassen sich die DF und somit die optischen Eigenschaften des Materials herleiten. SE misst die Amplituden- und die Phasenänderung zwischen einfallendem und reflektiertem polarisiertem Licht. Dieses ist in Abb. 15 dargestellt.

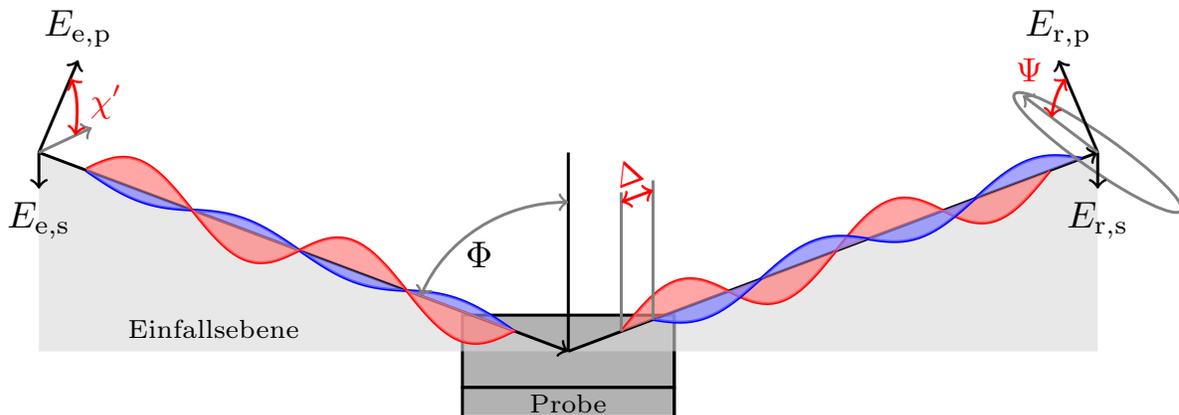


Abbildung 15: Ein einfallender (Index e) Lichtstrahl mit Beiträgen paralleler (Index p) und senkrechter (Index s) Polarisation wird unter dem Einfallswinkel Φ von einer Probe reflektiert (Index r). Das Verhältnis der Amplituden des einfallenden Strahls wird als χ' , das des reflektierten Strahls als Ψ definiert. Die Phasendifferenz Δ zwischen den Polarisationen ist ebenfalls markiert. Bearbeitet nach [102].

Der Polarisationszustand des einfallenden Lichts (gekennzeichnet durch Größen mit Index e) lässt sich als Superposition von zwei senkrecht zueinander polarisierten Wellen beschreiben. Wir bezeichnen diese als senkrecht (s) und parallel (p), relativ zur Einfallsebene, polarisiert. Das Verhältnis ihrer Amplituden ist $\tan(\chi') = \frac{|E_{e,s}|}{|E_{e,p}|}$. Durch Reflexion von der Probe ändern sich diese Amplituden gemäß der Fresnelkoeffizienten r_s und r_p für s- und p-polarisiertes Licht:

$$\begin{aligned}
E_{r,s} &= r_s \cdot E_{e,s} = |r_s| \cdot e^{i\delta_s} \cdot E_{e,s} , \\
E_{r,p} &= r_p \cdot E_{e,p} = |r_p| \cdot e^{i\delta_p} \cdot E_{e,p} .
\end{aligned}
\tag{6.1}$$

Hierbei entsprechen δ_s und δ_p der jeweiligen Phasenlage. Das Verhältnis ρ der Fresnelkoeffizienten folgt somit zu:

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \frac{|r_p| \cdot e^{i\delta_p}}{|r_s| \cdot e^{i\delta_s}} = \frac{|E_{r,p}| \cdot |E_{e,s}|}{|E_{e,p}| \cdot |E_{r,s}|} \cdot e^{i(\delta_p - \delta_s)} = \frac{|E_{r,p}|}{|E_{r,s}|} \cdot \tan(\chi') \cdot e^{i(\delta_p - \delta_s)} .
\tag{6.2}$$

An dieser Stelle führen wir die beiden ellipsometrischen Winkel Ψ und Δ wie folgt ein:

$$\rho = \tan(\Psi) \cdot e^{i\Delta} .
\tag{6.3}$$

Der Winkel Ψ repräsentiert demnach die Änderung des Amplitudenverhältnisses durch Reflexion während Δ die Phasendifferenz zwischen reflektierten p- und s-polarisierten Licht entspricht. Berücksichtigt man zudem den Einfallswinkel Φ , unter dem das einfallende Licht die Probe trifft, ist man in der Lage die sogenannte Pseudo-Dielektrische Funktion $\langle \varepsilon \rangle$ zu berechnen [103]:

$$\langle \varepsilon \rangle = \langle \varepsilon_1 \rangle + i \langle \varepsilon_2 \rangle = \sin^2(\Phi) \cdot \left(1 + \tan^2(\Phi) \cdot \left(\frac{1 - \rho}{1 + \rho} \right)^2 \right) .
\tag{6.4}$$

Diese Pseudo-DF enthält somit Informationen über die lineare optische Antwort der gesamten Proben. Für Volumenproben ohne Rauigkeit entspricht $\langle \varepsilon \rangle$ genau ε . Da sämtliche in dieser Arbeit behandelten Proben jedoch ein Schichtsystem aufweisen, muss die DF ε zunächst aus den Messdaten von Ψ und Δ bzw. $\langle \varepsilon \rangle$ gewonnen werden.

6.1.1 Laborellipsometer und Datenanalyse

Zur Bestimmung der DF in verschiedenen Spektralbereichen wurden zwei unterschiedliche Ellipsometer verwendet. Ein Woollam IR-VASE (engl.: *infrared variable-angle spectroscopic ellipsometer*), basierend auf Fourier-Transformations-Infrarotspektrometrie, wurde verwendet, um

den Spektralbereich von $300 - 6000 \text{ cm}^{-1}$ ($37 - 744 \text{ meV}$) mit einer Auflösung von 4 cm^{-1} zu messen. Für diese Infrarot-Spektroskopische-Ellipsometrie (IRSE) dient ein mit 20 W betriebener Global-Strahler als Quelle der Infrarotstrahlung. Der sichtbare und ultraviolette Spektralbereich wurde hingegen mit einem Woollam VASE untersucht. Lichtquelle ist eine Hochdruck-Xe-Lampe, deren Licht über Gittermonochromatoren spektral zerlegt wird. Auf diese Weise können Ultraviolett-Spektroskopische-Ellipsometrie- (UVSE-) Messungen zwischen $0.5 - 6.5 \text{ eV}$ durchgeführt werden. Somit überlappen sich die möglichen Spektralbereiche beider Geräte. Die spektrale Auflösung der UVSE-Messungen im Bereich der Bandlücke von zb-GaN (3.23 eV) beträgt $\approx 13 \text{ meV}$. Der prinzipielle Aufbau beider Geräte ist in Abb. 16 dargestellt. In beiden Geräten wird die verwendete Strahlung durch einen Polarisator linear polarisiert. Nach Reflexion von der Probe und entsprechender Polarisationsänderung wird das reflektierte Licht durch einen Analysator und Detektor gemessen. Für die UVSE sorgt ein Auto-Retarder zwischen Polarisator und Probe dafür, dass das reflektierte Licht immer nahezu zirkular polarisiert ist. Dies wird für die korrekte Bestimmung von Δ benötigt. In der IRSE steht stattdessen vor dem Analysator noch ein rotierender Kompensator, der eine exakte Messung von $0 \leq \Psi \leq 90^\circ$ und $0 \leq \Delta \leq 360^\circ$ ermöglicht.

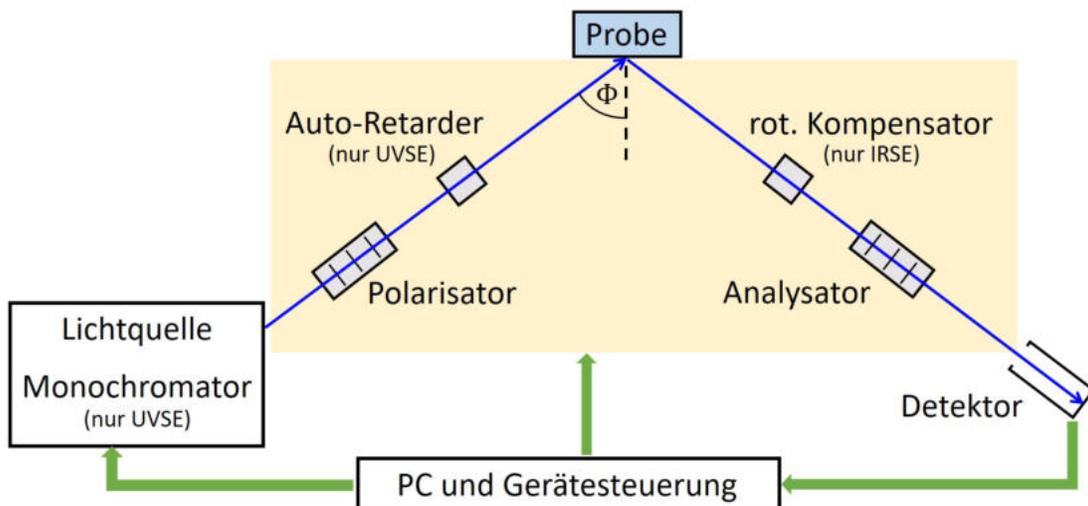


Abbildung 16: Prinzipieller Aufbau der verwendeten Laborellipsometer. Der Strahlengang (blau) erfolgt unter dem Einfallswinkel Φ .

Die aufgenommenen Daten von Ψ und Δ bzw. $\langle \epsilon \rangle$ werden zunachst ber ein Schichtmodell aus-

gewertet, welches der Probenstruktur in Abb. 4 nachempfunden ist. Für die Rauigkeit wird eine Bruggeman EMA-Schicht (engl.: *effective medium approximation*) mit einem 50:50-Verhältnis aus der obersten Schicht (z. B. zb-GaN) und Leerraum (engl.: *Void*) verwendet. Die optischen Konstanten des Substrates, bestehend aus 3C-SiC und Si, sind aus vorherigen Untersuchungen bzw. tabelliert in der Auswertungs-Software (WVASE32) bekannt [104–108]. Als Modell für die zu untersuchende Schicht (z. B. zb-GaN) wird in der IRSE eine Modell-DF gemäß Gl. (3.20) verwendet, während in der UVSE die Linienform von ε durch PSEMI-Oszillatoren (engl.: *parameterized semiconductor oscillator function*) approximiert wird. Diese repräsentieren die ε_2 -Strukturen von M0-M3 kritischen Punkten. So beschreibt ein PSEMI-M0 einen direkten Bandübergang.

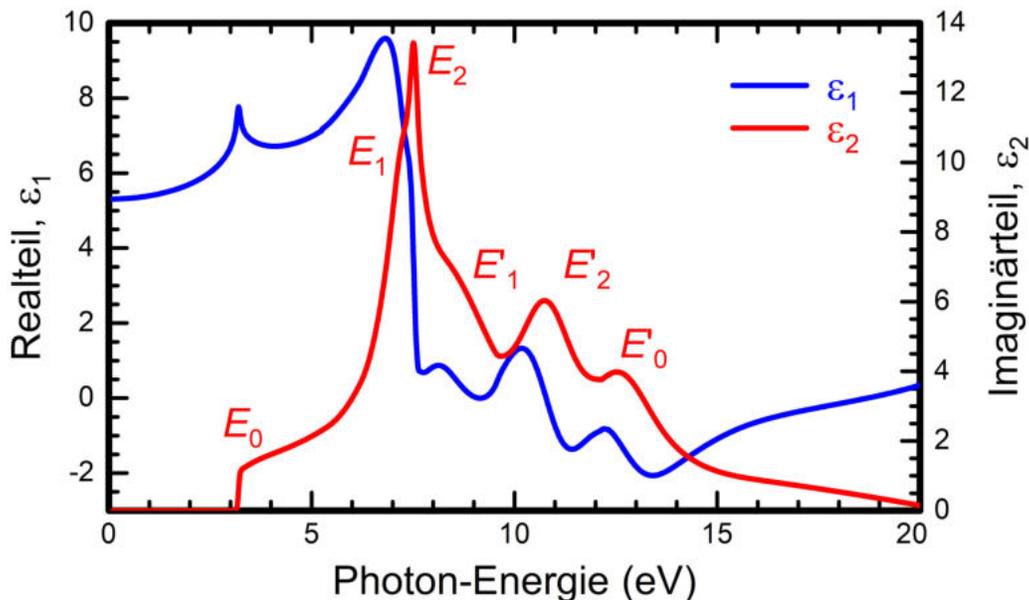


Abbildung 17: Real- (blau, ε_1) und Imaginärteil (rot, ε_2) der Dielektrischen Funktion (DF) von zb-GaN. Dargestellt ist die Modell-DF bestehend aus der Summation verschiedener PSEMI-Oszillatoren für die eingezeichneten Übergänge E_0 bis E_2' . Bearbeitet nach [22].

Die Parameter des Schichtmodells (Schichtdicken, Parameter der DF) werden nun über einen Levenberg-Marquardt Algorithmus so variiert, dass der mittlere quadratische Fehler zwischen Modell und Messdaten minimiert wird [103]. Dies ist jedoch nur der erste Schritt der Auswertung, da diese Anpassung an die Messdaten lediglich der Startpunkt für einen Punkt-für-Punkt- (engl.: *point-by-point*, pbp) -Fit ist. Dieser ändert die Werte der DF (ε_1 und ε_2) für jede ge-

gemessene Wellenlänge auf die bestmögliche Anpassung an die Messdaten. Der pbp-Fit muss jedoch nicht Kramers-Kronig konsistent sein. Das Ergebnis des pbp-Fits sind Daten ε_1 und ε_2 , die als pbp-DF bezeichnet werden sollen. Diese pbp-DF wird nun durch die Modell-DF (für IRSE mittels Gl. (3.20), für UVSE Linienformanpassung durch PSEMI-Oszillatoren) beschrieben, was die tatsächlichen Parameter der DF liefert, die für weitere Auswertungen genutzt werden können. Die Parameter der infrarot DF (IR-DF) sind offensichtlich, während die PSEMI-Oszillatoren einen komplexeren Aufbau aufweisen. Sie dienen vor allem der Beschreibung von M0, M1, M2 und M3 kritischen Punkten in ε_2 und beruhen auf den Herzinger-Johs Funktionen [103, 109–112]. Diese mathematischen Modelle bestehen aus geeigneten Reihenfolgen von Polynomen endlicher Ordnung und/oder Diskontinuitäten mit endlicher Größe und vernachlässigbarer Verbreiterung [112]. Die Vorteile von PSEMI-Oszillatoren sind zum einen ihre Kramers-Kronig-Konsistenz und zum anderen ihre hohe Flexibilität zum Darstellen von Linienformen in ε_2 . Die Bezeichnung M0-M3 bezieht sich dabei auf die Anzahl von negativen kombinierten Bändern in der Bandstruktur bzw. Zustandsdichte. Ein M0-kritischer Punkt entspricht demnach dem Punkt, an dem alle kombinierten Bänder positiv sind. Ein Beispiel hierfür ist der Γ -Punkt in Zinkblende-Materialien. Zur Beschreibung der Absorptionskante in ε_2 der kubischen Gruppe III-Nitride kann also ein PSEMI-M0 Oszillator verwendet werden. Die wesentlichen Parameter des PSEMI-M0 sind A_0 , E_0 und B_0 . Sie repräsentieren die Amplitude, Wendepunkt und Verbreiterung der Absorptionskante. Insbesondere der Wendepunkt wird in dieser Arbeit als Übergangsenergie E_{CV} zwischen Valenz- und Leitungsband interpretiert. Als Beispiel einer DF mit PSEMI-Oszillatoren ist in Abb. 17 die DF von zb-GaN von 1-20 eV dargestellt, gemessen mittels Synchrotronstrahlung am BESSY II in Berlin [22].

6.1.2 Zeitaufgelöste Ellipsometrie

Um Hochgeschwindigkeitsprozesse wie Relaxation oder Rekombination zu untersuchen, reicht die bis jetzt beschriebene Ellipsometrie bedauerlicherweise nicht aus. Stattdessen wurden zeitaufgelöste Spektroskopische Ellipsometrie (engl.: *time-resolved spectroscopic ellipsometry*, trSE) Messungen an der ELI Beamlines in Dolní Břežany (Tschechische Republik) durchgeführt.

Grundprinzip des Experiments ist das sogenannte *pump-probe* (dt.: Pumpen-Messen) Verfahren, bei dem die zu untersuchende Probe zunächst optisch angeregt (gepumpt) wird und nach einer vordefinierten Wartezeit (engl.: *delay-time*) gemessen wird. Der Messaufbau für dieses nicht-Gleichgewichts Experiment, dargestellt in Abb. 18, ist daher aufwendiger als für die Gleichgewichts- (engl.: *steady-state*) Ellipsometrie. Dennoch ist die Struktur der Ellipsometrie bestehend aus Lichtquelle, Polarisator, Probe, Kompensator, Analysator und Detektor auch hier vorhanden.

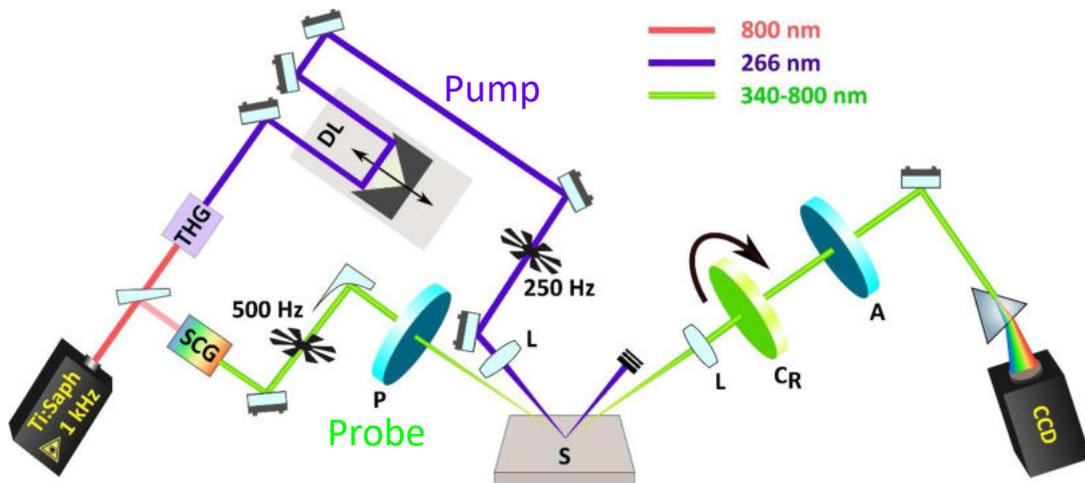


Abbildung 18: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus an der ELI Beamlines für zeitaufgelöste Ellipsometrie [97]. Der gepulste Ti:Saphir-Laser wird genutzt, um sowohl den *Pump*- (blau) als auch den *Probe*- (grün) Strahl zu generieren. Die *delay-line* (DL) ermöglicht die Variation der Zeitdifferenz zwischen *Pump* und *Probe* vom Femtosekunden- in den Nanosekunden-Bereich. Weitere Abkürzungen: THG (engl.: *third harmonic generation*): Frequenzverdreifung für den Pump-Puls, SCG (engl.: *supercontinuum white-light generation*): Weißlicht-Generierung für Test-Puls, DL: Verzögerungsleitung, L: Linse, P: Polarisator, S (engl.: *sample*): Probe, C_R (engl.: *rotating compensator*): rotierender Kompensator, A: Analysator.

Ein Coherent Astralla, Ti:Saphir, Femtosekunden gepulster Laser mit 800 nm Wellenlänge, 2,9 μ J Leistung pro Puls, 35 fs Pulsdauer und 1 kHz Wiederholungsrate (1000 Laserpulse pro Sekunde) dient als Lichtquelle des Experiments. 1% der Leistung eines Laserpulses wird genutzt, um Weißlicht zu generieren, welches als Mess-Strahl bzw. Mess-Puls verwendet wird und daher linear-polarisiert auf die Probe trifft, von dieser reflektiert und anschließend durch einen rotierenden Kompensator, Analysator und Detektor gemessen wird. Die restliche Leistung des gepulsten Lasers wird über Frequenzverdreifung (engl.: *third harmonic generation*, THG) auf eine Wellenlänge von 266 nm (4.66 eV) gebracht. Damit ist es möglich, Valenzelektronen von zb-GaN über die 3.23 eV Bandlücke ins Leitungsband zu heben. Dank der enormen Leistung

eines Pulses, was gleichbedeutend mit einer großen Anzahl von Photonen pro Puls ist, können entsprechend viele Elektronen-Loch-Paare in der Probe angeregt werden. Diese beeinflussen die optischen Eigenschaften der Proben durch Vielteilcheneffekte (siehe Kap. 5). Über die Verzögerungsstrecke (engl.: *delay-line*) kann der zeitliche Unterschied zwischen Pump- und Mess-Puls bis auf 50 fs genau eingestellt werden, so dass selbst kürzeste Änderungen der DF gemessen werden können. Eine genauere Beschreibung des experimentellen Aufbaues und der Umsetzung ist in der Literatur zu finden [53–55].

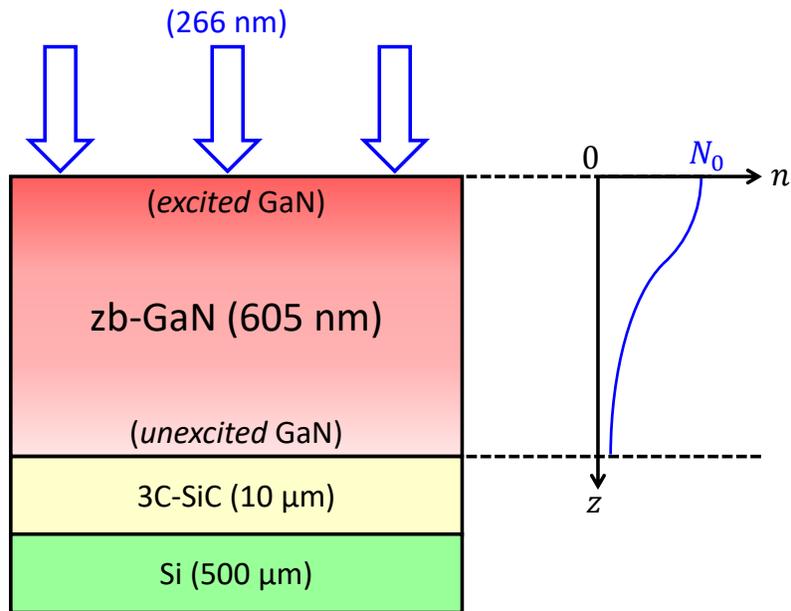


Abbildung 19: Schematische Darstellung des Ladungsträgerprofils (Farbverlauf in der zb-GaN-Schicht) nach der Absorption des Pump-Pulses (266 nm) innerhalb der Probenstruktur (links) und funktional über der Probentiefe z (rechts). Der oberste Teil der GaN-Schicht wird als angeregtes (engl.: *excited*) und der unterste Teil als unangeregtes (engl.: *unexcited*) GaN bezeichnet.

Obwohl die Auswertung der trSE-Daten nach dem gleichen Prinzip wie die normale Ellipsometrie funktioniert, muss die GaN-Schicht im Schichtmodell gesondert behandelt werden. Da die Schichtdicke von ≈ 600 nm deutlich größer als die Absorptionstiefe ist (Absorptionskoeffizient bei 4.66 eV: $\alpha \approx \frac{1}{60} \text{ nm}^{-1}$ [81]), entsteht ein Ladungsträgerprofil innerhalb der GaN-Schicht. Dies ist in Abb. 19 schematisch dargestellt und in Kap. 5.2, insbesondere Abb. 14, mathematisch beschrieben. Dieses Profil muss für die Analyse der Messdaten von Ψ und Δ berücksichtigt

werden. Wird es nicht berücksichtigt und die Analyse durchgeführt wie für IRSE- oder UVSE-Messungen, so erhält man den in Abb. 20 dargestellten Imaginärteil der DF. Hier zeigt sich eine Stufe bei ≈ 3.2 eV. Dieses Verhalten entsteht dadurch, dass der oberste Teil der GaN-Schicht stärker angeregt wird und somit eine höhere Ladungsträgerkonzentration aufweist, was wiederum eine stärkere Verschiebung der Absorptionskante verursacht, als für tiefere Teile der GaN-Schicht. Bildlich gesprochen sieht man bei 3.2 eV durch die oberen GaN-Schichten hindurch und misst die unteren, bis ab etwa 3.4 eV die oberen Schichten anfangen zu absorbieren.

Die Notwendigkeit der Berücksichtigung des Ladungsträgerprofils ist an den Messdaten der 10 ps *delay-time* Messung in Abb. 75 (siehe Anhang) aufgezeigt.

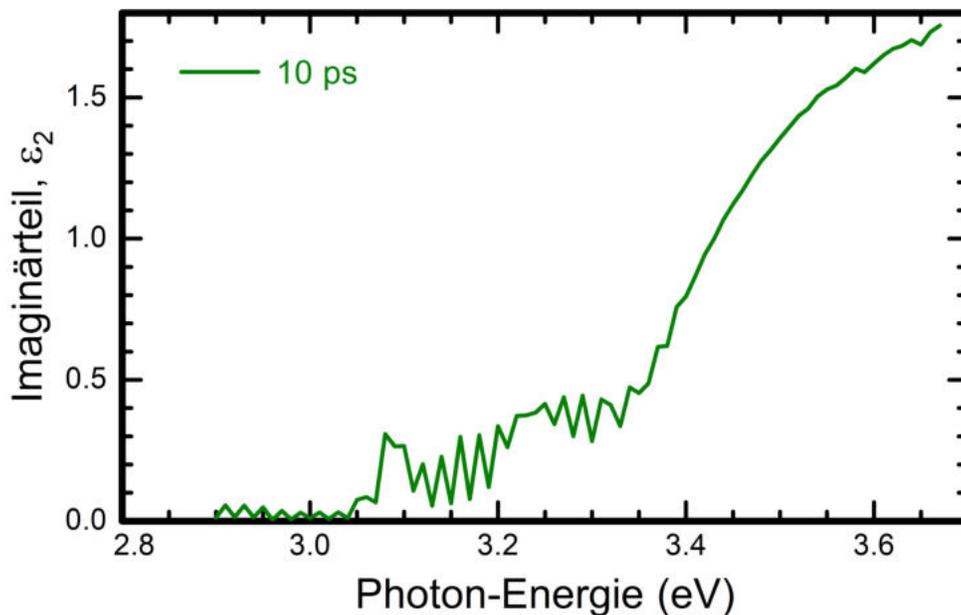


Abbildung 20: Imaginärteil ϵ_2 der Dielektrischen Funktion, bestimmt ohne Ladungsträgerprofil im Schichtmodell bei einer *delay-time* von 10 ps.

In der verwendeten Analyse-Software WVASE32 stehen zwei Möglichkeiten zur Verfügung, um das Ladungsträgerprofil zu modellieren. Zunächst gibt es das sogenannte *EMA-grading* (dt.: Abstufung), welches ähnlich zur Rauigkeitsschicht eine prozentuale Mischung aus zwei einzelnen Schichten vornimmt (siehe Abb. 21). Hierbei besteht die oberste Teilschicht zu 100% aus der DF des angeregten GaN und die unterste Teilschicht zu 100% aus der DF des unangeregten GaN. Der Begriff 'unangeregt' bezieht sich hierbei jedoch nur auf den Vergleich zur obersten Schicht. Auch

die DF des unangeregten GaN kann durch Ladungsträger beeinflusst sein. Zwischen der obersten und der untersten Teilschicht wird das Mischungsverhältnis über einen stetigen Verlauf geändert. Das so entstehende Modell für die gesamte GaN-Schicht ist somit nur noch von der DF des angeregten und der des unangeregten GaN abhängig. Jedoch ist dies nur eine Approximation, da ein EMA-*grading* kein tatsächliches DF-Profil beschreibt. Die zweite Möglichkeit ist die sogenannte FBG-Schicht (engl.: *function based grading*). Hiermit lassen sich einzelne Parameter einer DF über die Schichtdicke variieren. So kann beispielsweise der E_0 -Parameter eines PSEMI-M0 von Schichtunterseite bis Schichtoberseite nach einem beliebigen Verlauf geändert werden, was einer tiefenabhängigen Variation der Absorptionskante entspricht. Somit könnte zwar die gesamte DF der GaN-Schicht modelliert werden, bedauerlicherweise ist eine FBG-Schicht jedoch aufgrund ihrer funktionalen Zusammenhänge nicht pbp-fähig, was ihren Nutzen für die Bestimmung der DF einschränkt.

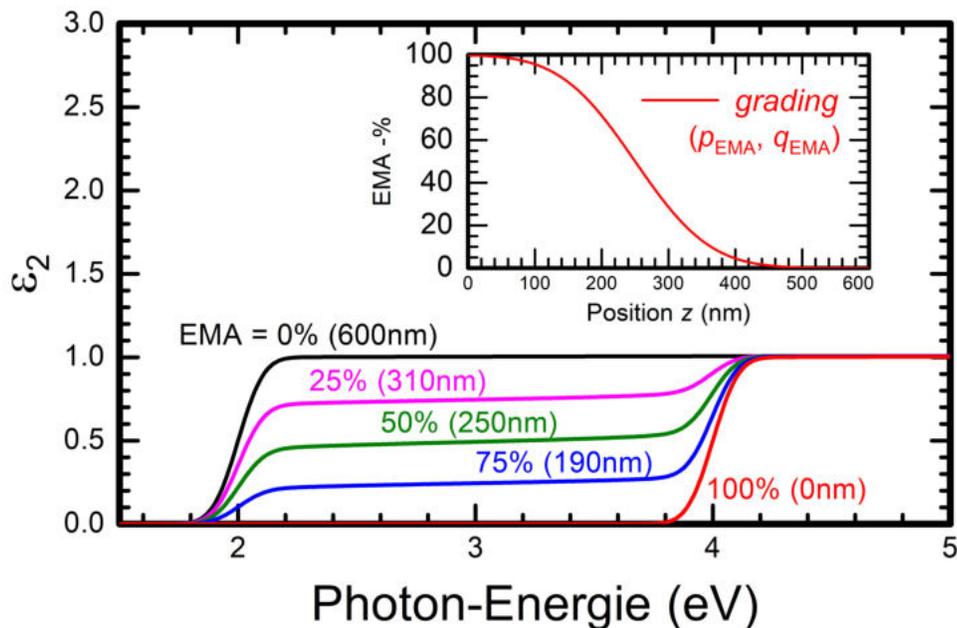


Abbildung 21: Veranschaulichung der Funktionsweise der EMA (engl.: *effective medium approximation*) -Schicht bzw. des EMA-*gradings* am Beispiel zweier Materialien mit gleicher Amplitude und Verbreiterung, aber unterschiedlichen Bandlücken (Material A: 2 eV und Material B: 4 eV). Der EMA-%-Gehalt gibt an, wie viel Prozent von Material B in Material A gemischt werden. Folglich bedeuten 100%, dass es sich um reines Material B hält. Zusätzlich ist das tiefenabhängige Profil des EMA-% im EMA-*grading* dargestellt. Beschrieben wird die *error-function* durch die Position des Wendepunktes p_{EMA} und die Verbreiterung q_{EMA} . Der Imaginärteil der Dielektrischen Funktion ϵ_2 ist für verschiedene EMA-%-Gehalte (bzw. Positionen) gemäß des EMA-*gradings* dargestellt.

Um die GaN-Schicht korrekt zu beschreiben und die DF zu bestimmen, wurde eine Kombination aus beiden Profil-Varianten angewendet. Zunächst wird die Ladungsträgerkonzentration als Funktion der Position in der Schicht abgeschätzt. Das resultierende Profil (z. B. Abb. 14) wird dann über den Vielteilchen-Formalismus mittels Gl. (4.25) in Übergangsenergien umgerechnet. Der so entstandene Verlauf lässt sich als *error-function* modellieren und dient als Grundlage für den funktionalen Zusammenhang in der FBG-Schicht:

$$E_{CV}^{\text{FBG}}(z) = G \cdot \left[\operatorname{erf} \left(\frac{z-p}{q} \right) + 1 \right] + E_{\text{unex}} \quad , \quad G = \frac{E_{\text{exci}} - E_{\text{unex}}}{2}. \quad (6.5)$$

Hierbei bezeichnen E_{exci} und E_{unex} die Absorptionsenergien des angeregten und unangeregten GaN, p ist die Position des Wendepunktes der modellierten *error-function* und q deren Verbreiterung. Als variable Parameter in der FBG-Schicht werden $A0$, $E0$ und $B0$ des PSEMI-M0 Oszillators verwendet. Die Annahme ist also, dass sich vor allem die Amplitude, Energieposition und Verbreiterung der Absorptionskante in Abhängigkeit der verschieden starken Anregung verändern. Das Beispiel für den Verlauf von E_{CV} (soll dem $E0$ -Parameter im PSEMI-M0 entsprechen) über der Schichtdicke z ist für eine *delay-time* von 10 ps in Abb. 22 sichtbar.

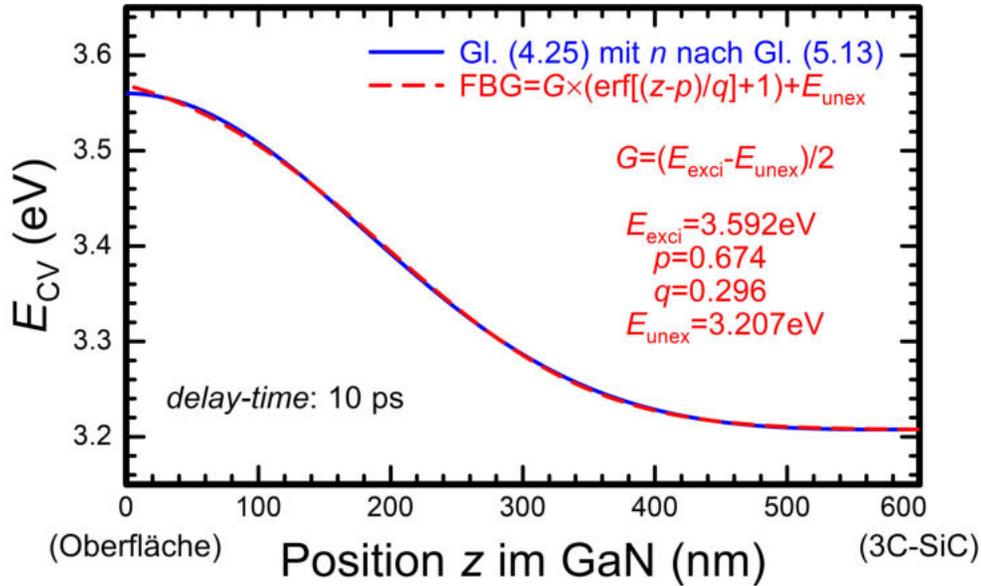


Abbildung 22: Graphische Darstellung des Modells zur Bestimmung des funktionalen Zusammenhangs der Übergangsenergie E_{CV} ($E0$ -Parameter des PSEMI-M0-Oszillators) im Ladungsträgerprofil der Probe GND2518 (engl.: *function based grading*, FBG) für eine Verzögerungszeit (engl.: *delay-time*) von 10 ps. Das Ladungsträgerprofil des Diffusions-Modells aus Gl. (5.13) wird genutzt, um Übergangsenergien (blau) gemäß Gl. (4.25) zu berechnen. Die FBG-Gleichung (rot) wird an diesen E_{CV} -Verlauf angepasst, woraus die angegebenen Parameter folgen.

Das Schichtmodell mit FBG-Schicht wird nun an die Messdaten angepasst. Hierbei können sämtliche Parameter frei variiert werden. Sobald eine Übereinstimmung erreicht ist, wird die FBG-Schicht durch ein EMA-*grading* ersetzt. Hierbei werden die gewonnenen Parameter für das angeregte und unangeregte GaN jedoch nicht verändert. Der Verlauf der prozentualen Mischung innerhalb der EMA-*grading*-Schicht wird ebenfalls als *error-function* angenommen. Die Form wird beschrieben durch die Parameter p_{EMA} und q_{EMA} . Es folgt ein weiterer Fit auf die Messdaten, jedoch werden nur diese EMA-*grading* Parameter (p_{EMA} , q_{EMA}) geändert, um den Unterschied zwischen FBG und EMA-*grading* auszugleichen. Anschließend wird ein pbp-Fit über die DF des angeregten GaN durchgeführt, was die pbp-DF an der Oberfläche der GaN-Schicht liefert. Diese kann für weitere Analysen genutzt werden. Zur Auswertung der trSE-Daten wurden für das Ladungsträgerprofil 30 Knotenpunkte gewählt, an denen die DF gemäß des FBG- oder des EMA-*gradings* erstellt wird. Bei der angegebenen Schichtdicke von ≈ 600 nm bedeutet dies, dass die durch den pbp-Fit ermittelte DF für die obersten 20 nm zb-GaN gilt.

6.2 Photolumineszenz

Im Gegensatz zur Ellipsometrie, welches ein Absorptions- bzw. Reflexionsexperiment ist, handelt es sich bei der Photolumineszenz (PL) um ein Emissionsexperiment. Hierbei werden, im Elektronenbild, Valenzelektronen optisch ins Leitungsband angeregt, aus dem sie strahlend zurück ins Valenzband rekombinieren. Der grundsätzlich verwendete Messaufbau ist in Abb. 23 dargestellt. Um zb-GaN optisch anzuregen wird ein 266 nm *continuous-wave Laser* (dt.: Dauerlichtlaser) mit 20 mW Ausgangsleistung verwendet. Das von der Probe emittierte Licht wird über ein Linsen- und Spiegelsystem gesammelt und durch einen Gittermonochromator mit 1200/mm Gitterdichte und anschließender CCD-Kamera (engl.: *charge-coupled device*) gemessen. Die Probe befindet sich währenddessen in einem mit flüssigem Helium gekühlten Kryostaten. Durch eine zusätzliche Heizung lassen sich Temperaturen zwischen 7 K (Tieftemperatur) und 295 K (Raumtemperatur) einstellen.

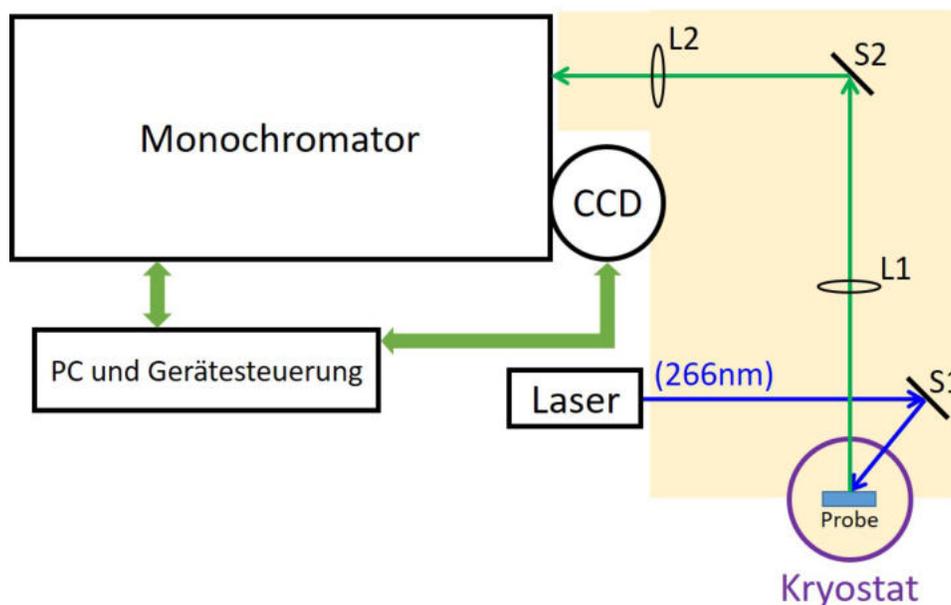


Abbildung 23: Schematischer Aufbau der Photolumineszenz-Messungen. Das Laserlicht der Wellenlänge von 266 nm (blau) wird über den Spiegel (S1) auf die Probe gelenkt. Das von dort emittierte Licht (grün) wird über eine Kombination von Linsen (L1, L2) und einem Umlenkspiegel (S2) in den Monochromator und CCD-Kamera (engl.: *charged coupled device*) fokussiert.

Neben dem Band-Band-Übergang zwischen Leitungs- und Valenzband sind in PL-Untersuchungen auch andere Übergänge messbar. Für diese Arbeit sind dies vor allem die sogenannten Donator-

Akzeptor-Paar-Übergänge (D^0A^0), welche den strahlenden Übergang eines Elektrons aus einem Donator-Niveau in ein Akzeptor-Niveau beschreiben. Die Energie dieses Übergangs entspricht folglich der fundamentalen Bandkante verringert um das Donator-Niveau E_D und dem Akzeptor-Niveau E_A . Zusätzlich muss jedoch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den ionisierten Donatoren und Akzeptoren berücksichtigt werden, welches auf folgende Gleichung für die Energie des D^0A^0 führt [83]:

$$E_{D^0A^0} = E_G - E_D - E_A + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_S} \left(\frac{4\pi n}{3} \right)^{1/3}. \quad (6.6)$$

Hierbei kann $\left(\frac{3}{4\pi n} \right)^{1/3}$ als mittlerer Abstand zwischen Donator und Akzeptor interpretiert werden [22]. Für die statische Dielektrizitätszahl ϵ_S ist im zb-GaN ein Wert von 9.44 bekannt [22], womit Gl. (6.6) genutzt werden kann, um das Donator- bzw. Akzeptor-Niveau zu bestimmen. Ein weiterer möglicher Übergang ist der Leitungsband-Akzeptor-Übergang (e^-A^0), bei dem Leitungsband-Elektronen in das Akzeptor-Niveau fallen. Dieser Übergang eignet sich entsprechend zur Bestimmung des Akzeptor-Niveaus einer Probe. Die verschiedenen Übergänge sind schematisch dargestellt in Abb. 24. Hier ist zudem der Einfluss steigender Temperatur angedeutet, bei dem sich die Bandlücke aufgrund von Elektron-Phonon-Wechselwirkungen verringert. Gleichzeitig ist bei höheren Temperaturen vor allem der e^-A^0 dominant.

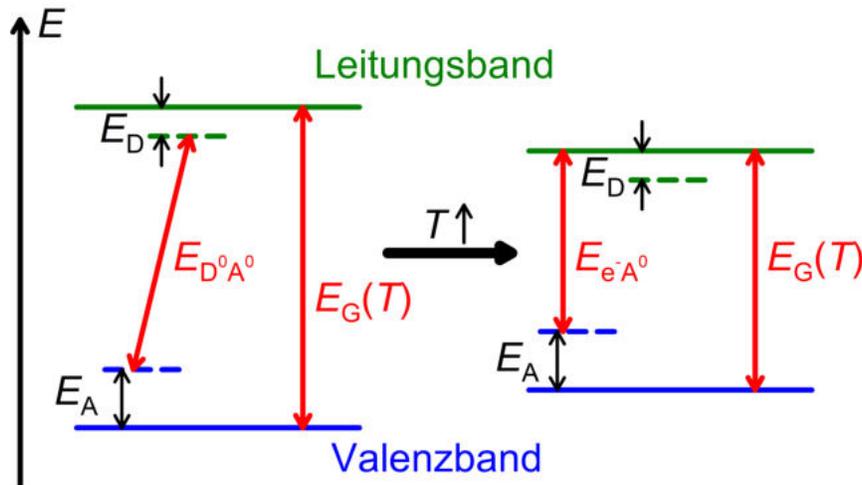


Abbildung 24: Schematische Darstellung der in dieser Arbeit gemessenen Übergänge in Photolumineszenz-Untersuchungen. Der Coulomb-Beitrag zum Donator-Akzeptor-Paarübergang ($E_{D^0A^0}$) soll durch die Verkippung im Vergleich zum Band-Band-Übergang ($E_G(T)$) symbolisiert werden. Gezeigt ist außerdem der Einfluss von erhöhter Temperatur (rechts), bei dem ein Leitungsband-Akzeptor-Übergang ($E_{e^-A^0}$) wahrscheinlicher ist. Es wird dabei angenommen, dass Donator- und Akzeptorniveaus (E_D , E_A) nicht temperaturabhängig sind. Bearbeitet nach [65].

Zur Modellierung der aufgenommenen Spektren wird die Linienform beschrieben. Hierfür werden für verschiedene Übergänge verschiedene Modelle verwendet. Ein Band-Band-Übergang eines hochdotierten Materials wird in dieser Arbeit beispielsweise als Produkt aus der Zustandsdichte und Fermi-Dirac-Verteilung modelliert. Um eine bessere Übereinstimmung mit der Linienform des Spektrums zu erreichen, wird die Modell-Linienform zusätzlich mit einer Gauß-Funktion verbreitert.

6.3 Raman-Spektroskopie

Als unterstützende Untersuchungen wurden Raman-Messungen an den zb-GaN-Proben durchgeführt. Diese beruhen grundsätzlich auf inelastischen Streuungen von Licht an Atomen und Molekülen. Auf diese Weise können unter anderem Phononen angeregt und bestimmt werden. Der Aufbau des verwendeten Raman-Spektrometers ist in Abb. 25 skizziert. Für die Untersuchungen wurde ein *continuous-wave* 532 nm Laser als Lichtquelle verwendet, während ein x100 Objektiv genutzt wurde, um den Laser auf die Probe zu fokussieren. Des Weiteren waren Polarisator und Analysator parallel zueinander eingestellt und es wurde kein Neutraldichtefilter (ND-Filter) zur zusätzlichen Abschwächung des einfallenden Lasers benötigt. Das Gitterspektrometer wurde, wie in Abb. 25 dargestellt, im *single-stage*- (dt.: einstufiger) Modus betrieben.

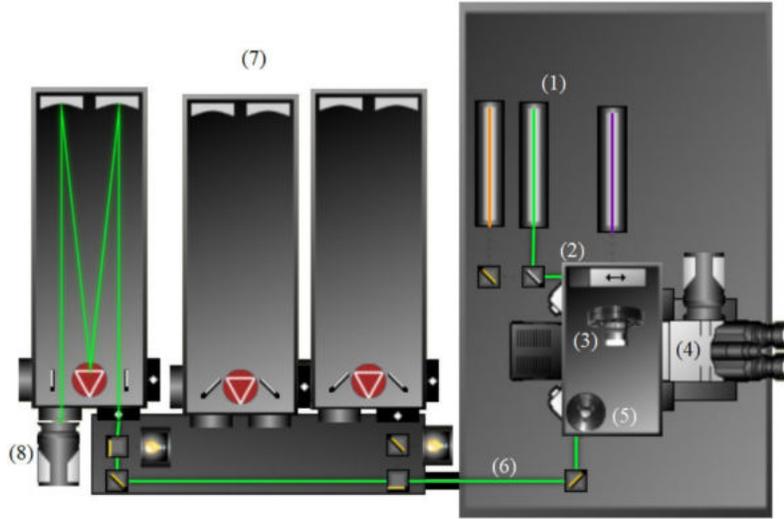


Abbildung 25: Aufbau der Raman-Apparatur mit folgenden Bestandteilen: (1) Laser, (2) Polarisator, (3) Neutraleichtfilter, (4) Mikroskop, (5) Kantenfilter, (6) Analysator, (7) Gitterspektrometer, (8) Detektor. Bearbeitet nach [113].

Bedauerlicherweise ist das TO-Phonon von Zinkblende-Materialien Raman-verboden [114], kann also nicht in Messungen auftreten. Dies ist eine Folge der Raman-Auswahlregeln und der Kristallsymmetrie. Stattdessen ist es für hochdotierte Proben jedoch möglich, dass gekoppelte Moden aus LO-Phonon und Plasmonen (LPP-Moden) beobachtet werden können [115, 116]. Die Frequenz der LPP-Moden kann über folgende Gleichung näherungsweise berechnet werden [67]:

$$\omega_{\text{LPP}\pm}^2 = \frac{\omega_{\text{LO}}^2 + \omega_{\text{P}}^{*2}}{2} \pm \sqrt{\frac{(\omega_{\text{LO}}^2 + \omega_{\text{P}}^{*2})^2}{4} - \omega_{\text{TO}}^2 \omega_{\text{P}}^{*2}}. \quad (6.7)$$

Hierbei entspricht $\omega_{\text{P}}^* = \frac{\omega_{\text{P}}}{\sqrt{\epsilon_{\infty}}}$ der abgeschirmten Plasmafrequenz, während ω_{TO} , ω_{LO} , ω_{P} und ϵ_{∞} aus Kap. 3.1 bekannt sind.

Das gemessene Raman-Spektrum kann durch die Dielektrische Verlustfunktion $\Omega(\omega)$ beschrieben werden [117]:

$$\Omega(\omega) = \text{Im} \left(-\frac{1}{\epsilon(\omega)} \right) = \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2}. \quad (6.8)$$

Diese wiederum steht über Gl. (6.8) mit der DF in Verbindung. Es muss also eine Übereinstimmung zwischen der mit IRSE bestimmten DF und dem aufgenommenen Raman-Spektrum geben.

7 Ergebnisse

In diesem Kapitel werden sowohl die Messdaten als auch deren Analyse für die zb-GaN und zb-AlGaN Proben diskutiert. Hierbei wird in die verschiedenen Spektralbereiche und Messmethoden unterteilt.

7.1 GaN-Proben

Die in Kap. 2.1 aufgezählten zb-GaN Proben wurde mittels sämtlicher in Kap. 6 beschriebenen Experimenten untersucht. Die Ergebnisse dieser Messungen werden hier dargestellt, modelliert und miteinander verknüpft. Dabei ergeben sich komplexe Zusammenhänge, die die Theorie aus den Kap. 3-5 bestätigen, so dass ein in sich geschlossenes Gesamtbild der optischen Eigenschaften dieser Proben entsteht.

7.1.1 Infraroter Spektralbereich

Die Untersuchungen der Proben beginnen im infraroten Spektralbereich durch IRSE-Messungen. Für die undotierte Referenzprobe GND2518 sind die Messdaten von Ψ und Δ in Abb. 26 zu sehen. Der gezeigte Spektralbereich ist nur ein Bruchteil des tatsächlich gemessenen, da sich nach 1200 cm^{-1} keine signifikanten Änderungen des Spektrums mehr ergeben. Eine Darstellung des gesamten Spektralbereichs ist im Anhang zu finden (siehe Abb. 72). Zwischen 500 cm^{-1} und 1000 cm^{-1} sind die Phonon-Beiträge sowohl der zb-GaN-Schicht als auch des 3C-SiC/Si-Substrates sichtbar. Anschließend folgen Fabry-Pérot-Oszillationen aufgrund von Schichtdicken-Interferenzen. Die zb-GaN- und die 3C-SiC-Schichten erzeugen durch ihre deutlich verschiedenen Dicken verständlicherweise unterschiedliche Interferenzen. Die durch die 3C-SiC-Schicht entstehenden hochfrequenten Oszillationen sind im infraroten Spektralbereich gut sichtbar. Auf die durch zb-GaN entstehenden Oszillationen wird in Kap. 7.1.2 noch genauer eingegangen, da sich UVSE-Messungen durch ihre geringere Wellenlänge für eine genauere Analyse der dünnen zb-GaN-Schicht eignen.

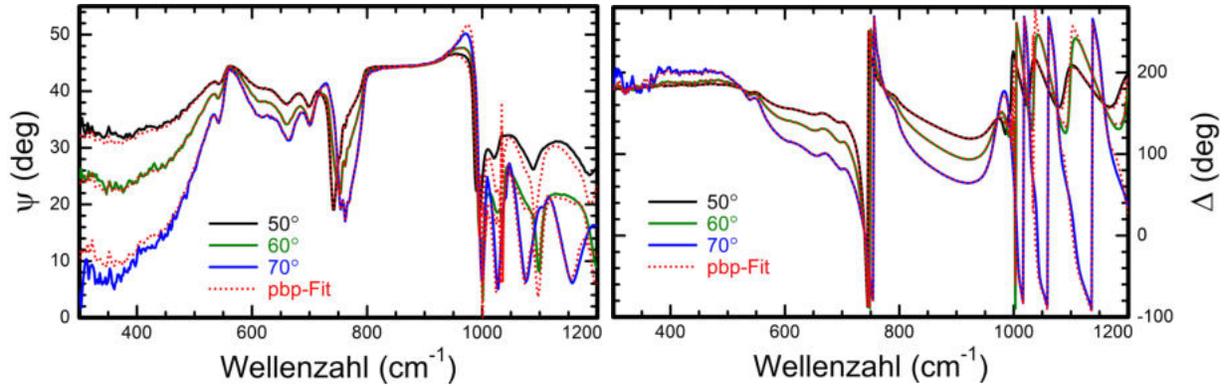


Abbildung 26: IRSE-Messdaten (durchgezogen) und pbp-Fit (gepunktet) in Ψ (links) und Δ (rechts) von GND2518 für drei verschiedene Einfallswinkel (50° , 60° und 70°). Bearbeitet nach [81].

Die Messdaten konnten durch ein Schichtmodell, welches der Probenstruktur entspricht, ziel führend beschrieben werden. Hierbei wurde die zb-GaN-Schicht durch eine Modell-DF nach Gl. (3.20) modelliert. Die optischen Eigenschaften des Substrates konnten aus früheren Untersuchungen verwendet werden. Der anschließende pbp-Fit ist ebenfalls in Abb. 26 dargestellt. Die auf diese Weise gewonnene pbp-DF wurde dann erneut durch eine Modell-DF nach Gl. (3.20) angepasst, um die Parameter für den Phonon-Beitrag zu erhalten. Da es sich hier um eine un-dotierte Probe handelt, ist kein Plasmon-Beitrag vorgesehen. Die Auswertung ist in Abb. 27 zu finden, die eine treffende Übereinstimmung zwischen Modell- und pbp-DF erkennen lässt.

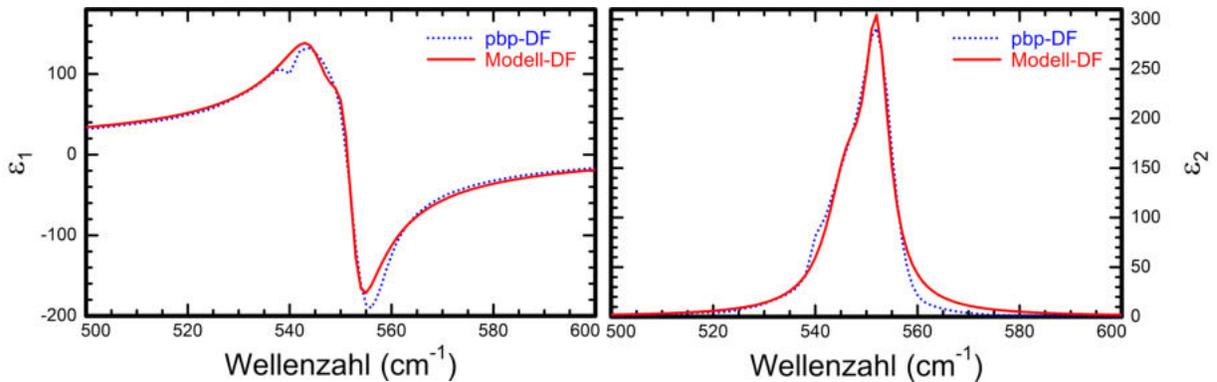


Abbildung 27: Modell-Anpassung (rot, durchgezogen) von Gl. (3.20) an die pbp-DF von GND2518 (blau, gepunktet) im infraroten Spektralbereich, getrennt in Real- (ε_1 , links) und Imaginärteil (ε_2 , rechts). Bearbeitet nach [81].

Eine genauere Betrachtung des Imaginärteils, zu sehen in Abb. 28, enthüllt eine Besonderheit des Phonon-Beitrags in zb-GaN. Es ist eine niederenergetische Schulter zu erkennen, die das

Spektrum asymmetrisch erscheinen lässt. Diese Schulter wird durch die Berücksichtigung eines weiteren Phonon-Terms mit kleinerer Amplitude und größerer Verbreiterung, empirisch beschrieben. Laut Theorie ist jedoch in zb-GaN nur ein TO-Phonon vorgesehen. Diese Aufspaltung konnte bereits früher beobachtet werden [70, 71, 118]. Es handelt sich hierbei um anharmonische Effekte die aus der 2PDOS stammen [68]. Diese anharmonische Schulter sitzt um 7 cm^{-1} verschoben zum eigentlichen TO-Phonon. Ähnliche Effekte sind im wz-GaN messbar [122, 123].

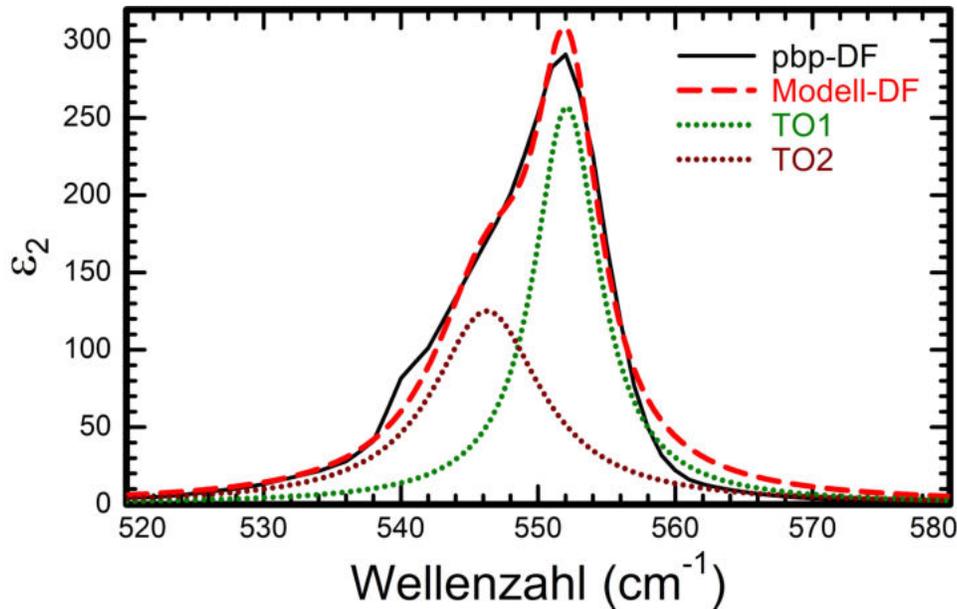


Abbildung 28: Vergrößerte Darstellung des Imaginärteils der Dielektrischen Funktion von GND2518 um die Phonon-Resonanzfrequenz herum. Zwei Phononen-Beiträge (grün, braun) werden benötigt, um die pbp-DF (schwarz) zu modellieren (rot).

Mit der gleichen Herangehensweise wie für die undotierte Probe GND2518 wird nun die höchst-dotierte Probe GND2524 betrachtet. Die Messdaten für Ψ und Δ in Abb. 29 zeigen bereits deutliche Unterschiede im Vergleich zu Abb. 26. Während die Phonon-Beiträge unterhalb von 1000 cm^{-1} nur noch eine untergeordnete Rollen spielen, wird das Spektrum durch den Beitrag der Plasmonen in Form der Plasma-Kante bei 4000 cm^{-1} dominiert. Leichte Fabry-Pérot-Oszillationen sind auch hier für Energien über 1000 cm^{-1} zu erkennen. Der pbp-Fit liefert auch für diese Probe eine überzeugende Übereinstimmung mit kleinen Abweichungen für den Bereich hoher Wellenzahlen. Die resultierende pbp-DF sowie die Modell-Anpassung dieser sind in Abb. 30 zu sehen.

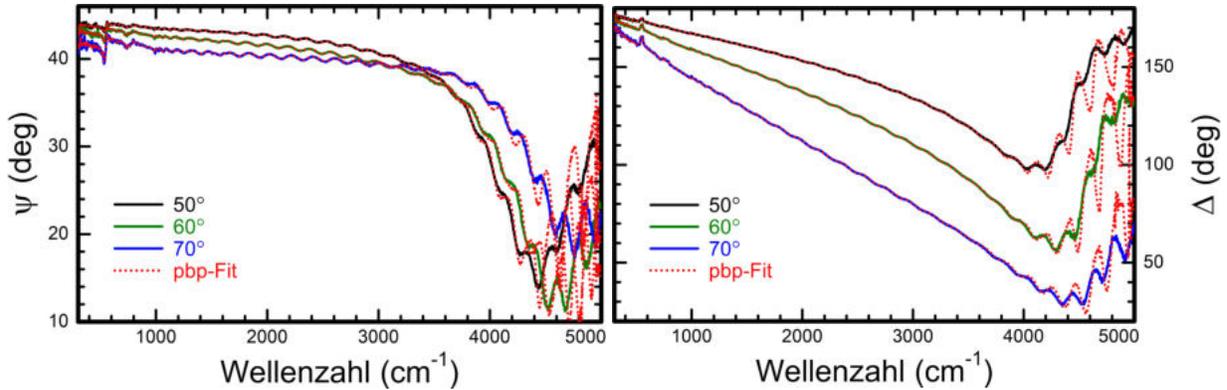


Abbildung 29: IRSE-Messdaten (durchgezogen) und pbp-Fit (gepunktet) in Ψ (links) und Δ (rechts) von GND2524 für drei verschiedene Einfallswinkel (50° , 60° und 70°).

Im Gegensatz zu Abb. 27 ist für die hochdotierte GND2524 ein dominanter Plasmon-Beitrag zur DF erkennbar. Aus dem Absinken des Realteils bzw. dem Ansteigen des Imaginärteils der DF für kleine Wellenzahlen in Abb. 30 lässt sich eindeutig die Plasmafrequenz ω_p sowie die Plasmapverbreiterung γ_p bestimmen. Dennoch ist auch hier das typische Lorentz-Oszillator-Verhalten des Phonon-Beitrags vorhanden. Die TO-Frequenzen sind dabei in beiden untersuchten Proben identisch, jedoch unterscheiden sich die energetischen Positionen der anharmonischen Schultern um einige Wellenzahlen.

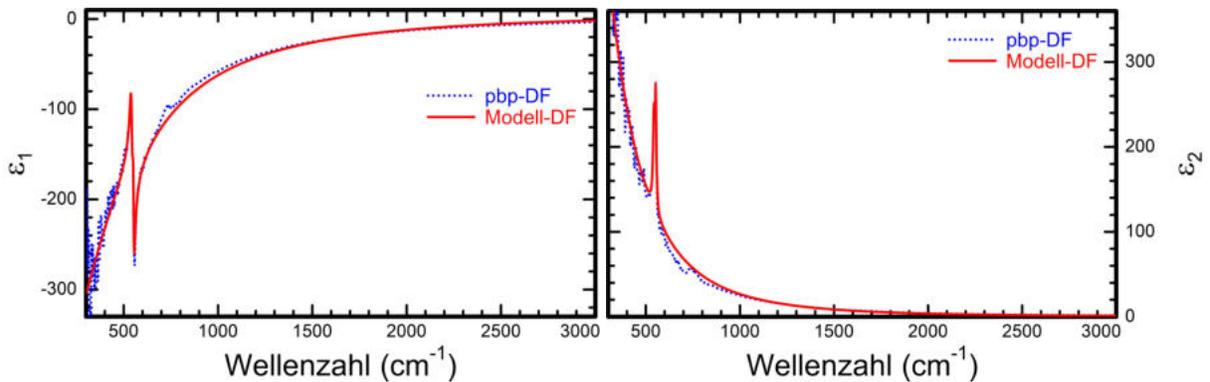


Abbildung 30: Modell-Anpassung (rot, durchgezogen) von Gl. (3.20) an die pbp-DF von GND2524 (blau, gepunktet) im infraroten Spektralbereich, getrennt in Real- (ϵ_1 , links) und Imaginärteil (ϵ_2 , rechts).

Die pbp- und Modell-DF für sämtliche zb-GaN Proben werden in Abb. 31 miteinander verglichen. Die durch die Modell-Anpassung ermittelten Parameter der DF sind in Tab. 5 zusammengefasst. Der wachsende Einfluss des Plasmon-Beitrags ist mit steigender Ladungsträgerkonzentration deutlich sichtbar, während der Phonon-Beitrag keine signifikante Änderung von Probe

zu Probe aufweist. Anders verhält sich hingegen der Beitrag der anharmonischen Schulter. Das Amplitudenverhältnis aus dem TO-Phonon und der anharmonischen Schulter ist für die meisten Proben sehr ähnlich. Ausnahmen bilden die beiden höchstdotierten Proben. Das Ergebnis der Model-Anpassung an die pbp-Daten ordnet hier der anharmonischen Schulter eine größere Amplitude als dem tatsächlichen Phonon zu. Dies ist kontraintuitiv. Leider konnte bisher keine zufriedenstellende Begründung für dieses Phänomen gefunden werden.

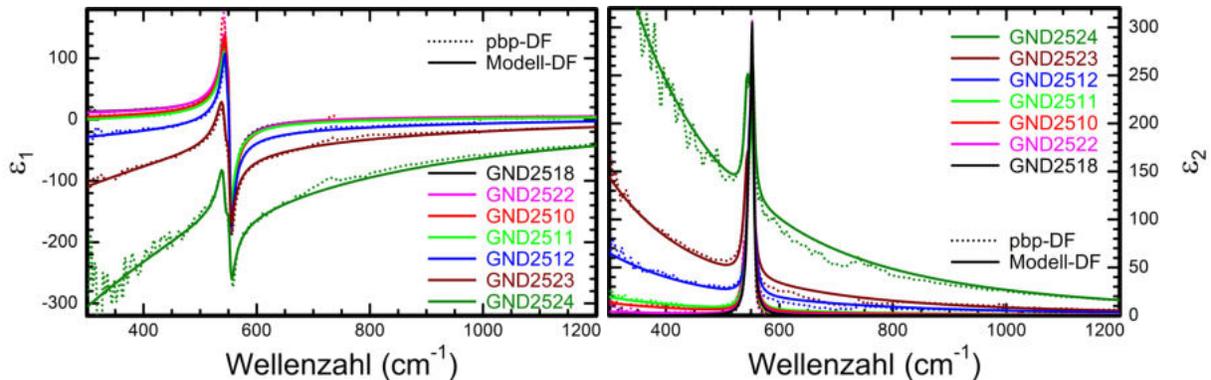


Abbildung 31: Vergleich der pbp- (gepunktet) und Modell- (durchgezogen) Dielektrischen Funktionen (links: Realteil ϵ_1 , rechts: Imaginärteil ϵ_2) aller zinkblende GaN-Proben im infraroten Spektralbereich. Bearbeitet nach [81].

Die Tatsache, dass die TO-Frequenzen nicht abhängig von der Ladungsträgerkonzentration sind, wird so nicht erwartet. Theoretisch sollte sich die Resonanzfrequenz einer TO-Schwingung durch den sogenannten *Size-Effect* sowie den *Electronic-Effect* mit zunehmender Dotierstoffkonzentration bzw. Ladungsträgerdichte abnehmen [119, 120]. Hierbei nehmen die unterschiedlichen Größen (engl.: *size*) der Dotieratome sowie die Deformation des Leitungsbandes einen Einfluss auf die Gitterstruktur des Materials und ändern somit die Phonon-Eigenschaften. In wz-GaN konnte dies mittels Raman-Untersuchungen festgestellt werden [121, 122]. Vermutlich ist an dieser Stelle die Auflösung der durchgeführten IRSE-Messungen nicht ausreichend, da die Frequenz-Verschiebung durch die genannten Effekte kleiner ist als 1 cm^{-1} .

Tabelle 5: Parameter der Dielektrischen Funktion im infraroten Spektralbereich aus Gl. (3.20) für die zinkblende GaN-Proben: Hocheenergiebeitrag ε_∞ , Plasmafrequenz ω_p , Plasmasverbreiterung ω_p , sowie Amplitude S_l , Resonanzfrequenz $\omega_{\text{TO},l}$ und Verbreiterung $\gamma_{\text{TO},l}$ des l -ten transversal optischen Phonons. Zusätzlich sind die, aus Hall-Messungen bestimmte, Ladungsträgerkonzentration n_{Hall} sowie die in Abb. 32 bestimmte optische Ladungsträgerkonzentration n_{opt} angegeben. Bearbeitet nach [81].

Probe	n_{Hall} (cm^{-3})	ε_∞	S_1	$\omega_{\text{TO},1}$ (cm^{-1})	$\gamma_{\text{TO},1}$ (cm^{-1})	S_2	$\omega_{\text{TO},2}$ (cm^{-1})	$\gamma_{\text{TO},2}$ (cm^{-1})	ω_p (cm^{-1})	γ_p (cm^{-1})	n_{opt} (cm^{-3})
GND2524	$3,7 \times 10^{20}$	7.11	1.85	553	8.15	2.18	543	11.2	8841	394	1.75×10^{20}
GND2523	$8,7 \times 10^{19}$	5.75	1.70	552	6.79	2.78	543	13.7	5133	356	5.69×10^{19}
GND2512	$3,8 \times 10^{19}$	5.97	2.38	553	6.38	2.04	547	8.81	3607	479	2.81×10^{19}
GND2511	$7,6 \times 10^{18}$	6.75	2.29	552	6.51	1.98	546	9.75	1941	460	8.06×10^{18}
GND2522	$2,7 \times 10^{18}$	6.99	2.82	552	6.06	2.16	546	9.55	886	459	5.43×10^{18}
GND2510	$1,7 \times 10^{18}$	6.83	2.84	552	6.24	1.92	546	8.63	1595	438	1.73×10^{18}
GND2518	–	5.99	2.72	552	5.85	2.11	546	9.53	–	–	–

Mithilfe der bestimmten Plasmafrequenzen werden nun in Abb. 32 die optische Ladungsträgerdichten n_{opt} der dotierten Proben über Gl. (4.31) bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tab. 5 angegeben. Grundlage hierfür sind natürlich die in Kap. 4.3 getroffenen Annahmen. Somit können außerdem die effektiven Massen, sowohl die Fermi- als auch die optische Masse, der dotierten Proben ermittelt werden. Diese sind in Abb. 33 gezeigt.

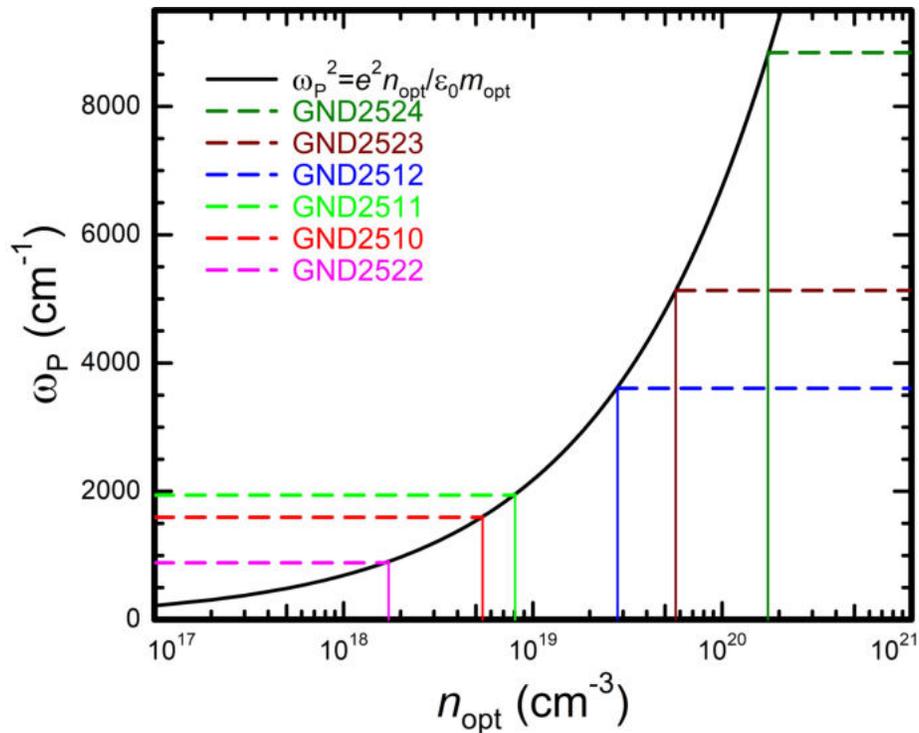


Abbildung 32: Plasmafrequenz in Abhängigkeit der optischen Ladungsträgerdichte, berechnet nach Gl. (4.31). Der Vergleich der berechneten ω_P mit den gemessenen Werten für alle Proben liefert n_{opt} (siehe Tab. 5). Bearbeitet nach [81].

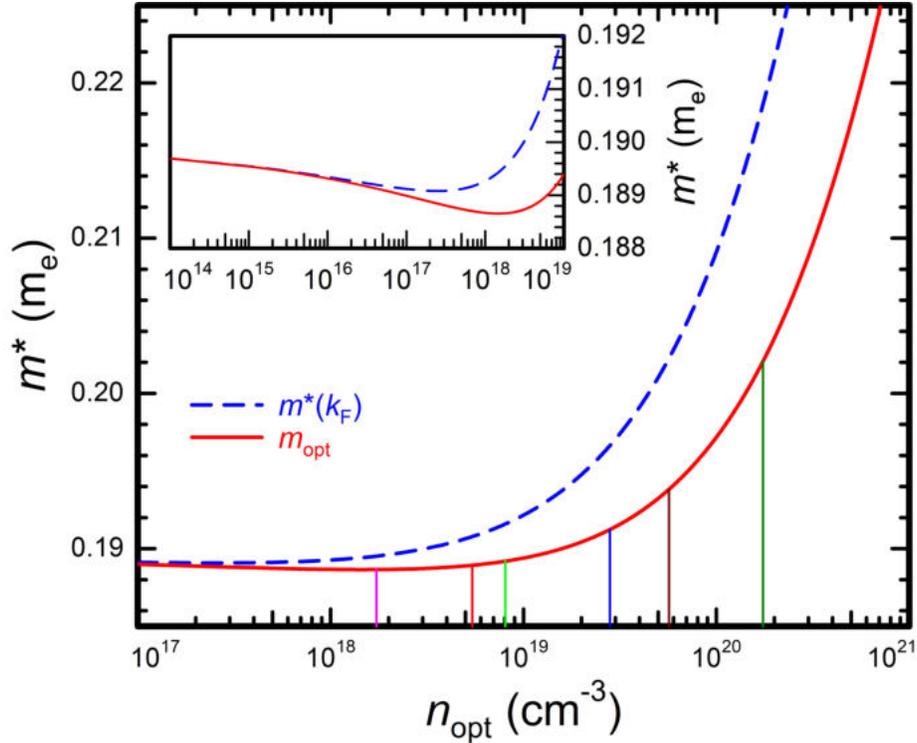


Abbildung 33: Optische effektive Masse und effektive Masse am Fermi-Vektor in Abhängigkeit der optischen Ladungsträgerdichte. Die optischen Massen der dotierten GaN Proben sind mit den vertikalen Linien, entsprechend den Farben in Abb. 32 markiert. Zusätzlich ist eine vergrößerte Darstellung eingefügt, die das anfängliche Abnehmen der effektiven Massen aufzeigt. Bearbeitet nach [81].

Es verbleibt die Diskussion, welche Ladungsträgerkonzentration für die weiteren Untersuchungen genutzt werden sollte. Obwohl Hall-Messungen sehr präzise durchgeführt werden können, führt das leitfähige Substrat der Proben zu uneindeutigen Ergebnissen, die stark vom verwendeten Modell abhängig sind. Auf der anderen Seite enthält die Bestimmung der optischen Ladungsträgerkonzentration einige Modell-Annahmen, die für das durchgeführte Experiment nicht eindeutig zutreffen. Ein Vergleich zwischen optischer und Hall-Ladungsträgerdichte in Abb. 34 zeigt, dass sich beide in der gleichen Größenordnung befinden. In dieser Arbeit werden für die weiteren Untersuchungen und Analysen die optischen Ladungsträgerkonzentrationen verwendet.

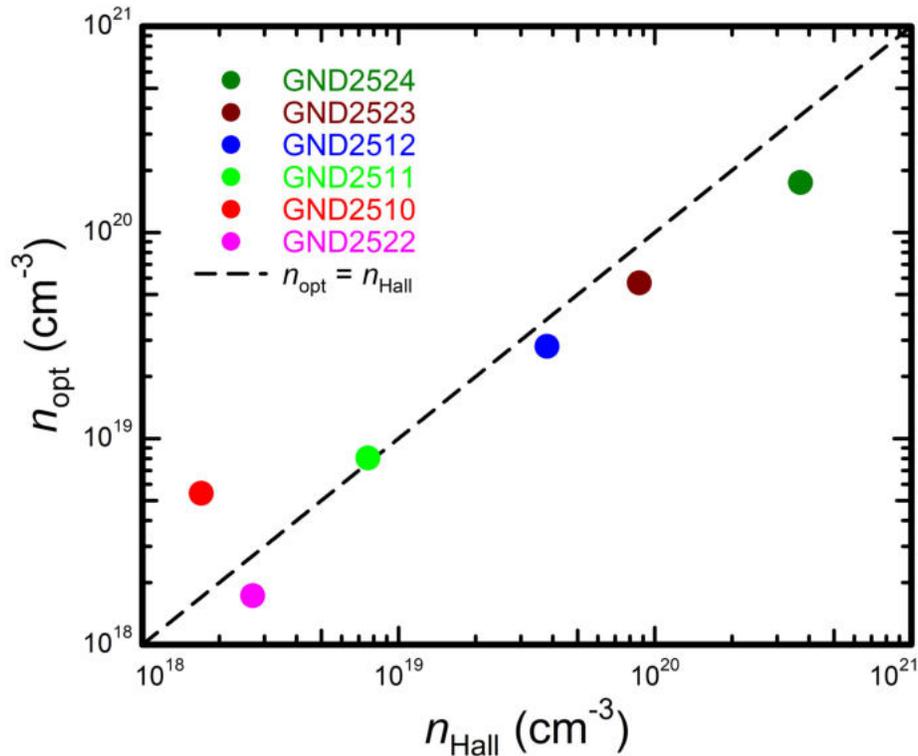


Abbildung 34: Vergleich der Ladungsträgerdichte ermittelt durch Hall-Messungen (n_{Hall}) oder durch Infrarot-Ellipsometrie (n_{opt}).

Zusätzlich zu den IRSE-Messungen wurden im infraroten Spektralbereich auch Untersuchungen mit Raman-Spektroskopie durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Messungen sind für die beiden höchstdotierten Proben in Abb. 35 dargestellt. Hier müssen die Bereiche ober- und unterhalb von 2000 cm^{-1} getrennt betrachtet werden. Im niederen Wellenzahlen-Bereich wird das Spektrum durch die Phonon-Beiträge des 3C-SiC/Si-Substrates dominiert. Es konnte kein Raman-Signal der zb-GaN-Phonon gemessen werden. Dies ist jedoch nicht verwunderlich, da das TO-Phonon von Materialien mit Zinkblende-Struktur in (001)-orientierten Proben Raman-verboden ist [114] und somit nicht in den Messungen auftreten darf. Auf der anderen Seite ergibt sich die Frage, wie das TO-Phonon des 3C-SiC gemessen werden kann. Hierfür gibt es verschiedene Erklärungsansätze. Es ist z. B. möglich, dass Einschlüsse oder sonstige durch Verunreinigung hervorgerufene Effekte die Kristallqualität beeinflussen, wodurch die Raman-Auswahlregeln gebrochen werden. Alternativ dazu ist es vorstellbar, dass das 3C-SiC Substrat durch die Fokussierung auf die zb-GaN-Schicht teilweise schräg beleuchtet wird, was andere Auswahlregeln zur Folge hat [124].

Grund für diese Annahme ist die sehr kurze Brennweite des Objektivs im optischen Aufbau, welches nötig ist, um den Laser-Spot in der 400 nm zb-GaN-Schicht zu fokussieren. Eine weitere Möglichkeit ist der Effekt des *forward-scattering*. Gemeint ist hierbei die Tatsache, dass bei Transmissionsexperimenten das TO-Phonon erlaubt ist und damit ein Signal erzeugt. Wird dieses Signal nun von der nächsten Grenzschicht, zum Si hin, reflektiert, kann auch auf diese Weise ein sonst verbotenes TO-Signal gemessen werden.

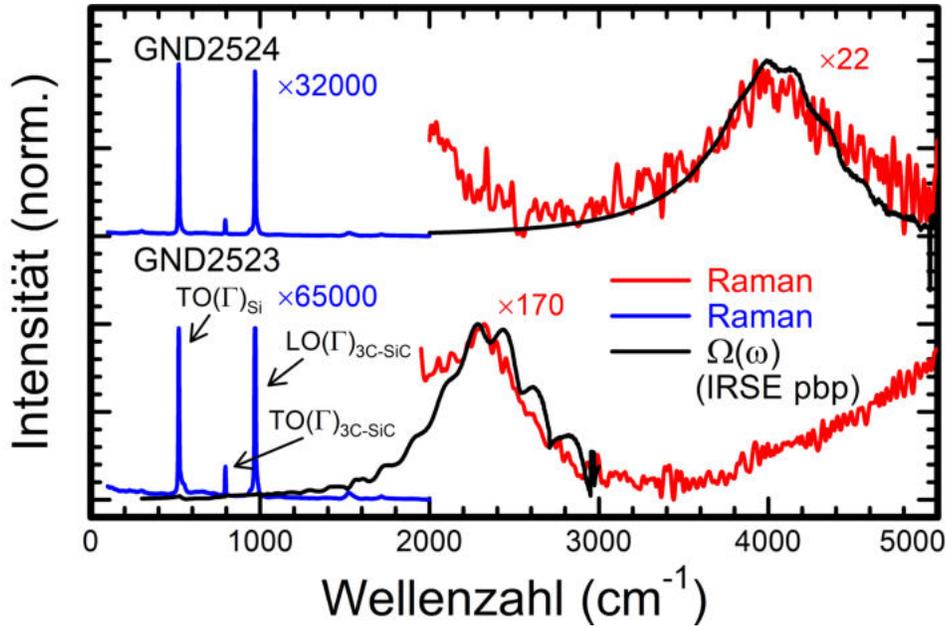


Abbildung 35: Raman-Spektren der Proben GND2524 und GND2523, unterschiedlich skaliert für den Bereich unterhalb (blau) und oberhalb (rot) von 2000 cm^{-1} . Die Phonon-Beiträge des Substrates sind entsprechend markiert. Die Verlustfunktion ($\Omega(\omega)$, schwarz, Gl. (6.8)), gewonnen aus den pbp-Daten der Infrarot-Ellipsometrie (IRSE), zeigt eine eindeutige Übereinstimmung mit den Raman-Spektren. Bearbeitet nach [81].

Im höheren Wellenzahlen-Bereich hingegen ist ein Raman-Signal zu erkennen, welches als LPP-Mode zu interpretieren ist [115, 116]. Dieses Signal ist deutlich schwächer als jedes Signal, welches vom Substrat stammt und ist daher anders normiert, als der niedrigere Wellenzahlen-Bereich. Bildet man die in Kap. 6.3 eingeführte Verlustfunktion $\Omega(\omega)$ aus der pbp-DF, gemessen mittels IRSE, so stimmt diese sehr gut mit dem Raman-Signal überein. Dies ist zum einen die Bestätigung dafür, dass es sich bei dem Signal um eine ladungsträgerabhängige LPP-Mode handelt, zum anderen eine unabhängige Bestimmung der Plasmafrequenz ω_p . Die Modell-Kurve für die LPP-Moden ist in Abb. 36 dargestellt. Zusätzlich sind die erwarteten Frequenzen für die sechs

dotierten Proben über ihrer Plasmafrequenz eingezeichnet. Für die GND2524 und GND2523 konnten die theoretisch ermittelten LPP-Frequenzen durch die Raman-Messungen (Abb. 35) bestätigt werden. Leider konnten in den Raman-Spektren der restlichen Proben keine LPP-Signale sichtbar gemacht werden.

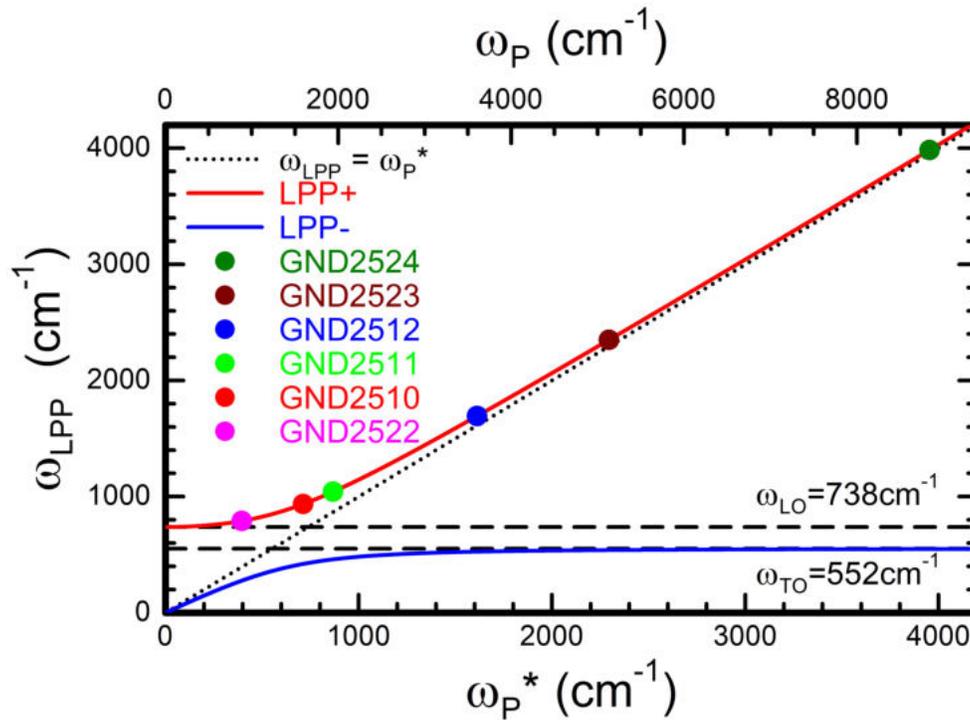


Abbildung 36: Theoretische Berechnung der Longitudinal-Phonon-Plasmon gekoppelten Moden (LPP±, Gl. (6.7)) im zinkblende GaN, dargestellt über der abgeschirmten Plasmafrequenz (ω_p^*) sowie der in Kap. 3.1 eingeführten Plasmafrequenz (ω_p). Die zu erwartenden Werte der LPP- Mode der sechs dotierten Proben ist ebenfalls eingezeichnet, von denen jedoch nur GND2524 und GND2523 experimentell nachgewiesen werden konnten (Vergleich mit Abb. 35).

7.1.2 Bandkantennaher Spektralbereich

An den infraroten Spektralbereich angeschlossen folgt der sichtbare und ultraviolette Spektralbereich, in dem UVSE-Messungen durchgeführt wurden. Obwohl die messbaren Spektralbereiche der beiden verwendeten Messgeräte sich überlagern (siehe Kap. 6.1), wird hier nur die Auswertung ab 2 eV aufgezeigt. Grund hierfür sind Substrat-Effekte, vor allem des 3C-SiC, welches eine indirekte Bandkante in diesem Bereich aufweist. Eine Darstellung des gesamten Spektralbereichs ist im Anhang zu finden (siehe Abb. 73). Analog zu den IRSE-Messungen sind in Abb. 37 die Messdaten sowie der pbp-Fit für die undotierte Referenzprobe GND2518 zu sehen. Auch hier wurden die Messdaten durch ein Schichtmodell beschrieben, welches der Probenstruktur entspricht. Für das Substrat konnten hier erneut frühere Ergebnisse genutzt werden. Die zb-GaN-Schicht wurde hingegen im ersten Ansatz mit mehreren PSEMI-Oszillatoren, beruhend auf Messdaten bis 20 eV (siehe Kap. 6.1), modelliert.

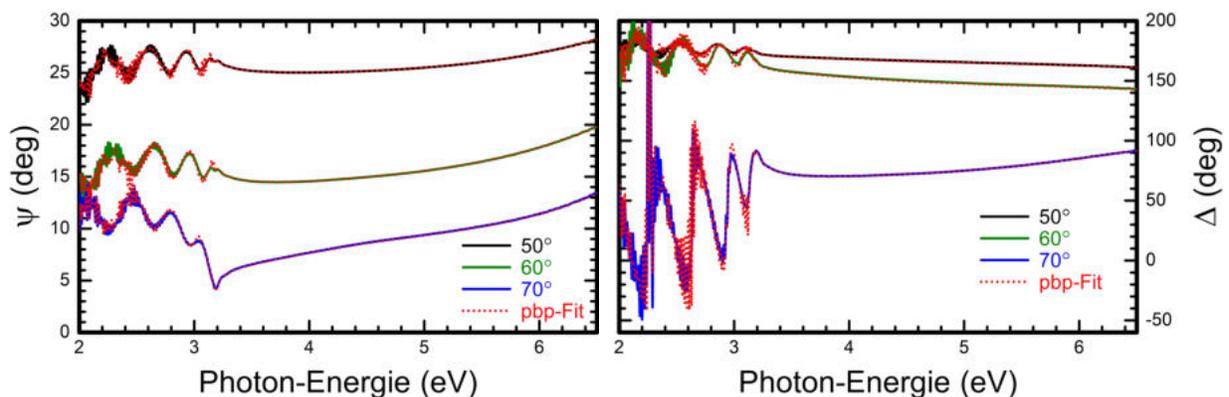


Abbildung 37: UVSE-Messdaten (durchgezogen) und pbp-Fit (gepunktet) in Ψ (links) und Δ (rechts) von GND2518 für drei verschiedene Einfallswinkel (50° , 60° und 70°).

Im niederenergetischen Bereich zeigen sich die Fabry-Pérot-Oszillationen als Anschluss an den infraroten Spektralbereich. Hierbei stammen die deutlich sichtbaren Oszillationen jedoch von der etwa 600 nm dicken zb-GaN-Schicht, während diese von den durch das 3C-SiC erzeugten hochfrequenten Oszillationen überlagert werden. Ab ≈ 3.2 eV verschwinden die Fabry-Pérot-Oszillationen aufgrund der einsetzenden Absorption des zb-GaN. Aus dem pbp-Fit-Ergebnis, welches die Messdaten hervorragend beschreibt, wird nun in Abb. 38 die DF bestimmt.

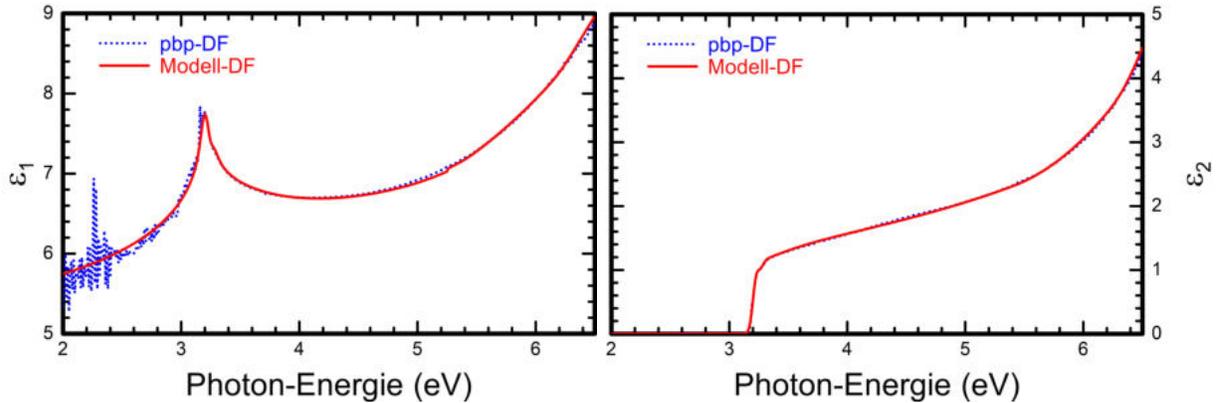


Abbildung 38: Modell-Anpassung (rot, durchgezogen) durch PSEMI-Oszillatoren an die pbp-DF von GND2518 (blau, gepunktet) im bandkantennahen Spektralbereich, getrennt in Real- (ε_1 , links) und Imaginärteil (ε_2 , rechts).

Der pbp-Fit liefert ab ≈ 3 eV hervorragende Daten zur DF. Unterhalb von 3 eV hat der pbp-Fit in ε_1 weniger gut funktioniert, da hier ein größeres Rauschen zu erkennen ist. Dies stammt sehr wahrscheinlich aus den durch das Schichtmodell nicht perfekt beschriebenen Fabry-Pérot-Oszillationen, die der pbp-Fit versucht durch die GaN-DF auszugleichen. Auch die Modell-Anpassung durch PSEMI-Oszillatoren liefert ein sehr gutes Ergebnis, was die Bestimmung der Bandkante ermöglicht. Hierbei ist jedoch zu beachten, dass die Absorptionskante ein stufenförmiges Verhalten bei ≈ 3.25 eV aufweist. Dieses ist in Abb. 39 genauer dargestellt.

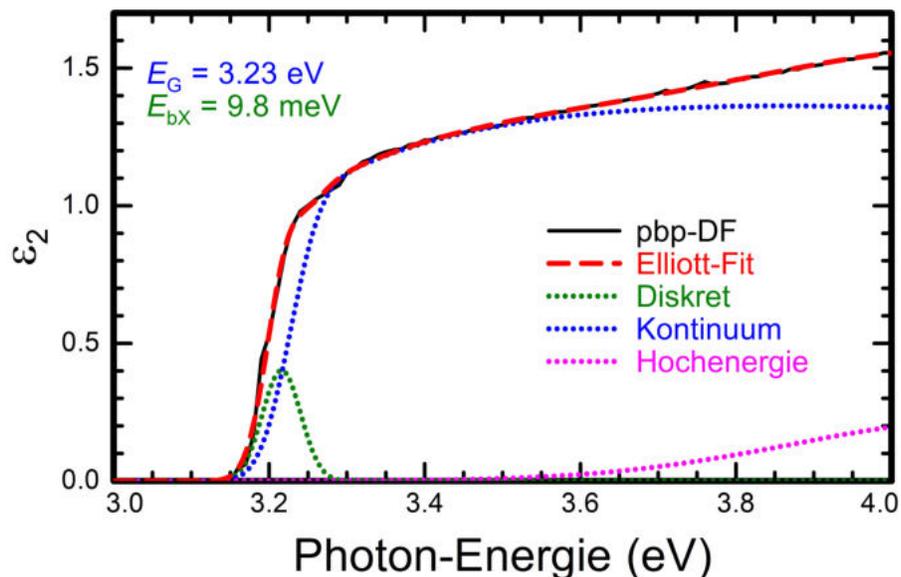


Abbildung 39: Auswertung des Imaginärteils der Dielektrischen Funktion von GND2518 (schwarz) mit dem Elliott-Modell (rot) nach Gl. (3.30). Die einzelnen Beiträge des Modells sind ebenfalls dargestellt (gepunktet).

Die pbp-Daten der DF weisen keine einzelne Absorptionskante auf, wie man es von einem direktem Band-Band-Übergang erwarten würde. Stattdessen ist bei ≈ 3.25 eV eine Art Stufe in ε_2 sichtbar. Diese Stufe wurde, in Abb. 38, mittels eines PSEMI-M0 und eines vorgelagerten Gauß-Oszillators beschrieben. Für die Erklärungen dieser Stufe gibt es zwei Möglichkeiten: zum einen könnte es sein, dass es sich hier um die Überlagerung zweier Band-Band-Übergänge handelt. Diese wären natürlich zunächst der Übergang vom hh- und lh-Valenzband ins Leitungsband als auch der Übergang vom so-Valenzband ins Leitungsband. Diese Möglichkeit ist jedoch unwahrscheinlich, da die resultierende Bandkante zu klein (≈ 3.19 eV) und die *split-off* Energie (≈ 80 meV) zu groß ausfallen würden. Eine bessere Beschreibung des Phänomens erhält man unter Berücksichtigung von Exzitonen. Die Theorie sowie die Linienform von ε_2 mit Exzitoneneinfluss ist in Kap. 3.2 beschrieben. In Abb. 39 sind die einzelnen Beiträge eines diskreten Exzitons sowie des Exziton-Kontinuums und höhere Beiträge dargestellt und an die pbp-Daten von ε_2 angepasst. Es ergibt sich eine Bandlücke von 3.23 eV sowie eine Exziton-Bindungsenergie von 9.8 meV. Diese Bindungsenergie scheint zu gering, wenn frühere Untersuchungen und theoretische Berechnungen nach effektiver Massentheorie ≈ 25 meV erwarten lassen [22]. Es könnte sich hierbei jedoch um die in Gl. (3.28) beschriebenen Abschirmungseffekte handeln, die die Exziton-Bindungsenergie dieser speziellen Probe herabsetzt. Allerdings bleibt die Frage bestehen, ob ein diskretes Exziton mit so geringer Bindungsenergie bei ≈ 25 meV Raumtemperatur überhaupt stabil sichtbar wäre. Zusätzliche temperaturabhängige Messungen konnten jedoch genutzt werden, um den Beitrag des diskreten Exzitons zu bestätigen [125].

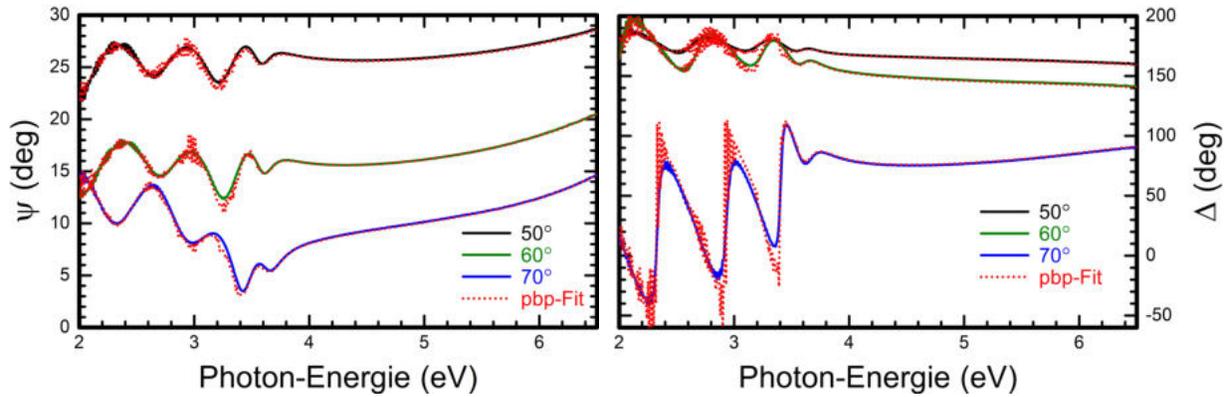


Abbildung 40: UVSE-Messdaten (durchgezogen) und pbp-Fit (gepunktet) in Ψ (links) und Δ (rechts) von GND2524 für drei verschiedene Einfallswinkel (50° , 60° und 70°).

Als nächstes werden, wie im infraroten Spektralbereich, die Messdaten und Schichtmodell-Anpassung der höchstdotierten zb-GaN-Probe in Abb. 40 dargestellt. Auch hier ist der niederenergetische Bereich dominiert durch die Fabry-Pérot-Oszillationen, die an der Absorptionskante enden. Dieser Punkt ist im Vergleich zu Abb. 37 zu höheren Energien verschoben. Nichtsdestotrotz konnte die Modell-Anpassung einen erfolgreichen pbp-Fit generieren, auch wenn dieser im Vergleich zur undotierten Probe mehr Rauschen aufweist. Erstaunlicherweise zeigt sich dies nicht in der pbp-DF, dargestellt in Abb. 41. Das Rauschen in ε_1 ist deutlich geringer, verglichen mit Abb. 38. Allerdings kommt es in ε_2 bei ≈ 3.4 eV zu einer Unstetigkeit in den pbp-Daten. Diese wurde für die folgende Modell-Anpassung vernachlässigt. Für keine der dotierten Proben konnte ein stufenförmiger Imaginärteil gemessen werden, weshalb davon ausgegangen werden kann, dass kein diskretes Exziton für die Auswertung berücksichtigt werden muss. Folglich wurde für die Modell-Anpassung der Absorptionskante nur ein PSEMI-M0 verwendet, dessen Wendepunkt als Übergangsenergie E_{CV} betrachtet wird. Die ausgezeichnete Übereinstimmung zwischen Modell und pbp-Daten in Abb. 41 liefert eine Übergangsenergie von 3.7 eV.

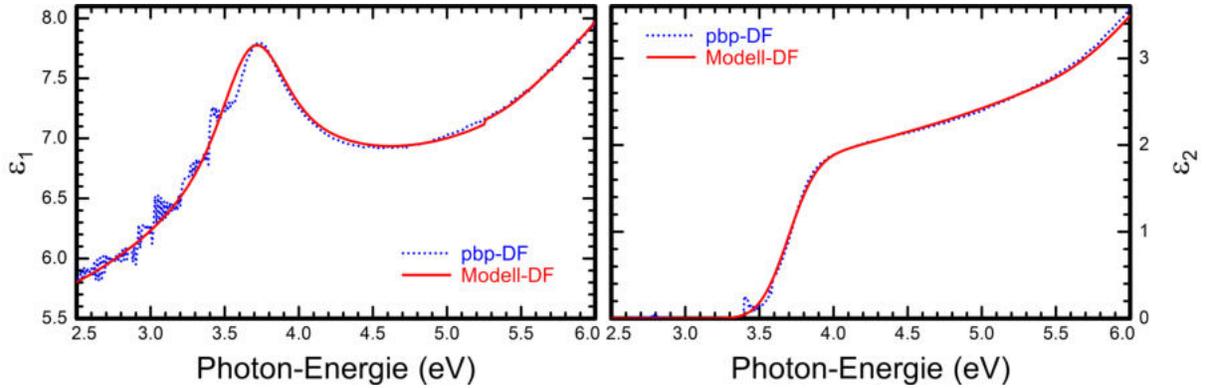


Abbildung 41: Modell-Anpassung (rot, durchgezogen) durch PSEMI-Oszillatoren an die pbp-DF von GND2524 (blau, gepunktet) im bandkantennahen Spektralbereich, getrennt in Real- (ε_1 , links) und Imaginärteil (ε_2 , rechts).

Die gleiche Analyse wurde für sämtliche GaN-Proben angewandt und die Ergebnisse in Form von DF sind in Abb. 42 zu sehen. Hier erkennt man sofort die Verschiebung der Absorptionskante zu höheren Energien, sowohl in ε_1 als auch in ε_2 . Gleichzeitig kann eine Verbreiterung der Absorptionskante mit zunehmender Ladungsträgerkonzentration beobachtet werden. Dies wird durch die steigende Besetzung des Leitungsbandes und der zunehmenden Unordnung mit höheren Dotierkonzentration erklärt. Zusätzlich ist eine Erhöhung der Amplitude in ε_2 erkennbar, die noch nicht vollständig geklärt ist. Es wird jedoch vermutet, dass dies mit der BGR korreliert.

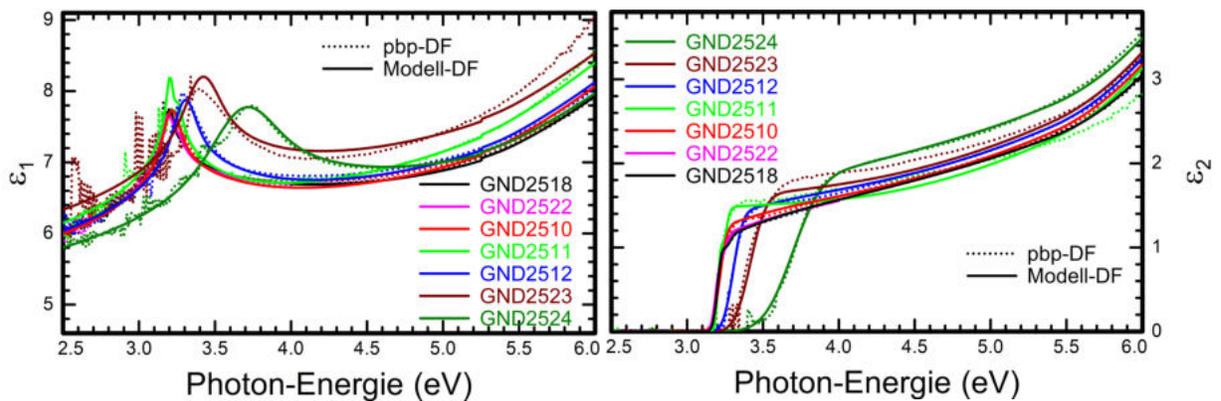


Abbildung 42: Vergleich der pbp- (gepunktet) und Modell- (durchgezogen) Dielektrischen Funktionen (links: Realteil ε_1 , rechts: Imaginärteil ε_2) aller zinkblende GaN-Proben im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich. Bearbeitet nach [81].

Aus der Modell-Anpassung in Abb. 42 kann nun die Übergangsenergie für jede Probe, als Wendepunkt der Absorptionskante bestimmt werden. Diese sind, zusammen mit der Amplitude und

Verbreiterung, in Tab. 6 aufgelistet und in Abb. 43 über die in Abb. 32 bestimmten, optischen Ladungsträgerkonzentrationen aufgetragen. Es zeigt sich eine Ladungsträgerabhängigkeit der Übergangsenergien, die nahezu perfekt durch das Modell aus Gl. (4.25) beschrieben werden kann (siehe Abb. 43). Hierfür wurde die gemittelte Lochmasse \bar{m}_h zu einem konstanten Wert von $0.61 m_e$ angepasst [81].

Tabelle 6: Auflistung ausgewählter Parameter aus der UVSE-Auswertung (bei Raumtemperatur) der zinkblende GaN-Proben: GaN-Schichtdicke d_{UVSE} , Amplitude $A0$, Energieposition $E0$ und Verbreiterung $B0$ des PSEMI-M0-Oszillator zur Beschreibung der Übergangsenergie $E_{CV,UVSE}$. Die aus der Infrarot-Auswertung gewonnene optische Ladungsträgerkonzentration n_{opt} ist ebenfalls angegeben.

Probe	d_{UVSE} (nm)	n_{opt} (cm^{-3})	$A0$	$E0 = E_{CV,UVSE}$ (eV)	$B0$ (eV)
GND2524	348	1.75×10^{20}	1.754	3.694	0.176
GND2523	417	5.69×10^{19}	1.267	3.405	0.079
GND2512	569	2.81×10^{19}	1.356	3.302	0.060
GND2511	624	8.06×10^{18}	1.475	3.236	0.033
GND2510	624	5.43×10^{18}	1.245	3.228	0.039
GND2522	604	1.73×10^{18}	1.087	3.220	0.035
GND2518	605	-	1.115	3.231	0.039

Bis jetzt wurde die Übergangsenergie über einen Leitungsband- und einen (parabolischen) Valenzband-Beitrag mit gemittelter effektiver Lochmasse beschrieben. Versucht man, die Beiträge der drei einzelnen (parabolischen) Valenzbänder zu ermitteln, muss eine Unterscheidung der drei Lochmassen erfolgen. Die Mittelung der hh-, lh- und so-Lochmassen muss dabei natürlich wieder die zuvor bestimmte gemittelte Lochmasse ergeben. Hierfür werden die relativen Oszillatorstärken (hh: 1/2, lh: 1/3, so: 1/6) der Übergänge am Γ -Punkt der BZ [126, 127] als Gewichtung verwendet. Die gemittelte Lochmasse ergibt sich somit zu:

$$\frac{1}{\bar{m}_h} = \frac{1}{2} \cdot \frac{1}{m_{hh}^*} + \frac{1}{3} \cdot \frac{1}{m_{hl}^*} + \frac{1}{6} \cdot \frac{1}{m_{so}^*}. \quad (7.1)$$

Dies ist jedoch nur eine Näherung, da die Absorption nicht am Γ -Punkt der BZ, sondern um den Fermi-Vektor k_F verschoben, stattfindet. Die ermittelten Lochmassen sind in Abb. 43 aufgezählt. Für einen Vergleich können nun die effektiven Lochmassen in die verschiedenen Richtungen der BZ aus Tab. 4 ebenfalls gemittelt werden. Es zeigt sich, dass die Abweichung zwischen Theorie und Experiment nur $0.1 m_e$ beträgt. Dieser Wert ist jedoch kritisch zu betrachten, da die getroffenen Näherungen und Mittelungen nicht dem Realfall entsprechen.

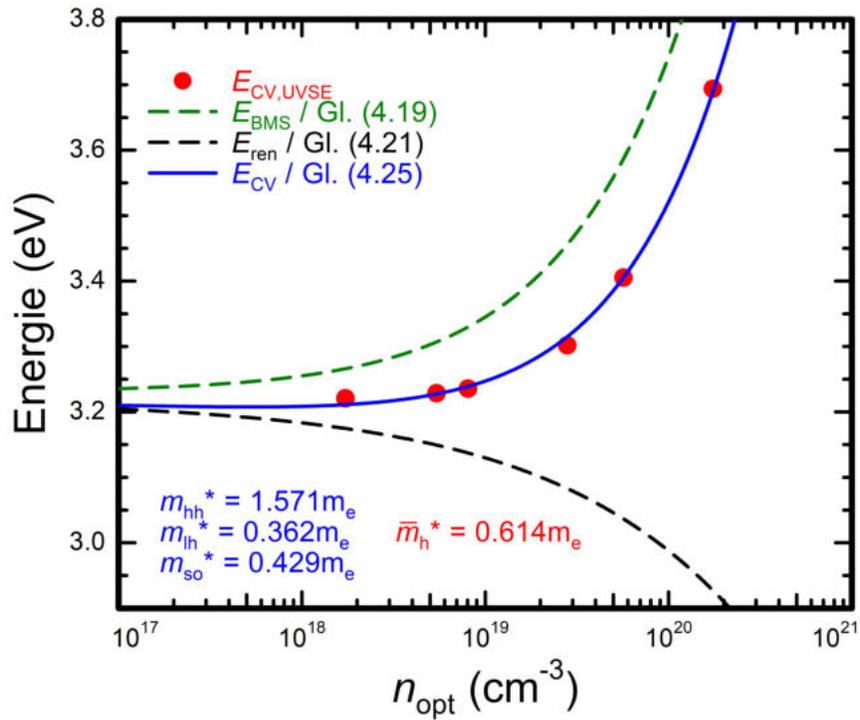


Abbildung 43: Gemessene Übergangsenergien $E_{CV,UVSE}$ über der bestimmten optischen Ladungsträgerdichte n_{opt} . Modell-Anpassung (blau) gemäß der Vielteilcheneffekte, beschrieben in Kap. 4.2. Die einzelnen Beiträge der Bandkantenrenormierung (schwarz) und Burstein-Moss-Verschiebung (grün) sind ebenfalls dargestellt. Bearbeitet nach [81].

7.1.3 Zeitaufgelöste Untersuchungen

Die undotierte zb-GaN-Probe (GND2518), welche für den UV-Bereich in den Abb. 37-39 bereits analysiert ist, wurde zudem mittels trSE untersucht. Hierbei wurden die in Kap. 6.1.2 beschriebenen experimentellen Parameter verwendet. GND2518 ist die einzige Probe in dieser Arbeit, die im Kontext der trSE behandelt wird, womit in diesem Kapitel auf die Probenbezeichnung in Abbildungen und Texten verzichtet wird. In Abb. 44 ist der zeitliche Verlauf von Ψ und Δ für die erste Pikosekunde nach dem Pump-Puls dargestellt. Hier ist der größte Unterschied zwischen angeregten und *steady-state* GaN zu sehen. Nach 1 ps laufen Ψ und Δ für die nächsten 5000 ps zurück auf die *steady-state*-Kurven.

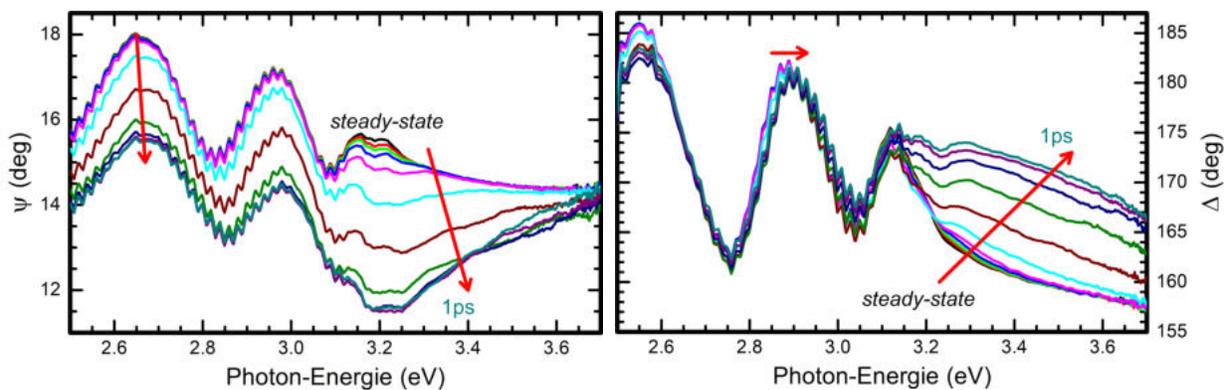


Abbildung 44: Messergebnisse für Ψ (links) und Δ (rechts) der zeitaufgelösten Ellipsometrie innerhalb der ersten Pikosekunde nach der Pump-Absorption. Von der Gleichgewichtsmessung (*steady-state*) bis zur *delay-time* von 1 ps werden die Daten in 0.1 ps Schritten angezeigt. Der Verlauf wird durch die Pfeile markiert. Bearbeitet nach [97].

Die in Kap. 6.1.2 beschriebene Auswertung für zeitaufgelöste Messungen werden hier am Beispiel der 10 ps Messung in den Abb. 45 und 46 gezeigt. Um einen pbp-Fit durchführen zu können, muss das anfangs verwendete FBG-*grading* (welches einen funktionalen Zusammenhang zwischen Übergangsenergie und Schichtdicke herstellt, Abb. 22) in ein EMA-Modell (Variation der Mischanteile von angeregten und unangeregten GaN, Abb. 21) überführt werden.

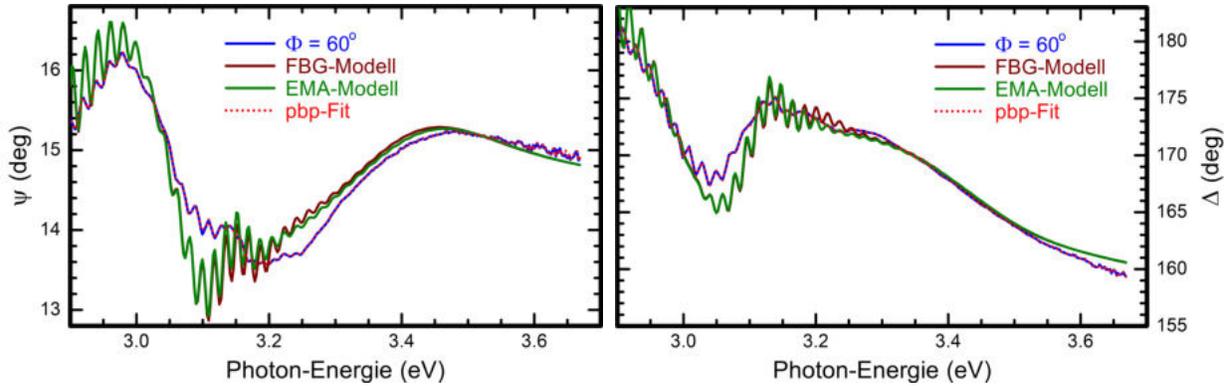


Abbildung 45: Vergleich der beiden verwendeten Modelle (FBG, braun und EMA, grün) für das Ladungsträgerprofil und pbp-Fit (rot) des EMA-Modells auf die Messdaten von Ψ (links) und Δ (rechts), 10 ps nach der Pump-Absorption.

Der Vergleich zwischen dem FBG- und dem EMA-Modell (siehe Kap. 6.1.2) für die grundlegende Anpassung an die Messdaten von Ψ und Δ zeigt eine Übereinstimmung und damit die Rechtfertigung für den folgenden pbp-Fit, der ebenfalls in Abb. 45 eingezeichnet ist. Die aus dieser gewonnene pbp-DF (ε_1 und ε_2) wurden anschließend durch einen PSEMI-M0-Oszillator zur Beschreibung der Absorptionskante ausgewertet. Hierbei wird vor allem auf eine Übereinstimmung mit dem Imaginärteil ε_2 der DF geachtet, sichtbar in Abb. 46, da diese zur Bestimmung der Absorptionskante geeigneter ist. Im Anhang sind zudem die DF für ausgewählte Probertiefen gezeigt, um das Ladungsträgerprofil und somit die tiefenabhängige DF zu veranschaulichen.

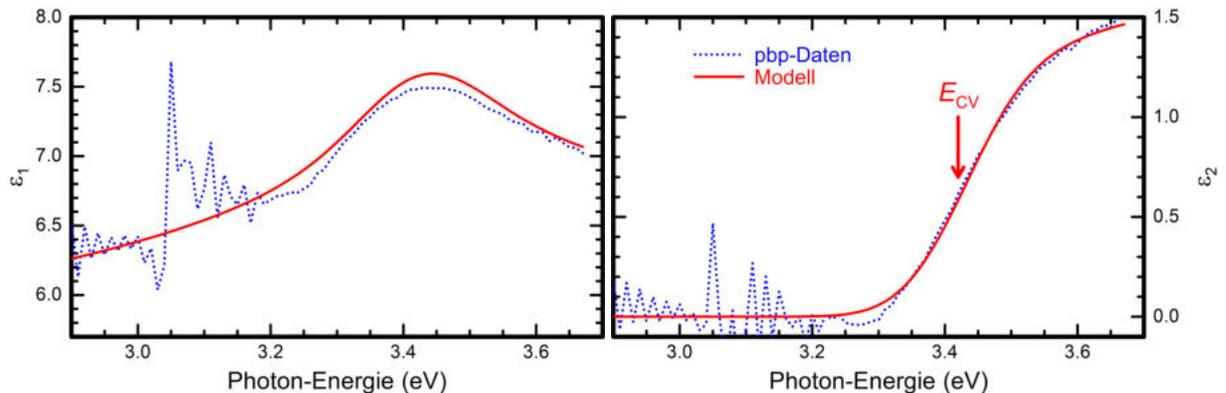


Abbildung 46: Ergebnisse der Dielektrischen Funktion (links: Realteil ε_1 , rechts: Imaginärteil ε_2) aus den pbp-Daten (blau) und angepasst mit PSEMI-Oszillatoren (rot) für die 10 ps Messung. Die als Wendepunkt der Absorptionskante bestimmte Übergangsenergie E_{CV} ist mit einem Pfeil markiert. Bearbeitet nach [97].

Als nächstes wird der zeitliche Verlauf der ε_2 analysiert. Hierfür wird in drei Zeitbereiche unterteilt: den Sub-Pikosekunden- ($t \leq 1$ ps), den Pikosekunden- (1 ps $< t \leq 15$ ps) und Super-Pikosekundenbereich (15 ps $< t$). Diese pbp-Daten sowie die PSEMI-M0 Modellanpassung für diese Zeitbereiche sind in den Abb.47-49 dargestellt. Als Vergleichswert ist in allen Bildern die -10 ps-Messungen eingezeichnet. Wir definieren diese Messung als quasi-*steady-state*, da wir annehmen, dass die Probe zu diesem Zeitpunkt bereits zurück in ihren Ausgangszustand gelangt ist. Zudem werden die Ergebnisse unterhalb von 3.2 eV nicht betrachtet. Grund hierfür ist ein unzureichendes pbp-Ergebnis (siehe Abb. 46), welches vermutlich auf den Endpunkt der Fabry-Pérot-Interferenzen zurückzuführen ist. Wie in Kap. 6.1.2 geschildert, werden nach dem Anregungspuls die obersten GaN Schichten transparent. Dies führt zu kontinuierlich veränderten Anfangs- und Endpunkten der Fabry-Pérot-Interferenzen, welche durch das Modell nicht akkurat erfasst werden.

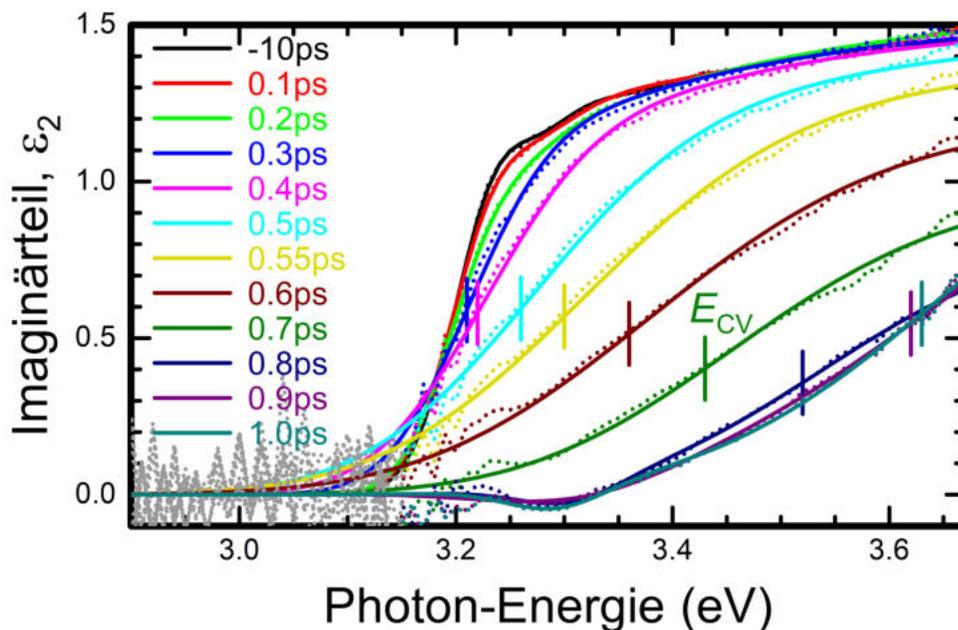


Abbildung 47: Imaginärteil der Dielektrischen Funktion für ausgewählte *delay-times* innerhalb der ersten Pikosekunde nach Pump-Absorption. Der Spektralbereich unterhalb von 3.19 eV (grau) wird nicht betrachtet. Die ermittelten Übergangsenergien E_{CV} sind durch vertikale Linien markiert. Zur besseren Übersicht ist die Gleichgewichtsmessung (*steady-state*, -10 ps, schwarz) ebenfalls dargestellt. Bearbeitet nach [97].

Sowohl in der -10 ps Messung als auch direkt (0.1 - 0.2 ps) nach dem Anregungs-Puls ist der excitonische Betrag bei ≈ 3.21 eV zu erkennen. Danach jedoch scheinen genug freie Ladungsträ-

ger relaxiert zu sein, dass das Exziton komplett abgeschirmt wird. Von hier an sind zwei Effekte deutlich zu erkennen: 1. das Verschieben der Absorptionskante zu höheren Energien und 2. das Verbreitern der Absorptionskante. Vielteilcheneffekte, insbesondere BMS, erklären die erste Beobachtung der Blauverschiebung während die Verbreiterung durch die erhöhte Elektronentemperatur und damit aufgeweitete Verteilungsfunktion innerhalb der Bänder zu erklären ist [54]. Dieser Sub-Pikosekunden-Bereich wird demnach weitestgehend durch die Relaxation dominiert, während Rekombination und Diffusion fast vernachlässigt werden können. Ähnlich zu Ψ und Δ in Abb. 44 sehen wir auch in ε_2 innerhalb der ersten Pikosekunde die maximale Veränderung im Vergleich zum *steady-state* Fall. Die extreme Verbreiterung in ε_2 für $t \approx 1$ ps erschwert die Bestimmung des Wendepunkts der Absorptionskante und somit der Übergangsenergie, da das Abflachen von ε_2 nicht mehr im beobachteten Spektralbereich liegt. Der Fehler der bestimmten Übergangsenergien für diese Zeiten liegt bei maximal 40 meV, was deutlich größer ist als die ≈ 10 meV Ungenauigkeit für die restlichen Messungen [97].

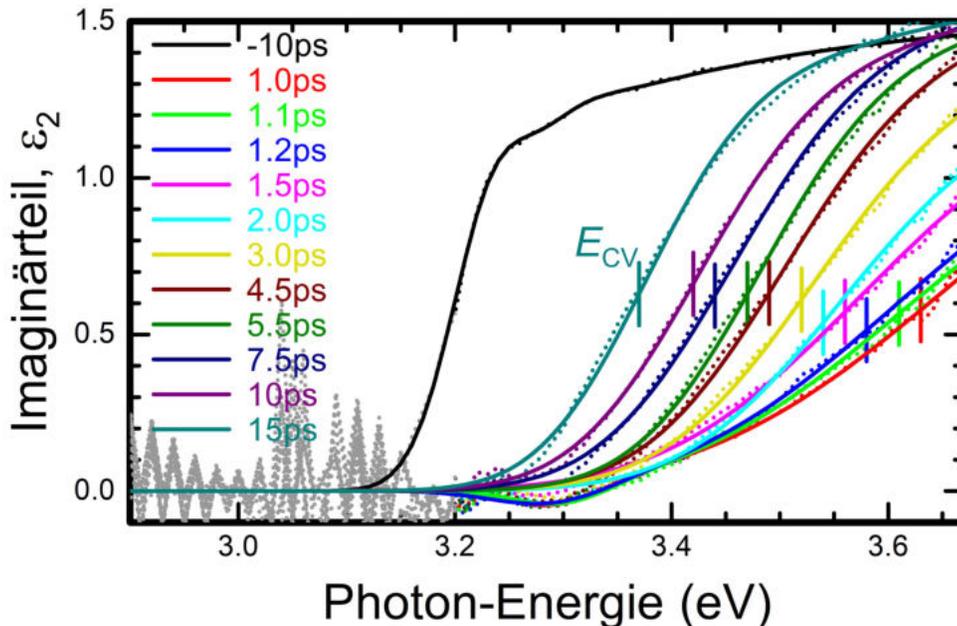


Abbildung 48: Imaginärteil der Dielektrischen Funktion für ausgewählte *delay-times* zwischen einer und 15 ps nach der Pump-Absorption. Der Spektralbereich unterhalb von 3.20 eV (grau) wird nicht betrachtet. Die ermittelten Übergangsenergien E_{CV} sind durch vertikale Linien markiert. Zur besseren Übersicht ist die Gleichgewichtsmessung (*steady-state*, -10ps, schwarz) ebenfalls dargestellt. Bearbeitet nach [97].

Die Analyse der Daten für den Zeitbereich $0.8 \leq t \leq 1.2$ ps benötigt für bestimmte *delay-times* negative ε_2 , um systematische Ergebnisse zu liefern [97]. Für hochangeregtes GaAs wurden ähnliche Ergebnisse beobachtet [128]. Ein negativer Imaginärteil der DF wird in dieser Arbeit als *material gain* (dt.: materialabhängige Verstärkung) interpretiert und lässt sich am einfachsten als zusätzlichen Licht-Gewinn anstatt Licht-Absorption verstehen. Gründe zum Berücksichtigen dieses *gain* sind zum einen das relativ glatte pbp-Ergebnis, welches mathematische Unstimmigkeiten im pbp-fit eher ausschließt. Zum anderen die Tatsache, dass ein Vernachlässigen von negativen ε_2 zu nicht systematischen Ergebnissen für Amplitude, Energie und Verbreiterung der Absorptionskante führt. Die Modellierung des *gain*-Effekts erfolgt an einer späterer Stelle. Die Ursache des *gain* liegt darin, dass die Quasi-Fermi-Niveaus der Elektronen und Löcher durch die Relaxation in ihre jeweiligen Bänder verschoben wurden. Sobald diese Bedingung erfüllt ist, beginnt die zusätzliche Rekombination [129].

Nach 1 ps beginnt sich die DF zurück auf ihre *steady-state* Werte zu entwickeln, indem die Energie und Verbreiterung der Absorptionskante in ε_2 abnehmen. Ab $t \approx 5$ ps ist keine signifikante Änderung der Verbreiterung mehr sichtbar und es kommt zu einer quasi-parallel Verschiebung der Absorptionskante zu geringeren Energien mit steigender *delay-time*.

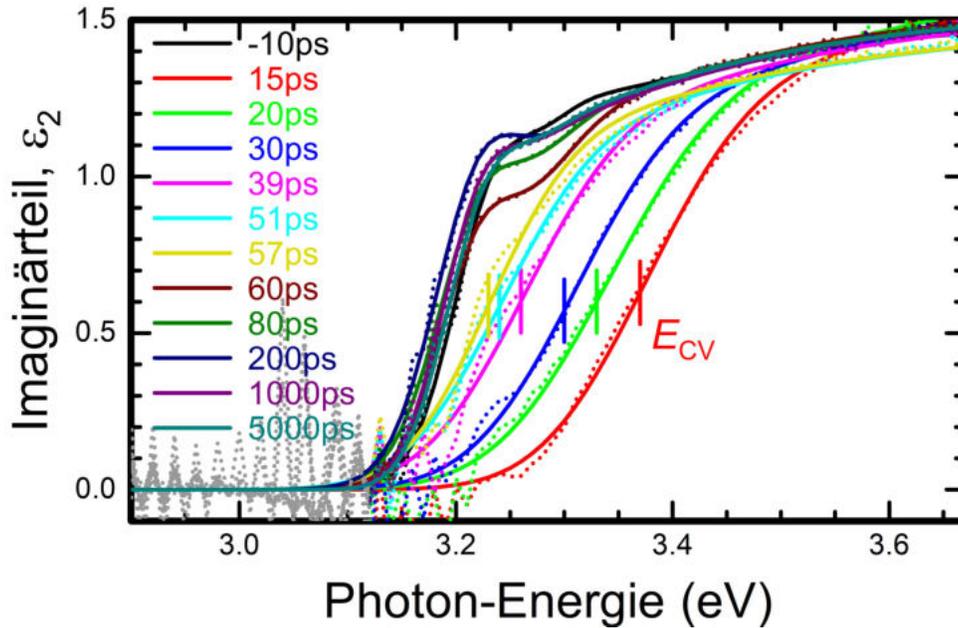


Abbildung 49: Imaginärteil der Dielektrischen Funktion für ausgewählte *delay-times* zwischen 15 und 5000 ps nach der Pump-Absorption. Der Spektralbereich unterhalb von 3.19 eV (grau) wird nicht betrachtet. Die ermittelten Übergangsenergien E_{CV} sind durch vertikale Linien markiert. Zur besseren Übersicht ist die Gleichgewichtsmessung (*steady-state*, -10ps, schwarz) ebenfalls dargestellt. Bearbeitet nach [97].

Um endgültig auf die *steady-state* DF zurückzugelangen, benötigt das Material in etwa 5 ns. Bereits nach 60 ps ist das excitonische Signal wieder deutlich sichtbar. Die Intensität dieses excitonischen Beitrages ist jedoch zu Beginn sehr schwach und braucht über 100 ps, um auf den *steady-state* Wert anzusteigen. Genauere Untersuchungen dieses Zeitverhaltens wurden nicht durchgeführt, könnten sich aber als interessante Forschungen für zukünftige Arbeiten anbieten. Die in Kap. 7.1.1 und 7.1.2 untersuchten dotierten Proben sollten eine quantitative Einordnung der, durch den Pump-Puls erzeugten, Ladungsträgerkonzentration ermöglichen. Hierfür wird in Abb. 50 der Imaginärteil der DF von Probe GND2523 mit ausgewählten *delay-times* verglichen. Die Tatsache, dass sowohl Linienform als auch Energieposition für die dargestellten Kurven ähnlich sind, lässt vermuten, dass sich in diesem Zeitbereich in etwa die gleiche Anzahl von freien Ladungsträgern in der Probe GND2518 (nominell undotiert) befinden. Auch bei dieser Betrachtung sind die Effekte der freien Löcher vernachlässigt worden.

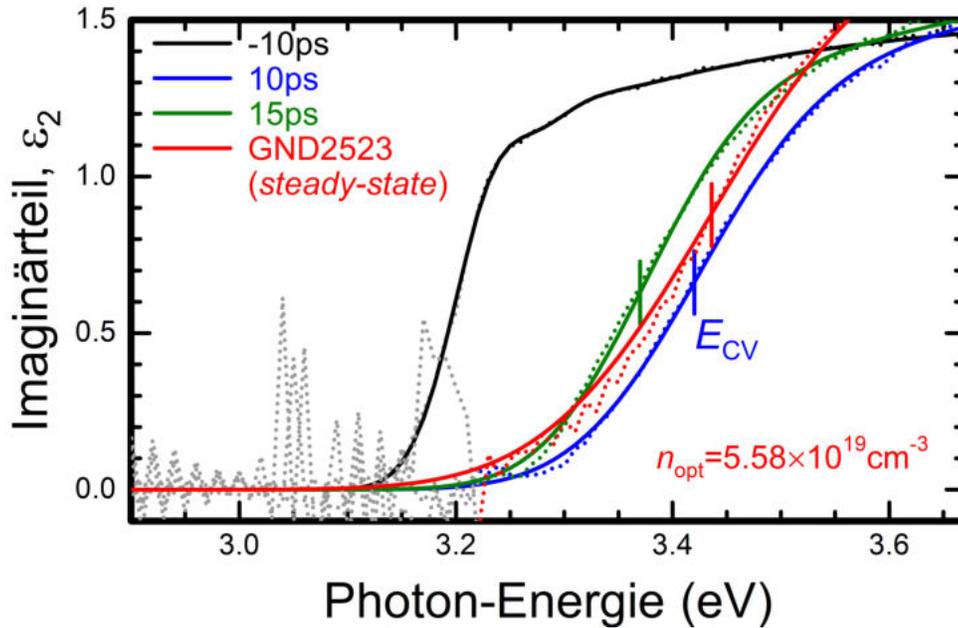


Abbildung 50: Vergleich der Imaginärteile für die *delay-times* von 10 bzw. 15 ps mit der Gleichgewichtsmessung (*steady-state*, rot) der n-dotierten Probe GND2523 (optischen Ladungsträgerkonzentration $n_{\text{opt}}=5.58 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$). Der Spektralbereich unterhalb von 3.22 eV (grau) wird nicht betrachtet. Die ermittelten Übergangsenergien E_{CV} sind durch vertikale Linien markiert. Zur besseren Übersicht ist die Gleichgewichtsmessung (*steady-state*, -10 ps, schwarz) ebenfalls dargestellt. Bearbeitet nach [97].

Die ermittelten Übergangsenergien für die ersten 80 ps sind in Abb. 51 zusammengefasst. Hierbei ist der Zeitbereich < 2.5 ps gesondert dargestellt. Es ist zu beachten, dass die hier betrachteten Übergangsenergien dem Wendepunkt der DF entsprechen, die aus dem pbp-Fit der obersten zb-GaN-Schicht gemäß des Ladungsträgerprofils folgt. An tieferen Stellen der zb-GaN-Schicht würde bei der gleichen *delay-time* eine andere Übergangsenergie gemessen werden. Ein Vergleich von DF in unterschiedlichen Tiefen ist im Anhang zu finden. Das anfängliche Absinken der Übergangsenergie ($t < 0.4$ ps) mag kontraintuitiv erscheinen, ist aber im Rahmen der Vielteilcheneffekte durch die BGR erklärbar. In diesem Zeitbereich scheinen also so wenig Ladungsträger ihr Bandextremum erreicht zu haben, dass der Beitrag der BGR größer als der des BMS ist. Anschließend überwiegt der BMS durch die relaxierenden Ladungsträger jedoch deutlich und es kommt zu einer Verschiebung der Übergangsenergie von etwa 450 meV. An dieser Stelle, bei $t = 1.0$ ps, ist die maximale Veränderung im Vergleich zum *steady-state* Zustand erreicht. Es folgt ein zeitlich begrenztes, schnelles Abfallen der gemessenen Übergangsenergie. Dies ist

genau durch den *gain*-Effekt zu erklären, bei dem Elektron-Loch-Paare einen zusätzlichen Rekombinationskanal haben. Danach beginnt die Übergangsenergie exponentiell auf ihren *steady-state* Wert zurückzuwechseln. Dies entspricht der in Kap. 5.2 angedachten Rekombination von Ladungsträgern.

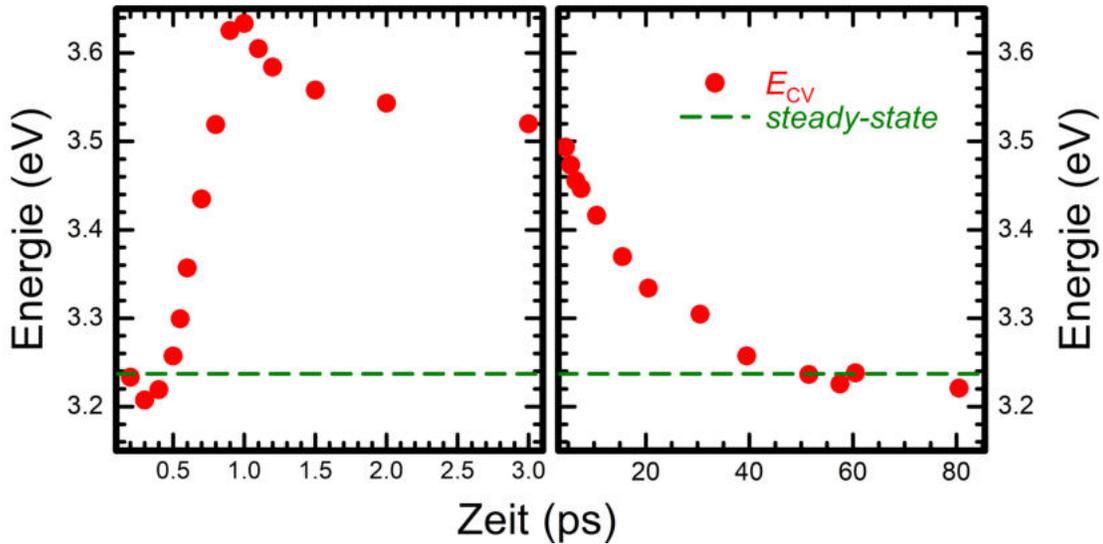


Abbildung 51: Gemessene Übergangsenergien E_{CV} von 0 bis 80 ps. Die Zeitbereiche unter und über 2.5 ps sind unterschiedlich skaliert. Zur besseren Übersicht ist die gemessene Bandkante für die Gleichgewichtsmessung (*steady-state*, grün) ebenfalls eingezeichnet. Bearbeitet nach [97].

Offensichtlich muss das Modell zur Beschreibung der Ladungsträgerkonzentration in Gl. (5.13) überarbeitet werden, um den nachgewiesenen *gain*-Effekt zu berücksichtigen. Wir wollen hierfür die Ladungsträgerkonzentration bestimmen, die durch den *gain*-Effekt rekombiniert und somit aus dem Bandextremum verloren geht. Die Rekombination durch *gain* weist ein An- und Abschwelen auf, abhängig von der Position der Quasi-Fermi-Niveaus und deren Bezug zur Bandlücke. Die tatsächliche Anzahl von rekombinierten Ladungsträgern muss dementsprechend in einen Sättigungsbereich laufen, ab dem keine weiteren Ladungsträger verloren gehen. Diese Form soll als *error-function* approximiert werden zu [97]:

$$n_{\text{gain}}(t) = \frac{N_2}{2} \cdot \left(\operatorname{erf} \left(\frac{t - \beta_2}{\tau_2} \right) + 1 \right). \quad (7.2)$$

Hierbei ist N_2 die maximale Anzahl an rekombinierten Ladungsträgern, β_2 der Einsatzpunkt des *gain*-Effekts und τ_2 die *gain*-Rekombinationszeit. Für die Gesamtanzahl von Elektronen im LBM müssen nun also die relaxierten Elektronen um die durch *gain* verlorenen Elektronen reduziert werden. Es ergibt sich die folgende Gleichung für die Ladungsträgerkonzentration an der Probenoberfläche [97]:

$$n_{\text{gm}}(x=0, t) = \frac{(n_{\text{relax}} - n_{\text{gain}})}{2} \cdot \exp\left(\alpha^2 Dt - \frac{t}{\tau_1}\right) \cdot \text{erfc}\left(\sqrt{\alpha^2 Dt}\right). \quad (7.3)$$

Diese Gleichung beschreibt den zeitlichen Verlauf der Ladungsträgerkonzentration nach einer Hochenergieanregung. Unter den in Kap. 5 getroffenen Annahmen kann man die entsprechenden Ladungsträgerkonzentrationen für die Übergangsenergien aus Abb. 51 ermitteln. Diese, sowie die Anpassung von Gl. (7.3), sind in Abb. 52 für die ersten 3 ps dargestellt. Das erstellte Modell ist in der Lage die gewonnenen Messdaten ausgezeichnet zu beschreiben. Die zusätzlich eingeführte *gain*-Rekombination ermöglicht den schnellen Abfall der Übergangsenergie ab ≈ 1 ps. Der erweiterte zeitliche Verlauf bis 80 ps ist folgend in Abb. 53 gezeigt. Hier ist vor allem der Effekt der Rekombination sichtbar.

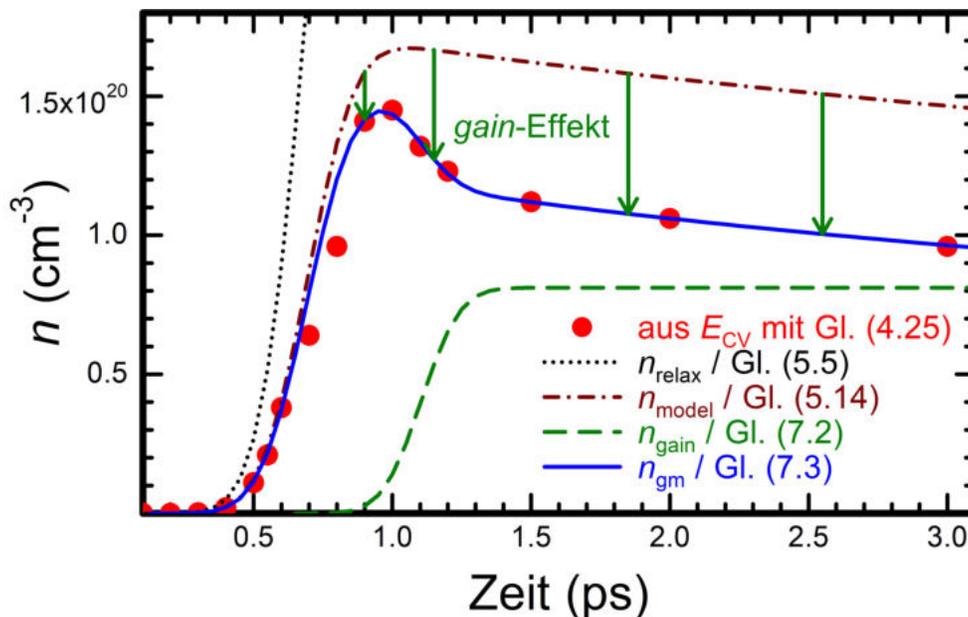


Abbildung 52: Zeitlicher Verlauf der aus den Übergangsenergien bestimmten Ladungsträgerkonzentrationen und deren Beschreibung durch die Prozesse der Relaxation (schwarz), Relaxation mit Rekombination und Diffusion (braun) und zusätzlichem gain-Effekt (grün), welcher auf das Modell (blau) aus Gl. (7.3) führt. Bearbeitet nach [97].

Zusammengefasst lassen sich die beteiligten Prozesse und der zeitliche Ablauf folgendermaßen beschreiben: der einfallende Laser-Puls erzeugt eine große Anzahl von Elektron-Loch-Paaren, welche das Pump-Reservoir bilden. Von dort beginnen Elektronen ins LBM zu relaxieren, wo sie die Absorptionskante durch Vielteilcheneffekte beeinflussen. Gleichzeitig diffundieren die Ladungsträger räumlich durch die Probe, was die Ladungsträgerkonzentration an der Oberfläche der Probe verringert. Zudem können die Elektron-Loch-Paare wieder miteinander rekombinieren. Da diese Rekombination und Diffusion deutlich langsamer stattfindet als die Relaxation, nimmt die Ladungsträgerkonzentration im Leitungsbandminimum zunächst stark zu. Es bildet sich ein Ladungsträgerprofil in der Probe. Sobald genügend Ladungsträger relaxiert sind und die quasi-Fermi-Niveaus von Elektronen und Löchern innerhalb ihrer jeweiligen Bändern liegen, beginnen die Elektron-Loch-Paare durch den *gain*-Prozess miteinander zu rekombinieren. Solange sich noch genügend freie Ladungsträger im Pump-Reservoir befinden, steigt die Anzahl der Ladungsträger im LBM weiter an. Wenn die *gain*-Rekombination jedoch überwiegt, nimmt die freie Ladungsträgerkonzentration rapide ab [129]. Sobald sich die quasi-Fermi-Niveaus dann wieder innerhalb der Bandlücke befinden, sind die einzig noch aktiven Prozesse die Diffusion und Rekombination. Beide Prozesse verringern die Ladungsträgerkonzentration im LBM, im Vergleich zur Relaxation und *gain*-Rekombination jedoch langsamer, bis der Ausgangszustand wieder erreicht ist.

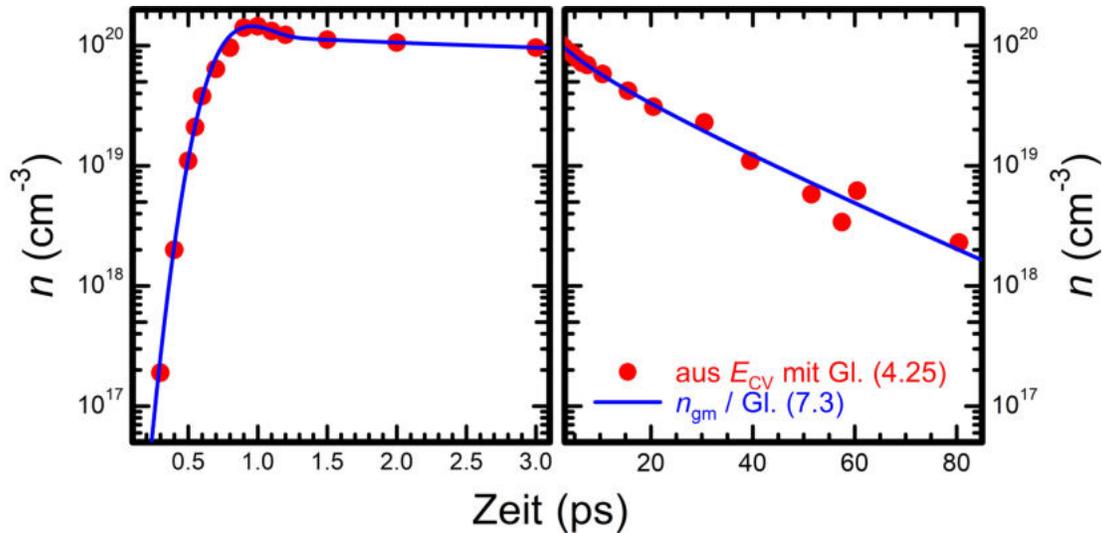


Abbildung 53: Berechnete Ladungsträgerkonzentrationen n von 0 bis 80 ps. Die Zeitbereiche unter und über 3 ps sind unterschiedlich skaliert, genauso wie die n -Bereiche. Die Modell-Anpassung (blau) erfolgt nach Gl. (7.3). Bearbeitet nach [97].

Aus der Anpassung des Modells an die Messdaten bzw. die berechneten Ladungsträgerkonzentrationen konnten die in Tab. 7 aufgelisteten Parameter bestimmt werden. Hierbei zeigt sich, dass die charakteristische Relaxationszeit von $\tau_0 = 0.19$ ps vergleichbar mit einem theoretisch vorhergesagten Wert ist [130]. Auch die Rekombinationszeit von $\tau_1 = 26.1$ ps ist ähnlich zu vorherigen Untersuchungen [131, 132]. Aus der Kombination von Rekombinationszeit und Diffusionskonstante lässt sich außerdem die Diffusionslänge $L_D = \sqrt{D \cdot \tau_1} = 58.8$ nm ermitteln. Dieser Wert ist kleiner als der im verwandten wz-GaN von ≈ 90 nm [133, 134]. Es ist zu beachten, dass die hier bestimmte Diffusionskonstante mathematisch nur die Elektronen darstellt. Der tatsächliche Wert wird hingegen einer effektiven Mittelung des Elektron-Loch-Plasmas entsprechen [97].

Tabelle 7: Aus der Modell-Anpassung in Abb. 53 ermittelte Parameter der Relaxation (N_0, β_0, τ_0), Rekombination (τ_1), Diffusion (D, L_D) und der zusätzlichen gain-Rekombination (N_2, β_2, τ_2). Bearbeitet nach [97].

	Relaxation	Rekombination	Diffusion	gain-Rekombination
$N_{0,2} \text{ (cm}^{-3}\text{)}$	3.8×10^{20}	-	-	8.1×10^{19}
$\beta_{0,2} \text{ (ps)}$	0.70	-	-	1.10
$\tau_{0,1,2} \text{ (ps)}$	0.19	26.1	-	0.16
$D \text{ (cm}^2\text{/s)}$	-	-	1.33	-
$L_D \text{ (nm)}$	-	-	58.8	-

Bis jetzt nahmen wir implizit an, dass die Probe sich während des gesamten Experiments auf Raumtemperatur befindet. Es ist jedoch nicht ausgeschlossen, dass sich die Probe durch den Pump-Puls erwärmt. Ursache hierfür liegt im Relaxationsprozess. Wenn Elektronen aus dem Pump-Reservoir ins LBM relaxieren, dann erreichen sie dies durch Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Die dabei erzeugten bzw. angeregten Phononen beeinflussen die Gittertemperatur der Probe. Es folgt dementsprechend die Erwartung, dass sich die Probe am Ende der Relaxationsphase am höchsten erhitzt hat. Dies hat wiederum zur Folge, dass sich die fundamentale Bandkante verringert [135–137]. Es ergibt sich die These, dass der starke Abfall der gemessenen Absorptionsenergie bei ≈ 1 ps in Abb. 51 durch diesen Temperatur-Effekt erklärbar ist.

Um dies zu verifizieren, wird ein Modell für den zeitlichen Verlauf der Temperatur benötigt. Da die Temperaturerhöhung direkt aus der Relaxation der freien Ladungsträger folgt, nehmen wir an, dass die Temperatur den gleichen funktionalen Zusammenhang aufweist. Das anschließende Abkühlen soll in erster Näherung exponentiell erfolgen. Somit ergibt sich folgende Gleichung für die zeitabhängige Gittertemperatur [97]:

$$T(t) = \frac{(T_1 - T_0)}{2} \cdot e^{-\frac{t}{\tau_4}} \cdot \left(\operatorname{erf} \left(\frac{t - \beta_3}{\tau_3} \right) + 1 \right) + T_0. \quad (7.4)$$

Ausgehend von der Raumtemperatur T_0 erhöht sich die Temperatur zunächst *error-function*-artig mit der Zeitkonstante τ_3 , welche den gleichen Wert haben soll wie τ_0 in Gl. (5.5) für die Relaxation. Der Einsatzpunkt, der durch β_3 beschrieben wird, wird jedoch zeitlich verschoben zu

dem der Relaxation liegen, da wir keine Aussage über den zeitlichen Zusammenhang zwischen Phonon-Anregung und Temperaturerhöhung treffen können. Das exponentielle Abkühlen soll über die Zeitkonstante τ_4 charakterisiert werden.

Die temperaturabhängige Bandlücke lässt sich mit dem Modell nach Pässler folgendermaßen berechnen [138]:

$$E_G(T) = E_G(T=0) - a_T \Theta_T \left\{ \frac{1 - 3\Delta_T^2}{e^{\Theta_T/T} - 1} + \frac{3\Delta_T^2}{2} \cdot \left[\sqrt[6]{1 + \frac{\pi^2}{3 + 3\Delta_T^2} \left(\frac{2T}{\Theta_T}\right)^2 + \frac{3\Delta_T^2 - 1}{4} \left(\frac{2T}{\Theta_T}\right)^3 + \frac{8}{3} \left(\frac{2T}{\Theta_T}\right)^4 + \left(\frac{2T}{\Theta_T}\right)^6} - 1 \right] \right\}. \quad (7.5)$$

Die notwendigen Pässler-Parameter a_T , Θ_T und Δ_T sind für zb-GaN bereits bekannt [22]. Diese temperaturabhängige Bandlücke muss selbstverständlich die statische Bandlücke in der Berechnung der Vielteilcheneffekte in Kap. 4.2 ersetzen. Damit ergibt sich eine Übergangsenergie, die sowohl von der Ladungsträgerdichte als auch von der Temperatur abhängt [97]:

$$E_{CV}(t) = E_{CV}(T(t), n_{\text{model}}(t)). \quad (7.6)$$

Die Ladungsträgerdichte wird nur mit dem Modell für Relaxation, Rekombination und Diffusion beschrieben, da der angenommene gain-Effekt nun durch die Temperaturzunahme ersetzt werden soll. In Abb. 54 ist die Anpassung beider Modelle (*gain*- und Temperatur-Effekt) an die gemessenen Übergangsenergien zu sehen. Es zeigt sich, dass beide Modelle geeignet sind, um die Messdaten hervorragend zu beschreiben. Die für das Temperatur-Modell benötigten Parameter sind in Tab. 8 zusammengefasst.

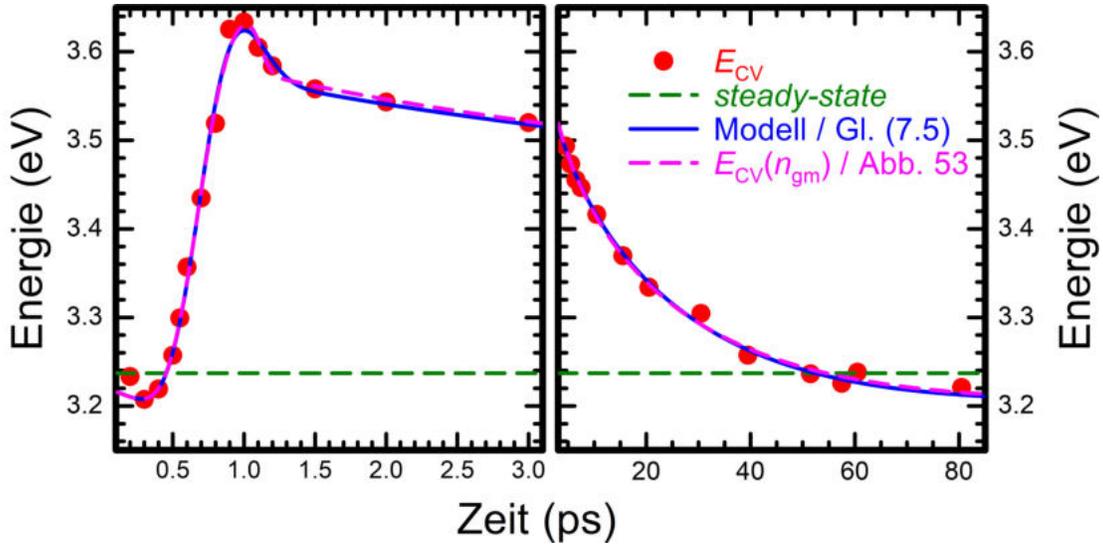


Abbildung 54: Beschreibung der gemessenen Übergangsenergien durch das Temperatur-Modell (blau). Zum Vergleich ist außerdem das Modell der Ladungsträgerkonzentration mit gain-Effekt eingezeichnet (rosa). Zur besseren Übersicht ist die gemessene Bandkante für die Gleichgewichtsmessung (steady-state, grün) ebenfalls eingezeichnet. Bearbeitet nach [97].

Es ist sehr wahrscheinlich, dass beide Effekte in der Probe stattfinden und einen Einfluss auf die Absorptionskante haben. Zum einen zeigen die Daten des Imaginärteils eindeutig ein Verhalten, welches durch *gain* beschrieben wird. Der Effekt der *gain*-Rekombination muss also berücksichtigt werden. Zum anderen ist es nur plausibel, dass sich die Probe oder zumindest das Kristallgitter des zb-GaN durch den Pump-Puls und der folgenden Relaxation von freien Ladungsträgern erwärmt. Eine Unterscheidung beider Effekte wäre mit der aktuellen Datenlage nur durch weitere komplexe Approximationen möglich und wird daher hier nicht durchgeführt.

Tabelle 8: Aus der Modell-Anpassung in Abb. 54 ermittelte Parameter der Relaxation (N_0, β_0, τ_0), Rekombination (τ_1), Diffusion (D, L_D) sowie des Aufheizens (T_1, β_3, τ_3) und Abkühlens (τ_4). Bearbeitet nach [97].

	Relax.	Recom.	Diff.	Heat.	Cool.
N_0 (cm ⁻³)	4.0×10^{20}	-	-	-	-
T_1 (K)	-	-	-	544	-
$\beta_{0,3}$ (ps)	0.74	-	-	1.09	-
$\tau_{0,1,3,4}$ (ps)	0.23	23.6	-	0.23	19.1
D (cm ² /s)	-	-	0.76	-	-
L_D (nm)	-	-	42.4	-	-

7.1.4 Photolumineszenz Ergebnisse

Neben den Messungen mit IRSE und UVSE wurden die zb-GaN-Proben außerdem auf ihre Emissionseigenschaften durch PL-Messungen untersucht [139]. Für ausgewählte Proben wurden sowohl Temperatur-Serien von 7 – 300 K als auch Leistungs-Serien durch Variation der Laser-Ausgangsleistung durchgeführt. In dieser Arbeit werden jedoch nur die Ergebnisse der temperaturabhängigen Messungen gezeigt und beschrieben. Die 7K-Messungen sind in Abb. 55 zusammengefasst. Die einzelnen Spektren sind auf ihr jeweiliges Maximum normiert und dann übereinander durch eine Verschiebung um 1 dargestellt. Zusätzlich sind die Modell-Kurven sowie die berechneten renormierten Bandlücken und Fermi-Energien eingezeichnet. Für die Proben GND2518, GND2522 und GND2511 sind zwei dominante Beiträge zu erkennen: einen höherenergetischen Exziton-Beitrag und einen D^0A^0 -Beitrag, welcher zudem das Maximum der Intensität liefert. Zusätzlich ist eine LO-Phonon-Replik ≈ 90 meV unterhalb des D^0A^0 -Signals, sichtbar. Die Beschreibung der genutzten Modell-Kurven erfolgt anhand spezifischer Beispiele im Folgenden.

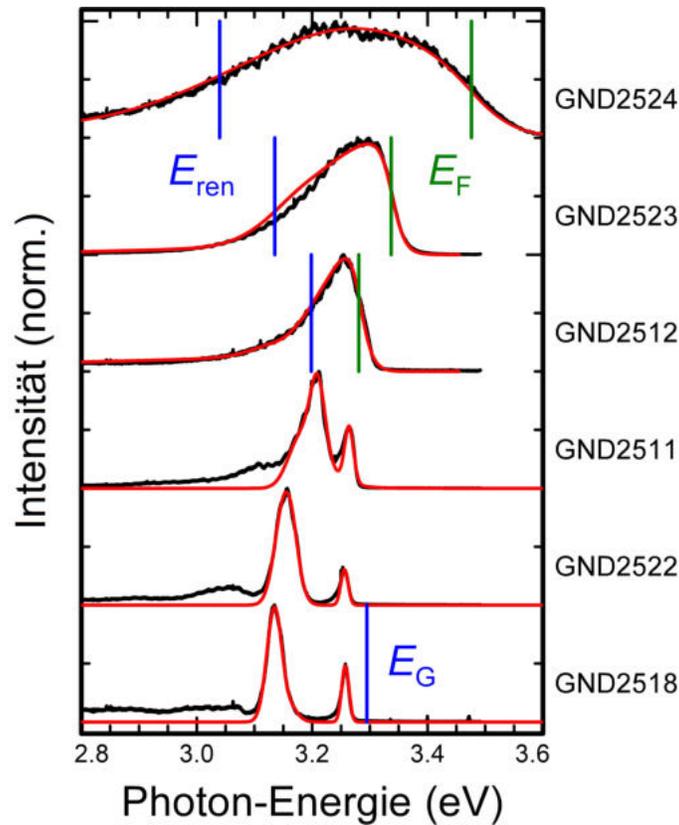


Abbildung 55: Tieftemperatur ($T = 7$ K) -Photolumineszenz-Messung der zinkblende GaN-Proben (schwarz), sowie Linienform-Beschreibung (rot) nach Kap. 6.2. Die einzelnen Spektren sind auf ihr jeweiliges Maximum normiert und zur bessere Übersicht vertikal verschoben. Die gemessenen bzw. berechneten Fermi-Energien (E_F) und renormierten Bandkanten (E_{ren}) sind ebenfalls dargestellt. Bearbeitet nach [139].

Die 7 K -Messung der undotierten Referenzprobe GND2518 ist für einen eingeschränkten Energiebereich in Abb. 56 dargestellt. Die eingezeichnete Modell-Kurve (Linienform-Anpassung) besteht aus drei einzelnen Beiträgen, welche entsprechend markiert wurden. Eindeutig sichtbar ist das Signal des D^0A^0 und das exzitonische Signal. Zusätzlich wurde ein e^-A^0 -Übergang modelliert, um die Linienform besser beschreiben zu können [140, 141]. Durch Kenntnis der Bandlücke von 3.295 eV für zb-GaN bei Tieftemperatur [22] und einer berichteten Exziton-Bindungsenergie von 25 meV [22, 142] ergibt sich, dass das Signal bei ≈ 3.26 eV (an ionisierten oder neutralen Störstellen gebundenen) Exzitonen zuzuordnen ist. Somit weisen diese eine Lokalisierungsenergie E_{lok} von 12.5 meV auf. Modelliert wird dieser Beitrag durch einen Gauß-Oszillator. Das Signal mit der größten Intensität erfolgt durch den D^0A^0 -Übergang. Auch dieser Beitrag wird durch

einen Gauß-Oszillator modelliert. Betrachtet man die Hochenergie-Flanke des D^0A^0 -Signals, so erkennt man eine schwache Asymmetrie. Diese wird als zusätzlicher e^-A^0 -Übergang interpretiert. Analog zum Band-Band-Übergang einer dotierten Probe wird diese Linienform über das Gauß-verbreiterte Produkt aus Zustandsdichte und Fermi-Dirac-Verteilung ($D'(k) \cdot f_e$) modelliert. Die energetischen Positionen aller drei Beiträge stimmen mit früheren Untersuchungen überein [22, 77, 131, 132]. Außerdem wird der e^-A^0 -Übergang genutzt, um das Akzeptor-Niveau über $E_A = E_G - E_{e^-A^0}$ zu 135 meV zu bestimmen [22, 131]. Daraus folgt durch Gl. (6.6) automatisch das Donator-Niveau zu $E_D = 25$ meV [22, 131].

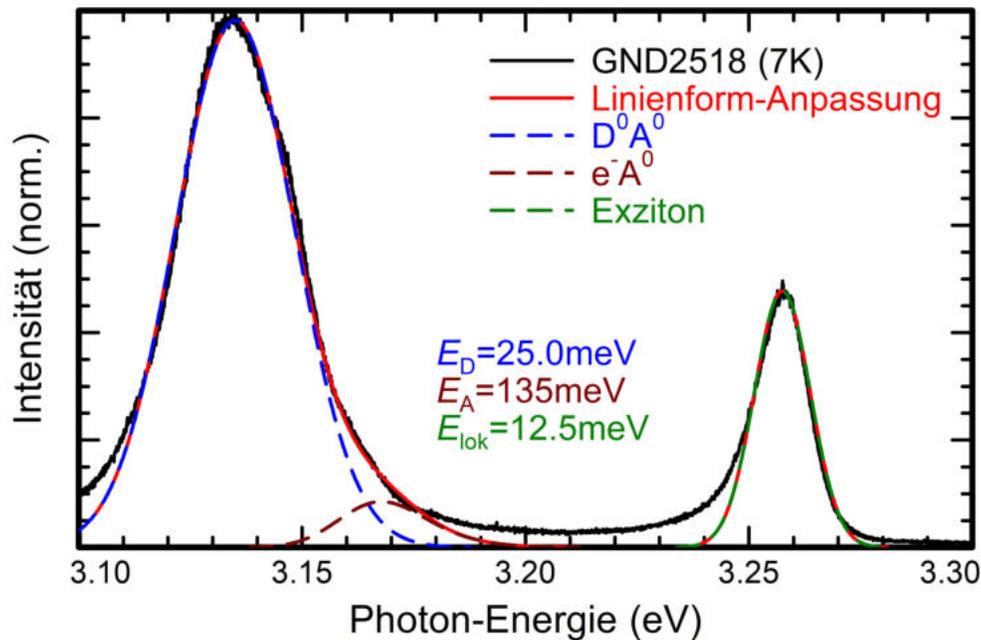


Abbildung 56: Vergrößerte Darstellung des Tieftemperatur ($T = 7$ K) -Spektrums (schwarz) der undotierten GND2518 im bandkantennahen Spektralbereich. Spektrum und Linienformen sind auf ihr Maximum normiert. Die Linienform-Anpassung (rot) des Spektrums besteht aus einem Donator-Akzeptor-Übergang (D^0A^0 , blau), einem Leitungsband-Akzeptor-Übergang (e^-A^0 , braun) und einem exzitonischen Beitrag (grün). Das sich daraus ergebenden Donator- (E_D) bzw. Akzeptor-Niveau (E_A) sowie die Lokalisierungsenergie (E_{lok}) sind ebenfalls angegeben. Bearbeitet nach [139].

Die gesamte Temperatur-Serie der Probe GND2518 ist hingegen in Abb. 57 zu sehen. Das Signal des D^0A^0 -Übergangs ist für $T > 50$ K nicht mehr nachweisbar, während das exzitonische Signal noch bis 150 K als solches erkennbar ist. Hier handelt es sich jedoch höchstwahrscheinlich um eine Überlagerung von freien und gebundenen Exzitonen [22]. Das Signal bei ≈ 3.06 eV in den Spektren zwischen 30 und 75 K wird als LO-Phonon-Replik des D^0A^0 -Übergangs interpretiert.

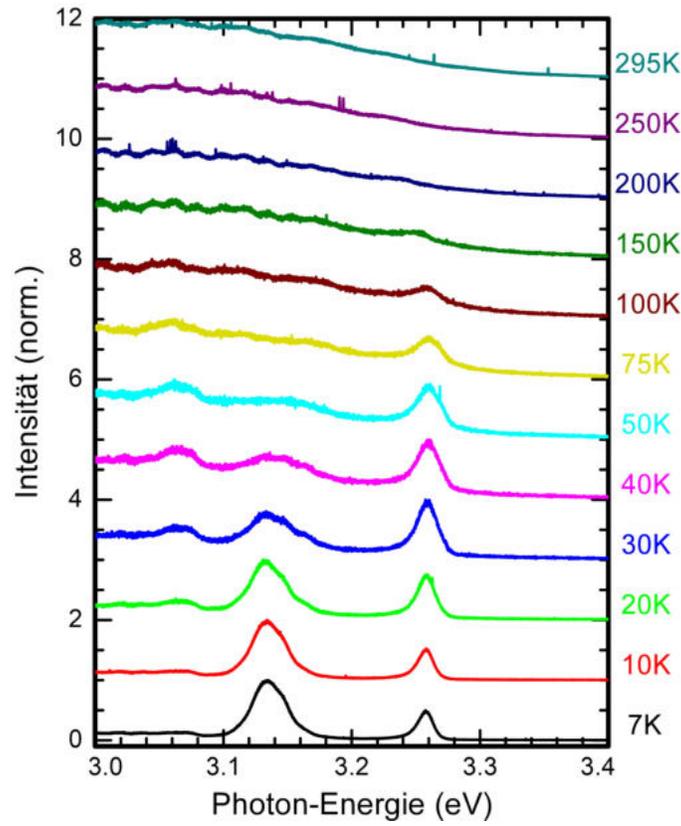


Abbildung 57: Temperatur-Serie von 7 bis 295 K der undotierten Probe GND2518. Jedes einzelne Spektrum ist auf sein jeweiliges Maximum normiert und dann für eine bessere Übersicht vertikal verschoben.

Nun soll die Temperatur-Serie einer dotierten Probe genauer analysiert werden. Die Messdaten sowie die im Folgenden beschriebene Auswertung sind in Abb. 58 dargestellt. Die Modell-Kurve besteht in diesem Fall aus zwei Beiträgen: einem Band-Band- und einem e^-A^0 -Übergang [139]. Für tiefe Temperaturen ($T < 50$ K) wird das Spektrum fast ausschließlich durch den strahlenden Band-Band-Übergang an der Fermi-Kante dominiert. Vergleicht man die Emissionskante für 7 K mit dem Ergebnis für die Absorptionskante in Tab. 6, fällt der Unterschied von ≈ 20 meV auf. Dieser ist durch mehrere Effekte erklärbar. Zunächst vergrößert sich die fundamentale Bandlücke mit abnehmender Temperatur. Gleichzeitig erfolgt die strahlende Rekombination jedoch nur auf das Niveau des VBM. Dies hat zur Folge, dass der Valenzbandbeitrag der Absorption, siehe Gl. (4.20) und (4.25), nicht gemessen wird. Des Weiteren ist die freie Ladungsträgerkonzentration bei tiefen Temperaturen leicht geringer als bei Raumtemperatur, da einige freie La-

dungsträger durch die verringerte thermische Energie entweder auf das Donator-Niveau zurückfallen oder von sogenannten Traps eingefangen werden [139]. Die Kombination aus verringerter freier Ladungsträgerdichte, größerer Bandlücke bei tiefen Temperaturen und Vernachlässigung des Valenzbandbeitrags im PL-Experiment führt auf den Unterschied zur Raumtemperatur-SE.

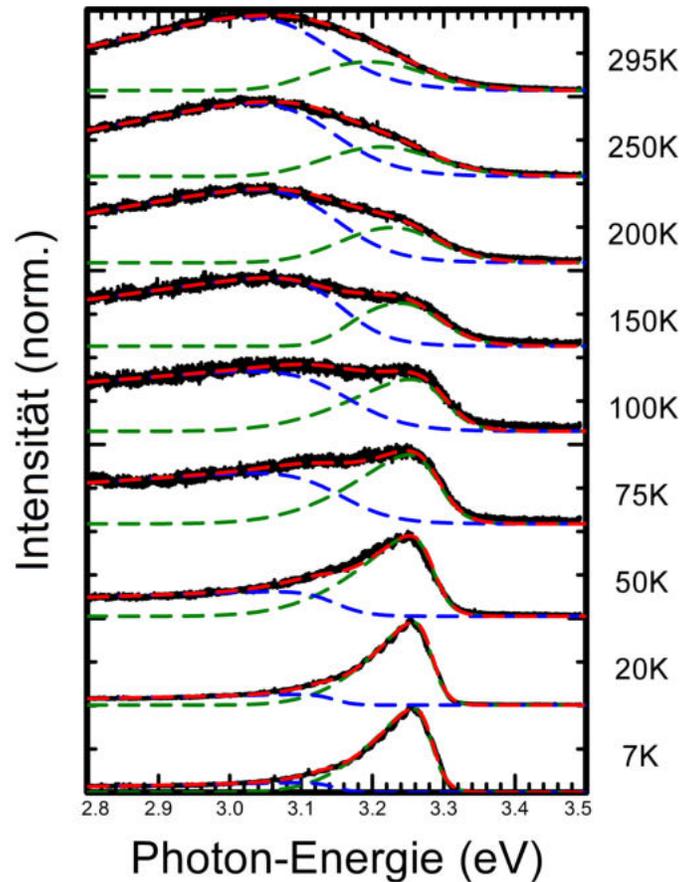


Abbildung 58: Temperatur-Serie von 7 bis 295 K der dotierten Probe GND2512. Jedes einzelne Spektrum (schwarz, durchgezogen) ist auf sein jeweiliges Maximum normiert und anschließend zur besseren Übersicht vertikal verschoben. Die Linienform-Anpassung (rot, gestrichelt) besteht aus zwei Beiträgen: Band-Band-Übergang (grün, gestrichelt) und Leitungsband-Akzeptor-Übergang (blau, gestrichelt). Bearbeitet nach [139].

Wird die Temperatur erhöht, so verbreitert sich das gemessene Spektrum, was als eine Erhöhung der Intensität des e^-A^0 -Übergangs interpretiert und durch zunehmend thermisch-aktivierte Ladungsträger erklärt wird [139]. Die energetische Position (Wendepunkt der rechten Flanke) dieses Übergangs entspricht der des Band-Band-Übergangs verringert um das Akzeptor-Niveau von 135 meV. Der Wechsel des dominanten Übergangs von Band-Band zu e^-A^0 kann durch die

Verschiebung der, aus der optischen Anregung (266 nm Laser) erzeugten, Löcher aus dem Valenzband ins Akzeptor-Niveau erklärt werden [139]. In n -dotierten Halbleitern sollten die meisten Akzeptoren durch Elektronen aus dem Leitungsband oder dem Donator-Niveau neutralisiert sein. Es scheint also, als müsse eine thermische Barriere oder Mindestenergie erreicht werden, bis die erzeugten Löcher in das energetisch günstigere Akzeptor-Niveau übergehen können.

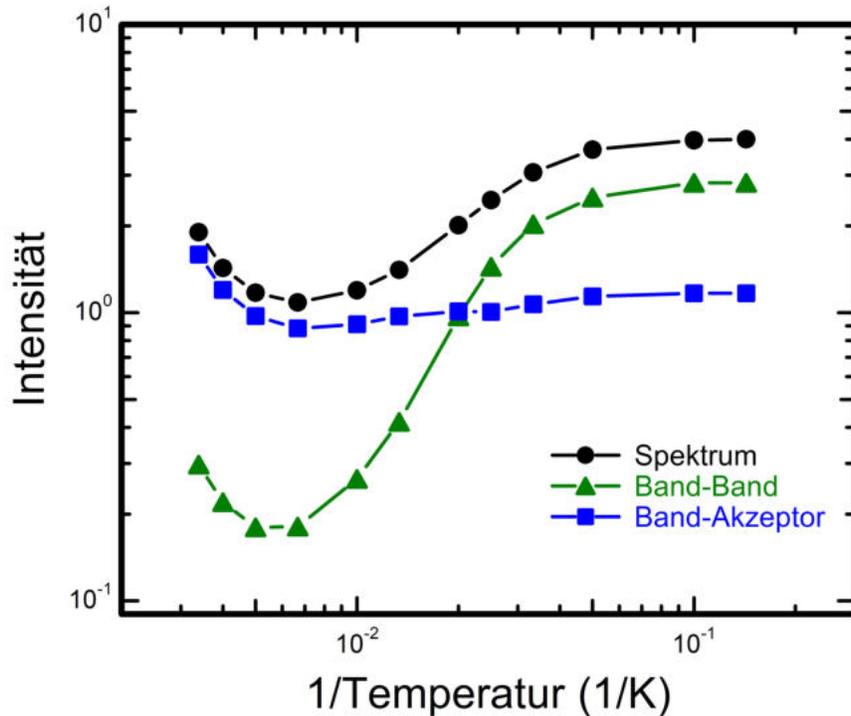


Abbildung 59: Gemessene Intensitäten (als Integral der Linienform) des gesamten Spektrums (schwarz), sowie für die Beiträge des Band-Band- (grün) bzw. des Leitungsband-Akzeptor- (blau) -Übergangs über der reziproken Temperatur. Bearbeitet nach [139].

Bestimmt man die Intensitäten als Integral des Spektrums, so können die einzelnen Beiträge sowie das Gesamtspektrum verglichen werden. Dies ist über der reziproken Temperatur in Abb. 59 aufgetragen. Man erkennt sofort, dass die Gesamtintensität des Spektrums für hohe Temperaturen (links) vor allem durch den e^-A^0 -Übergang entsteht. Bei einer Temperatur von ≈ 75 K übernimmt jedoch der Band-Band-Übergang den dominanten Beitrag zur Gesamtintensität. Das Ansteigen der Intensität bei hohen Temperaturen ist ein weiterer Hinweis auf eine thermische Aktivierung von Löchern. Ein ähnliches Verhalten konnte bereits in früheren Untersuchungen beobachtet werden [143].

7.2 AlGaN-Proben

Die Ergebnisse zur Probenserie A sind bereits in vorherigen Arbeiten diskutiert worden [66,144], weshalb sie hier nur als zusätzliche Datenpunkte verwendet werden. Die Auswertung der Serien B und C, welche vor allem die Dotierkonzentration der Proben und nicht den Al-Gehalt variieren, wird an ausgewählten Beispielen diskutiert.

7.2.1 Infraroter Spektralbereich

Die Messdaten für Ψ und Δ der Probe B-GND25940 sind in Abb. 60 dargestellt. Hierbei ergibt sich ein sehr ähnliches Spektrum zur Abb. 29 für die hochdotierte zb-GaN-Probe. Eine Plasmakante ist in Ψ bei $\approx 3500\text{ cm}^{-1}$ sichtbar, während Fabry-Pérot-Oszillationen das Spektrum für Wellenzahlen größer als 1000 cm^{-1} überlagern. Der gelungene pbp-Fit liefert die DF in Abb. 61.

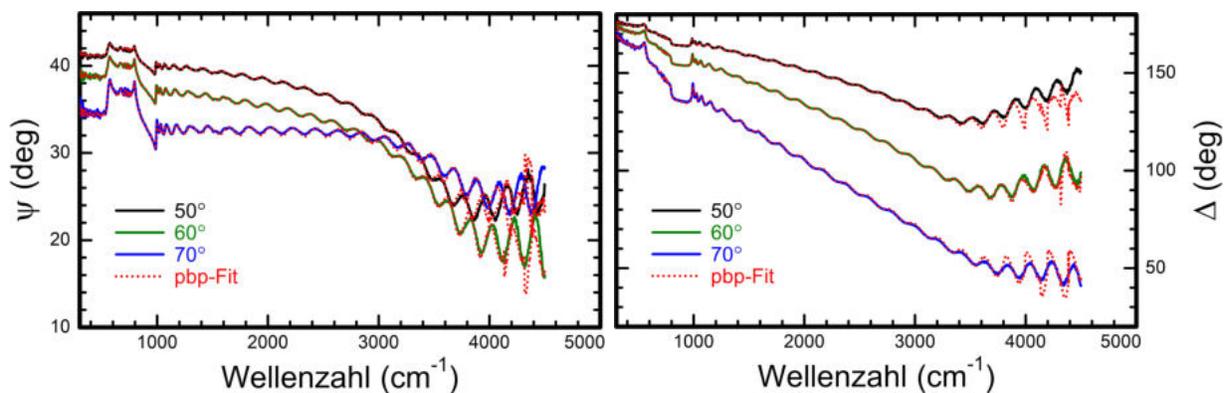


Abbildung 60: IRSE-Messdaten (durchgezogen) und pbp-Fit (gepunktet) in Ψ (links) und Δ (rechts) von B-GND2940 für drei verschiedene Einfallswinkel (50° , 60° und 70°). Bearbeitet nach [144].

Obwohl in Abb. 61 kaum sichtbar, weist die DF zwei verschiedene Phonon-Beiträge auf. Hierbei handelt es sich jedoch nicht um eine anharmonische Struktur, die für zb-GaN in Kap. 7.1.1 diskutiert wurde, sondern um eine Aufspaltung zwischen dem TO-Phonon des zb-GaN und dem des zb-AlN. Das Material weist ein GaN-artiges ($\omega_{\text{TO}}^{\text{GaN}} \approx 552\text{ cm}^{-1}$ [68, 70–72]) und ein AlN-artiges ($\omega_{\text{TO}}^{\text{AlN}} \approx 650\text{ cm}^{-1}$ [145, 146]) TO-Phonon auf, von denen das stärkere als GaN-artig identifiziert wird [118, 146]. Das Verhalten der Phonon-Beiträge wird später genauer untersucht. Neben den Phononen zeigt sich ein eindeutiger Plasmon-Beitrag im starken Ansteigen des Imaginärteils für kleine Wellenzahlen.

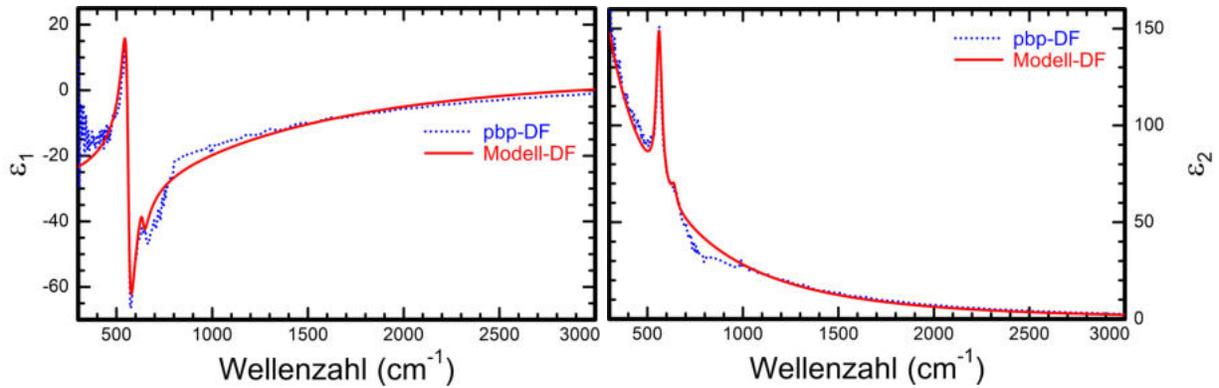


Abbildung 61: Modell-Anpassung (rot, durchgezogen) von Gl. (3.20) an die pbp-DF von B-GND2940 (blau, gepunktet) im infraroten Spektralbereich, getrennt in Real- (ϵ_1 , links) und Imaginärteil (ϵ_2 , rechts). Bearbeitet nach [144].

In Abb. 62 sind die DF im infraroten Spektralbereich aller Proben der Serie B zu finden. Der Einfluss der verschiedenen Ladungsträgerkonzentrationen ist vor allem im Imaginärteil zu erkennen, während die Phonon-Beträge alle ungefähr auf der gleichen Wellenzahl liegen, was die Annahme von ähnlichem Al-Gehalt in allen Proben unterstützt. Es ist dennoch zu beachten, dass entgegen der Erwartung die Probe mit der höchsten Ge-Effusionszellentemperatur (siehe Tab. 3) nicht den stärksten Plasmon-Beitrag aufweist. Dies könnte ein Hinweis auf unzureichende Probenqualität oder hohe Donator-Kompensation sein. Zusätzlich dazu weist die Probe B-GND2942 eine deutlich größere Plasmaverbreiterung als die anderen Proben der gleichen Serie auf. Dies erschwert die Auswertung der Messdaten erheblich und verursacht große Ungenauigkeiten für sämtliche Parameter dieser Probe.

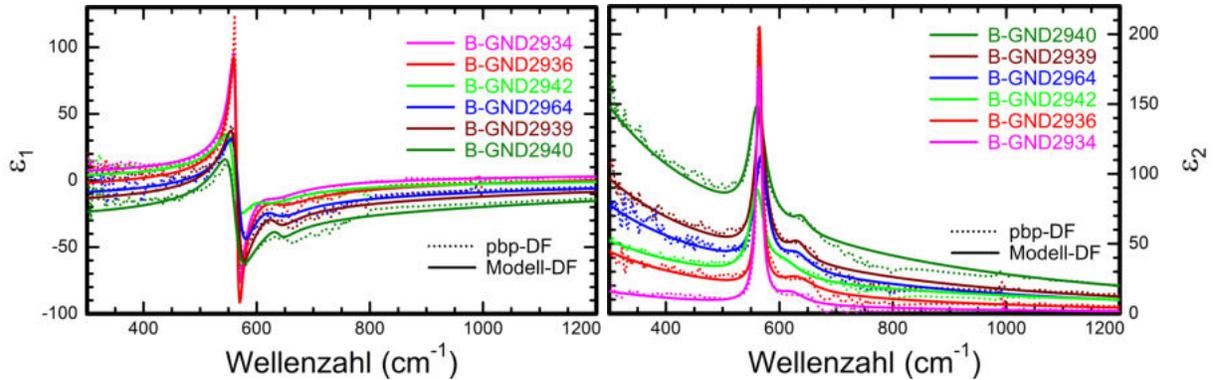


Abbildung 62: Vergleich der pbp- (gepunktet) und Modell- (durchgezogen) Dielektrischen Funktionen (links: Realteil ε_1 , rechts: Imaginärteil ε_2) aller zinkblende AlGaN-Proben der B-Serie ($x \approx 0.26$) im infraroten Spektralbereich. Es werden zwei Lorentz-Oszillatoren als Phonon-Beitrag verwendet: GaN-artig bei $\approx 560 \text{ cm}^{-1}$, AlN-artig bei $\approx 620 \text{ cm}^{-1}$. Bearbeitet nach [144].

Unter Berücksichtigung des Al-Gehalts können Vielteilcheneffekte und Plasmafrequenz neu berechnet werden, was die Bestimmung der optischen Ladungsträgerkonzentration für AlGaN ermöglicht. Dabei wurde die Bandkante nach Gl. (4.1) entsprechend des *band gap bowing* aus dem angegebenen Al-Gehalt ermittelt. Für die Berechnung des E_p -Parameters wurde eine lineare Interpolation zwischen den P -Parametern von zb-GaN (0.724 eVnm) und zb-AlN (0.730 eVnm) vorgenommen [144]. Alternativ könnte man auch eine Interpolation zwischen den Bandmassen $m_0^*(\Gamma)$ vornehmen. Es zeigt sich, dass die Unterschiede vernachlässigbar klein sind und die Interpolation des P -Parameter weniger Rechenaufwand erfordert.

Die Ergebnisse der Plasmafrequenz-Berechnung sind in Abb. 63 dargestellt. Hier zeigt sich ein Wechsel in der Reihenfolge der Proben B-GND2942 und B-GND2964, der durch die erhöhte Plasmafrequenz von B-GND2942 zu verstehen ist.

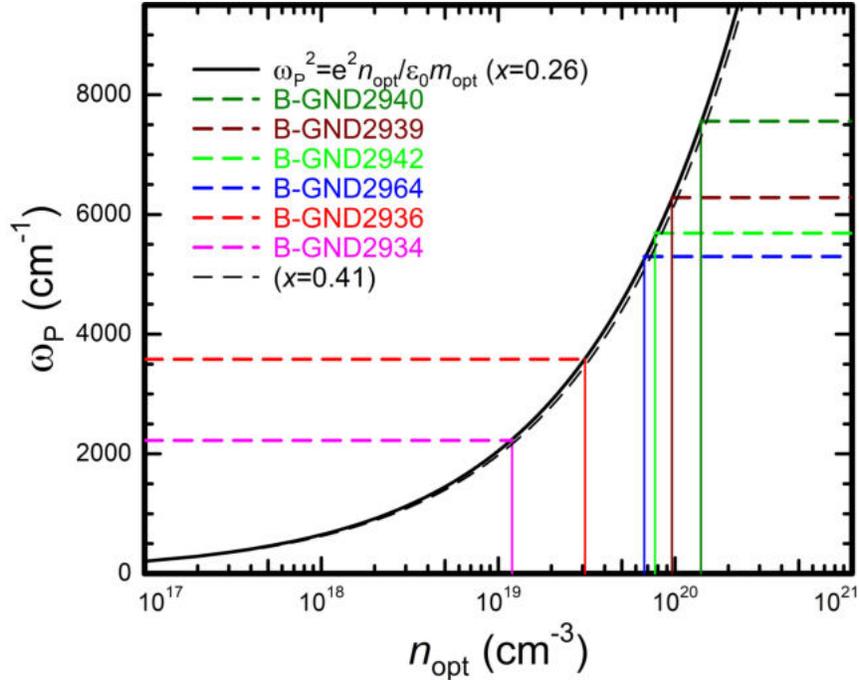


Abbildung 63: Plasmafrequenz für einen Al-Gehalt von $x = 0.26$ in Abhängigkeit der optischen Ladungsträgerdichte, berechnet nach Gl. (4.31). Die Plasmafrequenzen aus Abb. 62 dienen der Bestimmung der optischen Ladungsträgerkonzentration für die zinkblende AlGaIn-Proben der Serie B. Zusätzlich ist die Plasmafrequenz für einen Al-Gehalt von $x = 0.41$ (für Serie C) eingezeichnet, welche nur einen minimalen Unterschied zu $x = 0.26$ aufweist.

Eine vollkommen analoge Auswertung wurde für die Proben der Serie C durchgeführt. Es werden jedoch nur die Ergebnisse der DF in Abb. 64 gezeigt, da es fast keinen Unterschied in der Bestimmung der Plasmafrequenz zwischen $x = 0.26$ (Probenserie B) und $x = 0.41$ (Probenserie C) gibt (siehe Abb. 63). Hier ist eine Verschiebung der Phonon-Beiträge im Vergleich zu Abb. 62 deutlich erkennbar, verursacht durch den unterschiedlichen Al-Gehalt. Zudem ist das Al-artige Phonon deutlicher sichtbar. Außerdem sind die verschiedenen ausgeprägten Plasmon-Beiträge für unterschiedliche Ladungsträgerkonzentrationen sichtbar, auch wenn es hier ebenfalls eine Vertauschung der Reihenfolge zwischen Plasmon-Beitrag und Ge-Effusionzellentemperatur gibt (siehe Tab. 3). Im Vergleich zur Serie B ist dieser jedoch schwächer ausgeprägt. Eine vollständige Auflistung der ermittelten Parameter für die IR-DF der Probenserien B und C, sowie die berechneten optischen Ladungsträgerkonzentrationen sind im Anhang zu finden.

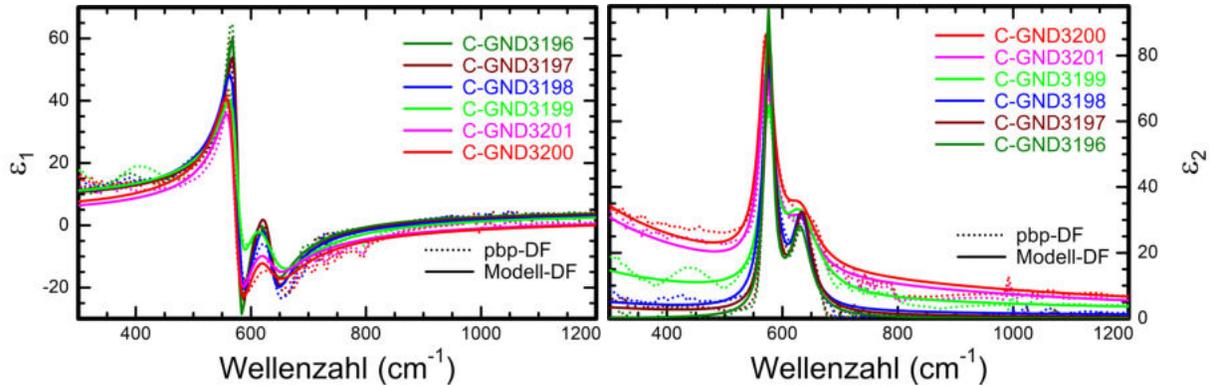


Abbildung 64: Vergleich der pbp- (gepunktet) und Modell- (durchgezogen) Dielektrischen Funktionen (links: Realteil ϵ_1 , rechts: Imaginärteil ϵ_2) aller zinkblende AlGaIn-Proben der C-Serie ($x \approx 0.41$) im infraroten Spektralbereich. Es werden zwei Lorentz-Oszillatoren als Phonon-Beitrag verwendet: GaN-artig bei $\approx 570 \text{ cm}^{-1}$, AlN-artig bei $\approx 630 \text{ cm}^{-1}$.

Stellt man die ermittelten Phonon-Resonanzfrequenzen über dem Al-Gehalt dar, so erhält man Abb. 65. Hier sind zusätzlich die Frequenzen aus der Probenreihe A eingezeichnet. Man erkennt sofort, dass die TO-Frequenz des GaN-artigen Phonons von $\omega_{\text{TO}}^{\text{GaN}} = 552 \text{ cm}^{-1}$ aus mit zunehmenden Al-Gehalt linear ansteigt. Auch das AlN-artige Phonon scheint sich linear mit dem Al-Gehalt zu ändern, in dem es von $\omega_{\text{TO}}^{\text{AlN}} = 650 \text{ cm}^{-1}$ aus mit abnehmenden Al-Gehalt sinkt. Gleichzeitig erhält man eine Vertauschung der Amplituden beider Phonon-Beiträge bei $x \approx 0.5$.

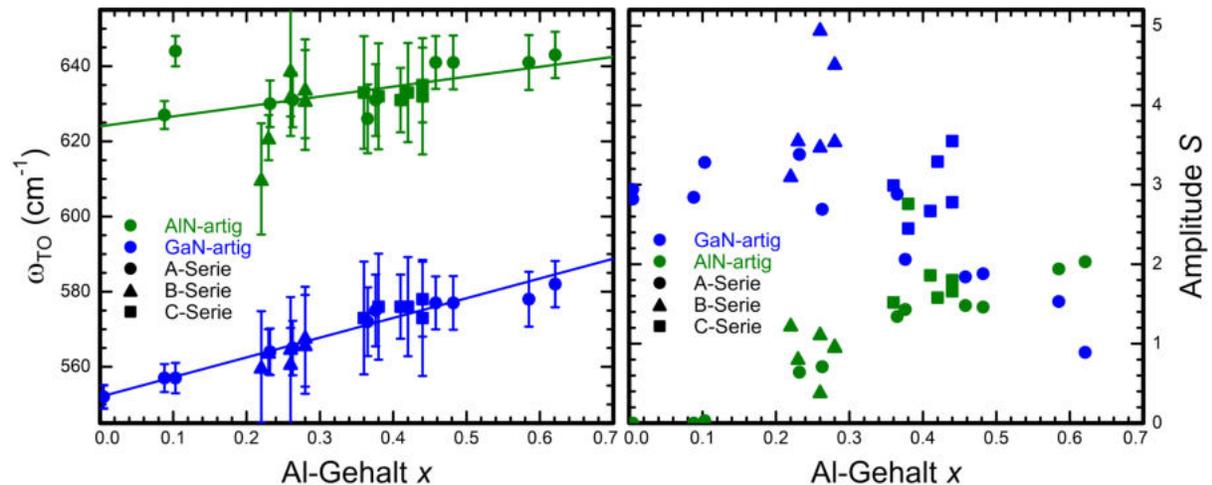


Abbildung 65: Darstellung der Phonon-Beiträge (GaN-artig: blau, AlN-artig: grün) aller zinkblende AlGaIn-Proben über dem Al-Gehalt. Die Resonanzfrequenzen (ω_{TO} , links) zeigen einen linearen Zusammenhang, wobei zusätzlich die gemessene Verbreiterung (γ_{TO} , siehe Kap. 3.1) als Fehlerbalken eingezeichnet ist. Die Amplituden (rechts) zeigen einen Abfall des GaN-artigen Phonons und ein Ansteigen des AlN-artigen Phonons mit steigendem Al-Gehalt. Bearbeitet nach [144].

7.2.2 Bandkantennahe Spektralbereich

Obwohl die Auswertung der AlGa_N-Proben im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich prinzipiell analog zu den zb-GaN-Proben erfolgte, so stellte sich die praktische Umsetzung als anspruchsvoll heraus. Dies wird auf drei grundlegende Eigenschaften der AlGa_N-Proben zurückgeführt: 1. der Einbau der Al-Atome im zb-AlGa_N unterliegt statistischen Fluktuationen wodurch eine Legierungsverbreiterung auftritt, 2. die Proben haben durch das Hinzufügen von Al an Kristallqualität verloren, was vermehrten hexagonale Einschlüsse entspricht, und 3. die Ge-Dotierung erfolgte nicht gleichmäßig über die gesamte AlGa_N-Schicht, sondern es bildete sich eine hochdotierte AlGa_N-Oberschicht von etwa 36 nm, während der restliche Teil der AlGa_N-Schicht nicht- oder niederdotiert war [43]. Dies macht besonders die Kombination von IRSE- und UVSE-Ergebnissen umständlich, da die IRSE aufgrund ihrer größeren Wellenlänge die dünne, hochdotierte Topschicht nicht eindeutig nachweisen kann [144]. Stattdessen wird die gemittelte Antwort der gesamten AlGa_N-Schicht gemessen. Dennoch sind in den Abb. 66 und 67 die Messdaten und pbp-Ergebnisse, sowie die Modell-Anpassung für die Probe B-GND2940 dargestellt.

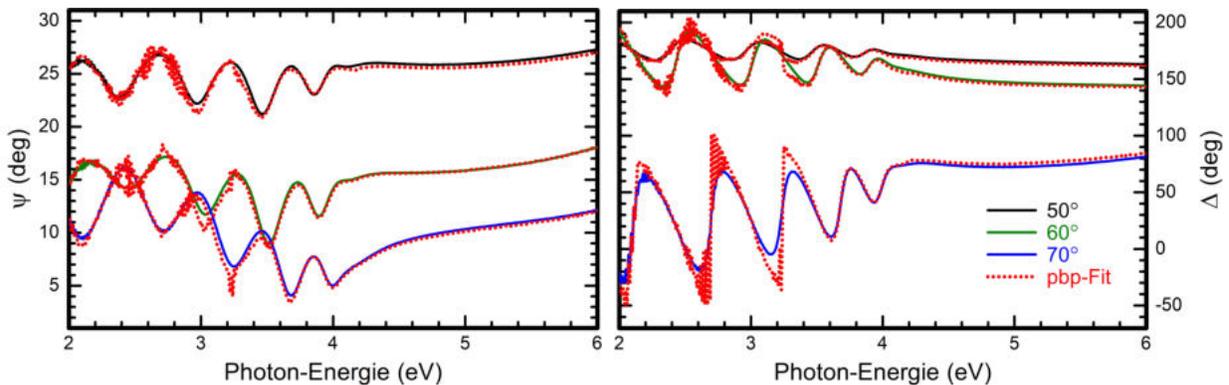


Abbildung 66: UVSE-Messdaten (durchgezogen) und pbp-Fit (gepunktet) in Ψ (links) und Δ (rechts) von B-GND2940 für drei verschiedene Einfallswinkel (50°, 60° und 70°). Bearbeitet nach [144].

Auch in diesen Spektren zeigen sich unterhalb der Bandkante Fabry-Pérot-Oszillationen, welche an den infraroten Spektralbereich anschließen. Im Vergleich zu Abb. 37 oder 40 ist dieses Ende der Fabry-Pérot-Oszillationen jedoch deutlich verbreitert. Dies spiegelt sich ebenfalls in der

breiteren Absorptionskante im Imaginärteil der DF wider. Die pbp-Anpassung und die daraus folgende pbp-DF wurden für die hochdotierte oberste AlGaN-Schicht durchgeführt.

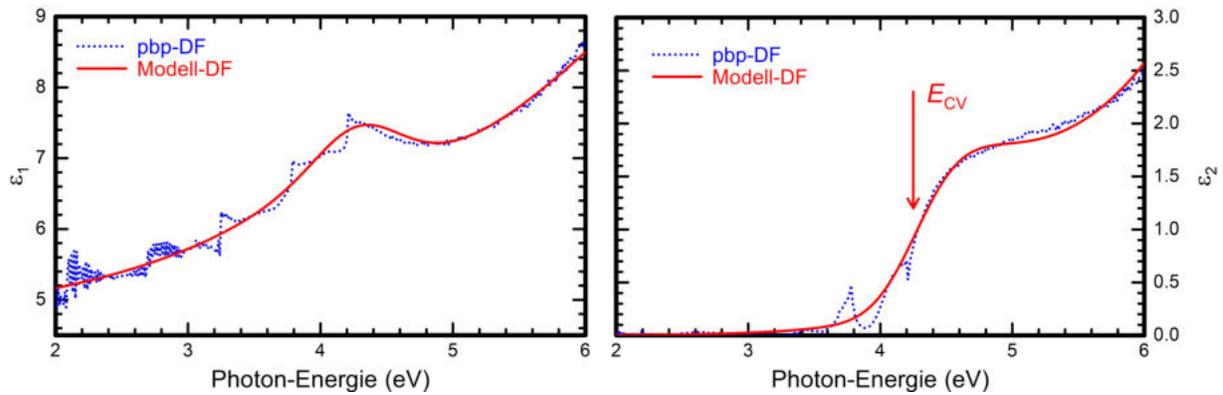


Abbildung 67: Modell-Anpassung (rot, durchgezogen) durch PSEMI-Oszillatoren an die pbp-DF von B-GND2940 (blau, gepunktet) im bandkantennahen Spektralbereich, getrennt in Real- (ϵ_1 , links) und Imaginärteil (ϵ_2 , rechts). Die, als Wendepunkt der Absorptionskante bestimmte, Übergangsenergie E_{CV} ist mit einem Pfeil markiert. Bearbeitet nach [144].

Der Imaginärteil der DF jeder Probe aus Serie B ist in Abb. 68 gezeigt. Zum einen erkennt man den Einfluss der verschiedenen Dotierkonzentrationen durch die Verschiebung der Absorptionskante zu höheren Energien. Gleichzeitig ist auch die Verbreiterung der Absorptionskante von Probe zu Probe verschieden. Dies könnte entweder, wie in Abb. 42, durch die unterschiedlichen Ladungsträgerkonzentrationen erklärbar sein, oder durch die leicht verschiedenen Al-Gehalte und die daraus entstehenden unterschiedlichen Kristallqualitäten. Aus der Übersicht sticht die Probe B-GND2942 aufgrund ihrer mangelhaften pbp-Daten heraus. Auch die Amplitudenverhältnisse sind teilweise entgegen der Erwartung von höherer Amplitude bei höherer Ladungsträgerkonzentration, wie in Vergleich zum zb-GaN in Abb. 42.

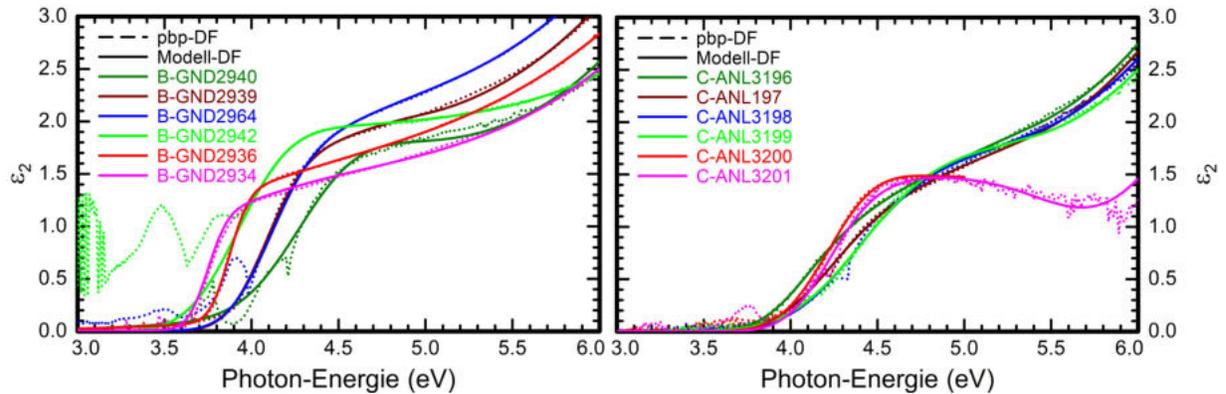


Abbildung 68: Vergleich des pbp- (gepunktet) und Modell- (durchgezogen) Imaginärteils der Dielektrischen Funktionen (DF) der zinkblende AlGaIn-Probenreihen B (links, $x \approx 0.26$) und C (rechts, $x \approx 0.41$) im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich. Bearbeitet nach [144] (links).

Die Proben der Serie C wurden auf identische Weise ausgewertet, jedoch gestalteten sich diese als noch unzugänglicher. Dies spiegelt sich in den ebenfalls in Abb. 68 gezeigten DF wider, die stark verbreitert sind. Es wurde dennoch versucht die Übergangsenergien als Wendepunkte der DF zu bestimmen. Die E_0 -Parameter der PSEMI-M0-Oszillatoren, genutzt zur Beschreibung der Linienform, von sämtlichen AlGaIn-Proben ist in Abb. 69 über dem Al-Gehalt dargestellt. Die Proben der Serie A entsprechen dem Verlauf des *band gap bowing*, eingeführt in Kap. 4. Die Abweichungen von diesem Verlauf in den Proben der Serien B und C sind durch die Dotierungen verursacht. Ähnlich zu Kap. 7.1.2 finden sich in Tab. 9 ausgewählte Ergebnisse der UVSE-Untersuchungen.

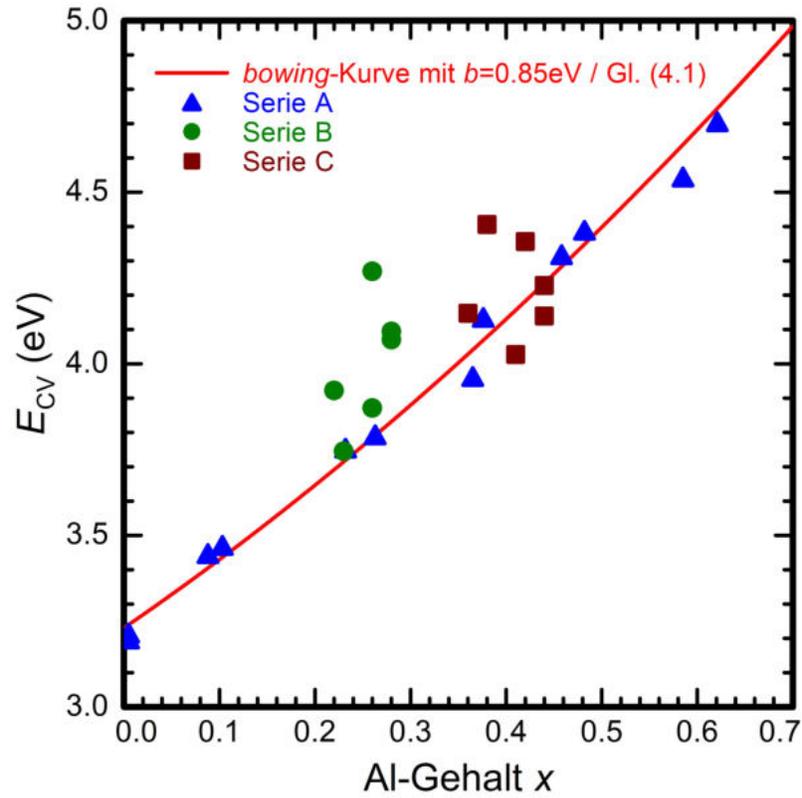


Abbildung 69: Gemessene Übergangsenergien E_{CV} aller zinkblende AlGaN-Proben über dem Al-Gehalt. Die Proben der Serie A folgen dem theoretischen *band gap bowing* (*bowing*-Kurve, rot, siehe Kap. 4), während die Proben der Serien B und C durch Vielteilcheneffekte sichtbar von der *bowing*-Kurve abweichen. Bearbeitet nach [144].

Tabelle 9: Auflistung ausgewählter Parameter aus der UVSE-Auswertung der zinkblende AlGaIn-Probenserien B und C: AlGaIn-Schichtdicke d_{UVSE} , Amplitude $A0$, Energieposition $E0$ und Verbreiterung $B0$ des PSEMI-M0-Oszillator zur Beschreibung der Übergangsenergie $E_{CV,UVSE}$. Die aus der Infrarot-Auswertung gewonnene optische Ladungsträgerkonzentration n_{opt} ist ebenfalls angegeben.

Probe	x	d_{UVSE} (nm)	n_{opt} (cm^{-3})	$A0$	$E0 = E_{CV,UVSE}$ (eV)	$B0$ (eV)
B-GND2934	0.23	442	1.2×10^{19}	1.034	3.745	0.106
B-GND2936	0.26	425	3.1×10^{19}	1.185	3.871	0.106
B-GND2939	0.28	395	9.6×10^{19}	1.484	4.070	0.206
B-GND2940	0.26	418	1.4×10^{20}	1.273	4.269	0.306
B-GND2964	0.28	460	6.7×10^{19}	1.544	4.094	0.227
B-GND2942	0.22	491	7.7×10^{19}	1.901	3.922	0.273
C-ANL3196	0.41	421	2.6×10^{18}	0.552	4.027	0.230
C-ANL3197	0.44	375	3.0×10^{18}	0.514	4.139	0.275
C-ANL3198	0.42	359	3.8×10^{19}	0.540	4.356	0.356
C-ANL3199	0.38	389	9.8×10^{19}	0.613	4.406	0.356
C-ANL3200	0.44	438	5.7×10^{19}	0.719	4.228	0.258
C-ANL3201	0.36	415	4.3×10^{19}	0.350	4.147	0.214

Die graphische Darstellung der optischen Ladungsträgerkonzentration ist in Abb. 70 gezeigt. Trotz der umständlichen Auswertung, sowohl in der IRSE als auch UVSE, kann der Verlauf der Übergangsenergien sehr gut durch das Vielteilchenmodell aus Kap. 4.2 beschrieben werden. Die verwendeten Parameter für Bandkante und effektive Masse, sowie der daraus folgende E_P -Parameter, wurden wie in Kap. 7.2.1 beschrieben berechnet. Die Proben der Serie C hingegen lassen sich durch dieses Modell nicht beschreiben. Hierfür liegt die Vermutung jedoch nahe, dass dies an der bisher unzureichenden Auswertung sowohl der IRSE- als auch UVSE-Daten liegt. Mögliche Verbesserungsvorschläge beinhalten ein Ladungsträgerprofil, ähnlich der Auswertung von trSE-Daten, oder eine Überprüfung des angegebenen Al-Gehalts.

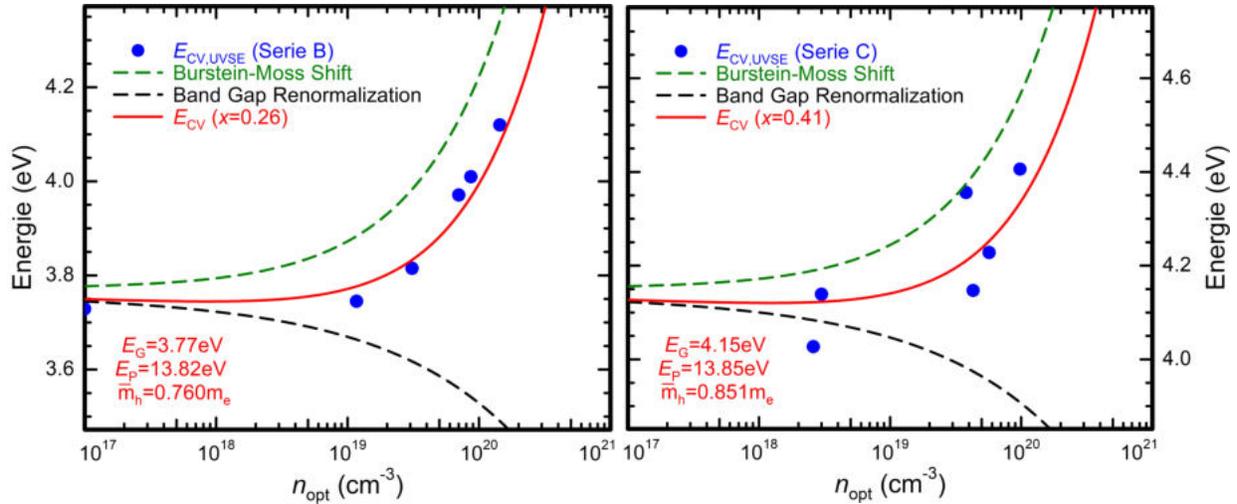


Abbildung 70: Gemessene Übergangsenergien $E_{CV,UVSE}$ über der bestimmten optischen Ladungsträgerdichte n_{opt} für die Probenserien B (links, $x \approx 0.26$) und B (rechts, $x \approx 0.41$). Modell-Anpassung (rot) gemäß der Vielteilcheneffekte, beschrieben in Kap. 4.2. Die einzelnen Beiträge der Burstein-Moss-Verschiebung (grün) und Bandkantenrenormierung (schwarz) sind ebenfalls dargestellt.

8 Zusammenfassung und Ausblick

Die optischen Eigenschaften der Zinkblende-Phase von GaN (zb-GaN) und AlGaN (zb-AlGaN) in (001)-Orientierung wurden durch verschiedene Messmethoden von 37 meV bis 6.5 eV untersucht. Hierfür wurde insbesondere die Dielektrische Funktion (DF) durch spektroskopische Ellipsometrie im infraroten (IRSE) und bandkantennahen (UVSE) Spektralbereich bestimmt. Zusätzlich wurden die Prozesse der Relaxation, Rekombination und Diffusion von freien Ladungsträgern in zb-GaN nach Hochenergieanregung anhand von zeitaufgelöster Ellipsometrie (trSE) approximiert. Als Besonderheit musste hierbei ein Ladungsträgerprofil innerhalb des zb-GaN aufgrund der verhältnismäßig großen Schichtdicke berücksichtigt werden.

Ein Großteil dieser Arbeit beschäftigte sich mit dem Einfluss von freien Ladungsträgern auf die optischen Eigenschaften, insbesondere der Übergangsenergie zwischen Leitungs- und Valenzband. Hierfür wurde ein selbst-konsistentes Modell basierend auf Vielteilcheneffekten (Bandkantenrenormierung und Burstein-Moss-Verschiebung) und Kane-Bandstruktur erstellt, welches die Ergebnisse von IRSE und UVSE miteinander verknüpft. Somit konnte durch Kenntnis der Plasmafrequenz, effektive Elektronmasse und Absorptionskante ein funktionaler Zusammenhang zwischen freier Ladungsträgerkonzentration und Übergangsenergie aufgestellt werden. Dieses Modell konnte durch Untersuchung von verschieden stark n -dotierten zb-GaN und zb-AlGaN experimentell nachgewiesen werden. Die Dotierung wurde für die zb-GaN-Proben entweder durch Einbau von Si oder Ge bis zu $n_{\text{opt}} \approx 1.75 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ realisiert, was zu einer Übergangsenergie von $E_{\text{CV}} \approx 3.7 \text{ eV}$ führt. Die zb-AlGaN-Proben hingegen waren ausschließlich mit Ge dotiert. Unabhängig von der Art der Dotierung konnte insbesondere in der DF im infraroten Spektralbereich der Einfluss der freien Ladungsträger als Plasmon-Beitrag zur DF bestimmt werden. Die Ergebnisse der IRSE- und UVSE-Messungen konnten anschließend durch zusätzliche Raman- und Photolumineszenz-Messungen unterstützt bzw. bestätigt werden. In den zb-AlGaN-Proben konnte zudem der Einfluss unterschiedlicher Al-Konzentrationen auf die Phonon-Beiträge zur infrarot DF sowie die Verschiebung der fundamentalen Bandkante durch *band gap bowing* untersucht werden.

Das weitere Hauptaugenmerk lag auf den trSE-Messungen, die als relativ neue Methodik noch viele Unbekannte aufweisen. Nichtsdestotrotz bot sich zb-GaN aufgrund seiner Bandstruktur und dem aus dieser Arbeit bekannten Zusammenhang zwischen Ladungsträgerkonzentration und Übergangsenergie als hervorragende Wahl für dieses Experiment an. Als einziger Nachteil der verwendeten Probe stellte sich die Schichtdicke von ≈ 600 nm heraus, da diese zu einem signifikanten Ladungsträgerprofil und damit zu stark variierenden Übergangsenergien innerhalb der zb-GaN-Schicht führte. Durch komplexe Modellierung der beteiligten Prozesse von Relaxation, Rekombination und Diffusion sowie mehreren notwendigen Annahmen, insbesondere das streng genommen unzulässige Vernachlässigen der Beiträge freier Löcher, war es möglich die aufgenommenen Messdaten zwischen 100 fs und 5 ns nach der Hochenergieanregung auszuwerten. Dies scheint die erste Auswertung von trSE-Messungen mit erheblicher Schichtdicke und daraus folgendem Ladungsträgerprofil zu sein, da keine entsprechenden Referenzen in der Literatur gefunden werden konnten. Des Weiteren konnte der zeitliche Verlauf der Übergangsenergien bzw. der Ladungsträgerkonzentration hervorragend beschrieben werden, wenn entweder eine zusätzliche gain-Rekombination oder die entstehenden Temperatur-Effekte berücksichtigt wurden. Hierbei wurde die gain-Rekombination durch negative Absorption zu bestimmten Zeiten motiviert, während der Relaxations-Prozess der freien Ladungsträger die Gittertemperatur erhöhen sollte. Daher wurde die Schlussfolgerung gezogen, dass beide Effekte einen Beitrag zu den gemessenen Übergangsenergien liefern, die in dieser Arbeit jedoch nicht aufgeschlüsselt werden konnten.

In dieser Arbeit war es bedauerlicherweise noch nicht möglich, den Einfluss von Dotierung auf die trSE-Messungen zu analysieren. Es ist zu erwarten, dass sich die Gesamtzahl an erzeugten Elektron-Loch-Paaren in dotierten Proben nicht signifikant ändert. Da sich jedoch bereits freie Elektronen im Leitungsband befinden, führt die Hochenergieanregung unter anderem nur zu einer Verdoppelung der freien Ladungsträgerkonzentration, im Gegensatz zu der in dieser Arbeit untersuchten undotierten Probe. Folglich sollte eine schwächere Verschiebung der Absorptionskante beobachtet werden, als in dieser Arbeit dargestellt. Des Weiteren sind Untersuchungen mit unterschiedlichen Anregungsintensitäten auch für die undotierte Probe von Interesse, da der Gleichgewichtspunkt zwischen Relaxation und Rekombination bzw. Diffusion in dieser Arbeit

genau um den Endpunkt des messbaren Spektralbereichs liegt. Geringere Anregungsleistung würde diesen Umkehrpunkt des zeitlichen Verlaufs der Absorptionskante zu kleineren Energien verschieben, was eine genauere Analyse der DF erlauben würde.

Für zukünftige Arbeiten wäre es von besonderem Interesse, sich mit dem Einfluss von freien Löchern in p -dotierten Material zu beschäftigen. Dies umfasst vor allem den durch freie Löcher erzeugten Beitrag zur Bandkantenrenormierung. Zudem muss für Materialien wie zb-GaN auf eine Valenzband-Unterscheidung geachtet werden, da die unterschiedlichen Lochmassen der einzelnen Valenzbänder zu verschiedenen starken Renormierungseffekten führen sollten. Ein erster Ansatz wäre es also, eine gemittelte bzw. effektive Bandkantenrenormierung für p -dotiertes Material anzunehmen. Zusätzlich muss für eine akkurate Beschreibung der trSE-Experimente auch eine Unterscheidung der Rekombinations- und Diffusions-Prozesse nach Elektronen und Löchern erfolgen. Obwohl diese Arbeit eine ausreichend gute Approximation der Prozesse durch alleinige Betrachtung der Elektronen bietet, ermöglicht eine Berücksichtigung der Loch-Beiträge definitiv eine genauere Bestimmung der materialspezifischen Parameter, bspw. der Rekombinationszeit. Hierfür werden jedoch sehr wahrscheinlich noch komplexere Modellierungen und Darstellungen benötigt. Falls möglich, empfiehlt es sich zudem die trSE-Messungen im infraroten Spektralbereich durchzuführen, so dass der markante Plasmon-Beitrag eine eindeutige Bestimmung der erzeugten Ladungsträgerkonzentration ermöglichen sollte.

Anhang

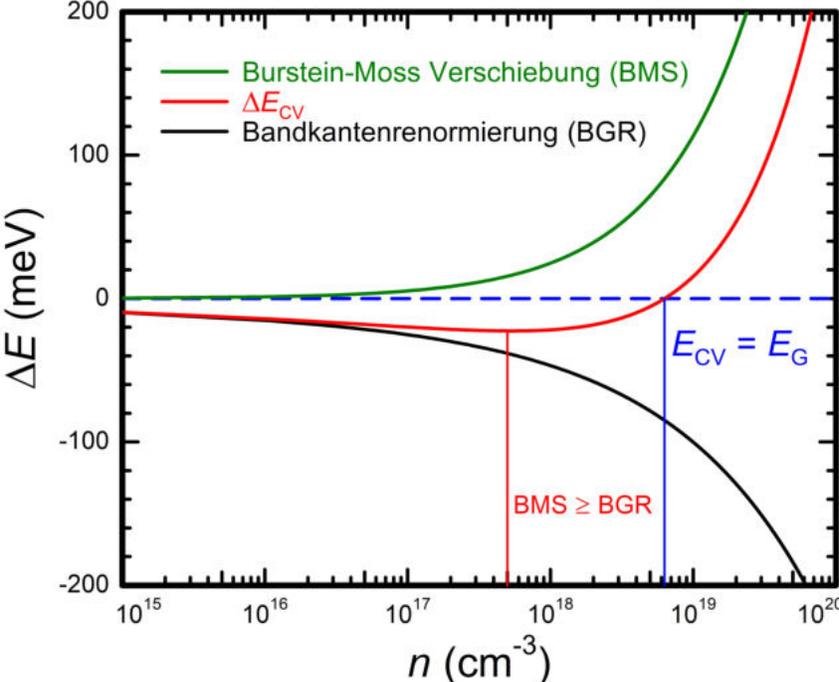


Abbildung 71: Beiträge der Bandkantenrenormierung (BGR, schwarz) und der Burstein-Moss-Verschiebung (BMS, grün) zur Übergangsenergie (E_{CV} , rot). Die Ladungsträgerkonzentrationen, an denen der BMS- den BGR-Beitrag überwiegt, sowie die Kompensation beider Effekte sind durch vertikale Linien markiert.

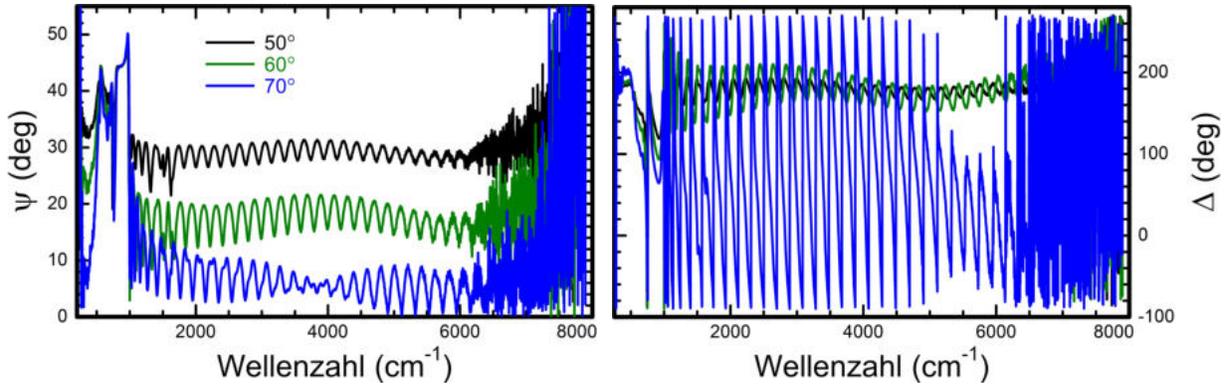


Abbildung 72: IRSE-Messdaten in Ψ (links) und Δ (rechts) von GND2518 über den insgesamt gemessenen Spektralbereich für drei verschiedene Einfallswinkel (50° , 60° und 70°).

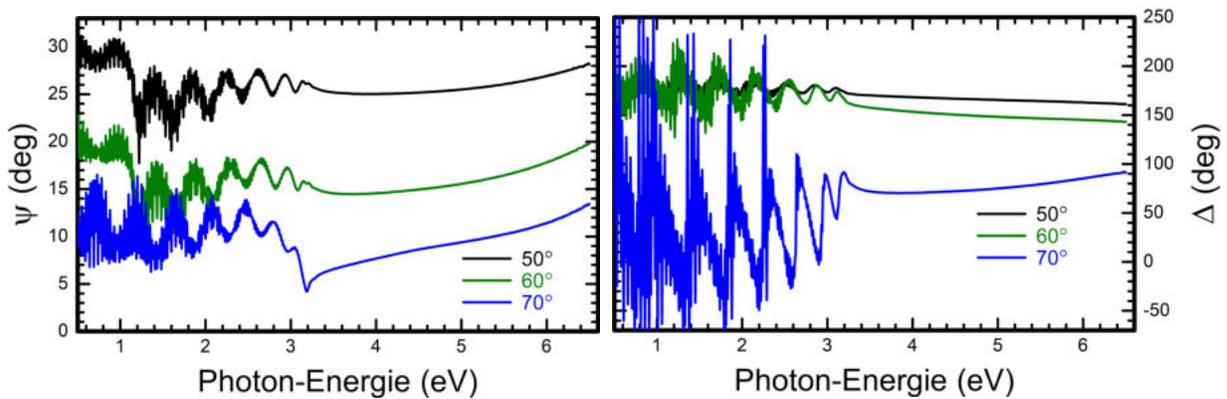


Abbildung 73: UVSE-Messdaten in Ψ (links) und Δ (rechts) von GND2518 über den insgesamt gemessenen Spektralbereich für drei verschiedene Einfallswinkel (50° , 60° und 70°).

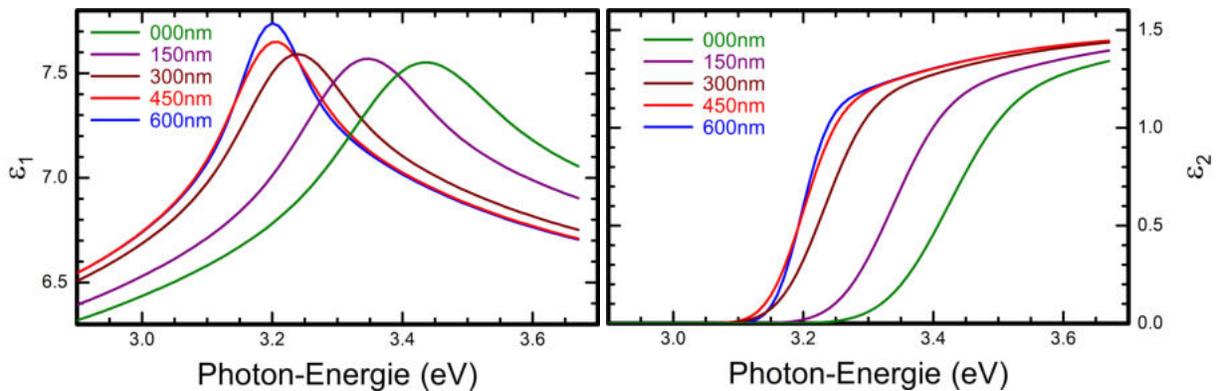


Abbildung 74: Dielektrische Funktion des FBG-Modells (engl.: *function based grading*) der GND2518 für eine *delay-time* von 10 ps in verschiedenen Probertiefen von der Oberfläche (000nm, grün) bis zur Grenzschicht mit 3C-SiC (600nm, blau).

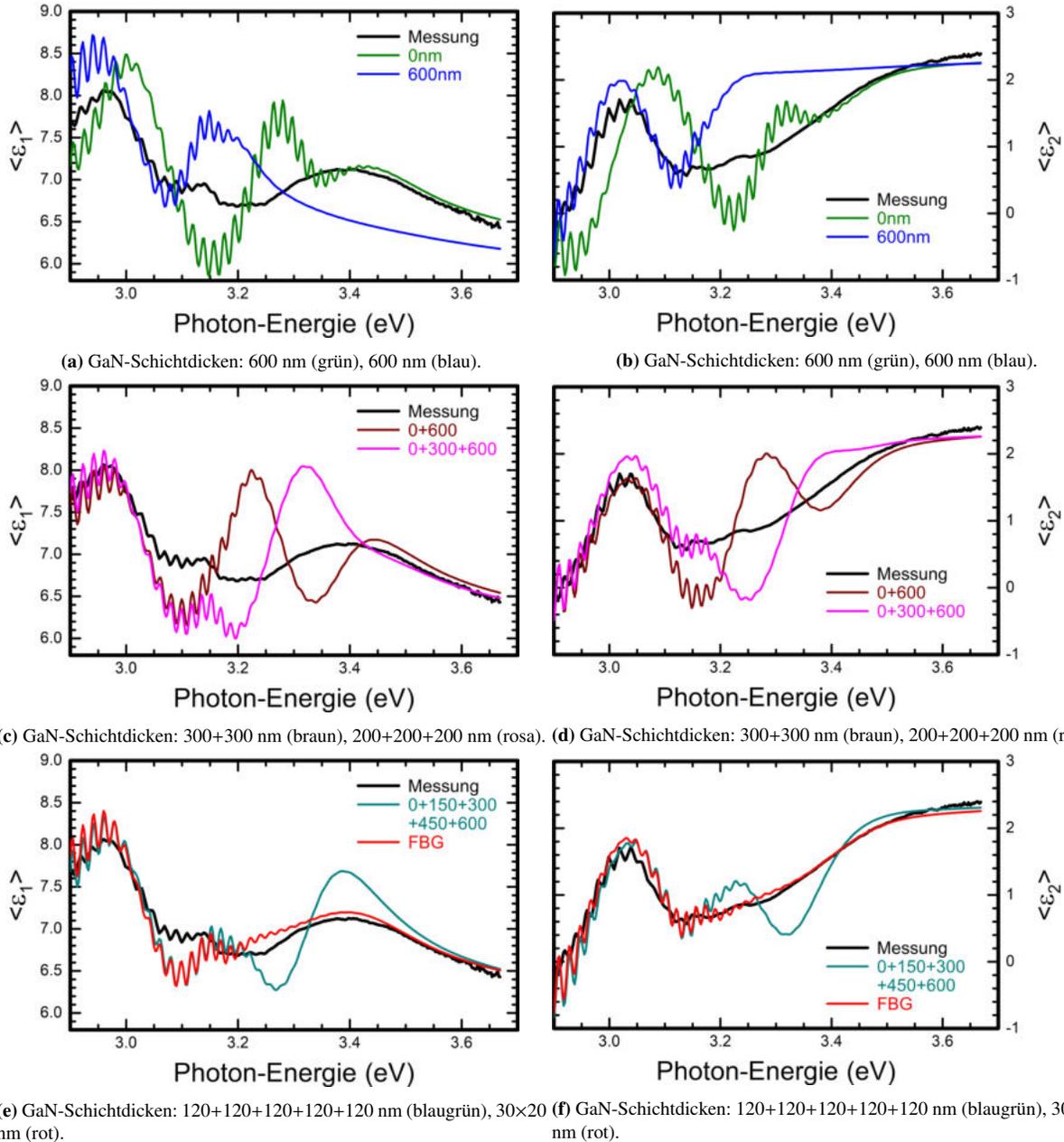


Abbildung 75: Pseudo-Dielektrische Funktion (Pseudo-DF) der GND2518 für eine *delay-time* von 10 ps (schwarz) mit verschiedenen Modellen für die zb-GaN-Schicht. Die Schichtdicken der verwendeten GaN-Modelle sind in den Bildunterschriften angegeben. (a) Das GaN-Modell besteht entweder aus der Modell-DF für 0 nm (grün) oder 600 nm (blau) Probertiefe (siehe Abb. 74). (b) Gleiche Einteilung wie in (a). (c) Das GaN-Modell besteht entweder aus einer gleichmäßigen Aufteilung aus der 0 nm und 300 nm Modell-DF (braun) oder zusätzlich mit der 300 nm (rosa). (d) Gleiche Einteilung wie in (c). (e) Das GaN-Modell besteht entweder aus einer gleichmäßigen Aufteilung aus der 0, 150, 300, 450 und 600 nm Modell-DF (blaugrün) oder aus dem in Kap. 6.1.2 beschriebenen *function based grading* (FBG, rot).

Tabelle 10: Parameter der Dielektrischen Funktion im infraroten Spektralbereich aus Gl. (3.20) für die zinkblende AlGaIn-Proben: Al-Gehalt x , optische Ladungsträgerkonzentration n_{Opt} , Hochenergiebeitrag ϵ_{∞} , Amplituden S^{GaIn} , S^{AlIn} , Resonanzfrequenzen $\gamma_{\text{TO}}^{\text{GaIn}}$, $\gamma_{\text{TO}}^{\text{AlIn}}$ und Verbreiterungen $\gamma_{\text{TO}}^{\text{GaIn}}$, $\gamma_{\text{TO}}^{\text{AlIn}}$ des GaN- bzw. AlN-artigen Phonons, sowie Plasmafrequenz ω_p und Plasmaverbreiterung ω_p . Bearbeitet nach [144].

Probe	x	n_{Opt} (cm^{-3})	ϵ_{∞}	S^{GaIn}	$\omega_{\text{TO}}^{\text{GaIn}}$ (cm^{-1})	$\gamma_{\text{TO}}^{\text{GaIn}}$ (cm^{-1})	S^{AlIn}	$\omega_{\text{TO}}^{\text{AlIn}}$ (cm^{-1})	$\gamma_{\text{TO}}^{\text{AlIn}}$ (cm^{-1})	ω_p (cm^{-1})	γ_p (cm^{-1})
B-GND2934	0.23	1.2×10^{19}	6.40	3.57	564	12.0	0.82	621	62.2	2224	950
B-GND2936	0.26	3.1×10^{19}	7.33	3.49	565	10.7	1.13	632	72.2	3582	863
B-GND2939	0.28	9.6×10^{19}	5.88	4.53	566	26.3	0.97	634	48.0	6283	1390
B-GND2940	0.26	1.4×10^{20}	5.92	4.96	561	35.1	0.40	639	30.1	7559	1210
B-GND2964	0.28	6.7×10^{19}	5.85	3.56	568	26.6	0.98	631	26.9	5297	1125
B-GND2942	0.22	7.7×10^{19}	5.96	3.12	560	39.6	1.24	610	71.4	5687	2025
C-ANL3196	0.41	2.6×10^{18}	5.26	2.67	576	17.1	1.86	631	45.1	1000	2000
C-ANL3197	0.44	3.0×10^{18}	5.37	2.78	578	19.9	1.80	635	39.3	1100	1155
C-ANL3198	0.42	3.8×10^{19}	4.61	3.29	576	26.4	1.58	633	38.1	3826	9983
C-ANL3199	0.38	9.8×10^{19}	4.70	2.45	576	28.2	2.76	632	75.4	6218	9011
C-ANL3200	0.44	5.7×10^{19}	5.41	3.55	573	30.9	1.66	632	66.5	4710	2127
C-ANL3201	0.36	4.3×10^{19}	5.47	2.99	573	30.0	1.52	633	66.5	4103	1784

Literatur

- [1] H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu und I. Akasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **28**, L2112 (1989).
- [2] S. Nakamura, T. Mukai und M. Senoh, *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L1998 (1991).
- [3] S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh und N. Iwasa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L139 (1992).
- [4] *The Nobel Prize in Physics 2014*, The Royal Swedish Academy of Sciences (2014).
- [5] P. Schley, R. Goldhahn, C. Napierala, G. Gobsch, J. Schörmann, D.J. As, K. Lischka, M. Feneberg und K. Thonke, *Semicond. Sci. Technol.* **23**, 055001 (2001).
- [6] P. Schley, C. Napierala, R. Goldhahn, G. Gobsch, J. Schörmann, D.J. As, K. Lischka, M. Feneberg, K. Thonke, F. Fuchs und F. Bechstedt, *Phys. Status Solidi C* **5**, 2342 (2008).
- [7] M. Feneberg, R.A.R. Leute, B. Neuschl, K. Thonke und M. Bickermann, *Phys. Rev. B* **82**, 075208 (2010).
- [8] M. Feneberg, M.F. Romero, M. Röppischer, C. Cobet, N. Esser, B. Neuschl, K. Thonke, M. Bickermann und R. Goldhahn, *Phys. Rev. B* **87**, 235209 (2013).
- [9] J. Wu, W. Walukiewicz, W. Shan, K.M. Yu, J.W. Ager III, S.X. Li, E.E. Haller, H. Lu und W.J. Schaff, *J. Appl. Phys.* **94**, 4457 (2003).
- [10] J. Li, K.B. Nam, M.L. Nakarmi, J.Y. Lin, H.X. Jiang, P. Carrier und S.-H. Wei, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 5163 (2003).
- [11] B.M. Shi, M.H. Xi, H.S. Wu, N. Wang und S.Y. Tong, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 151921 (2006).
- [12] S. Kako, M. Miyamura, K. Tachibana, K. Hoshino und Y. Arakawa, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 984 (2003).
- [13] M. Bürger, T. Schupp, K. Lischka und D.J. As, *Phys. Status Solidi C* **9**, 1273 (2012).

- [14] C.J.M. Stark, T. Detchprohm, S.C. Lee, Y.-B. Jiang, S.R.J. Brueck und C. Wetzel, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 232107 (2013).
- [15] S. Sergent, S. Kako, M. Bürger, T. Schupp, D.J. As und Y. Arakawa, *Phys. Rev. B* **90**, 235312 (2014).
- [16] L. Shunfeng, J. Schörmann, D.J. As und K. Lischka, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 071903 (2007).
- [17] M.T. Durniak, A.S. Bross, D. Elsaesser, A. Chaudhuri, M.L. Smith, A.A. Allerman, S.C. Lee, R.J. Brueck und C. Wetzel, *Adv. Electron. Mater.* **2**, 1500327 (2016).
- [18] A. David, N.G. Young, C.A. Hurni und M.D. Craven, *Phys. Rev. Appl.* **11**, 031001 (2019).
- [19] D.S.P. Tanner, P. Dawson, M.J. Kappers, R.A. Oliver und S. Schulz, *Phys. Rev. Appl.* **13**, 044068 (2020).
- [20] J. Schörmann, D.J. As, K. Lischka, P. Schley, R. Goldhahn, S.F. Li, W. Löffler, M. Hetterich und H. Kalt, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 151921 (2006).
- [21] M. Röppischer, R. Goldhahn, G. Rossbach, P. Schley, C. Cobet, N. Esser, T. Schupp, K. Lischka und D.J. As, *J. Appl. Phys.* **106**, 076104 (2009).
- [22] M. Feneberg, M. Röppischer, C. Cobet, N. Esser, J. Schörmann, T. Schupp, D.J. As, F. Hörich, J. Bläsing, A. Krost und R. Goldhahn, *Phys. Rev. B* **85**, 155207 (2012).
- [23] M. Landmann, E. Rauls, W.G. Schmidt, M. Röppischer, C. Cobet, N. Esser, T. Schupp, D.J. As, M. Feneberg und R. Goldhahn, *Phys. Rev. B* **87**, 195210 (2013).
- [24] M.P. Thompson, G.Q. Auner, T.S. Zheleva, K.A. Jones, S.J. Simko und J.N. Hilfiker, *J. Appl. Phys.* **89**, 3331 (2001).
- [25] T. Schupp, G. Rossbach, P. Schley, R. Goldhahn, M. Röppischer, N. Esser, C. Cobet, K. Lischka und D.J. As, *Phys. Status Solidi B* **207**, 1365 (2010).

-
- [26] H. Morkoç, S. Strite, G.B. Gao, M.E. Lin, B. Sverdlov und M. Burns, *J. Appl. Phys.* **76**, 1363 (1994).
- [27] G.L. Zhao und D. Bagayoko, *New J. Phys.* **2**, 16 (2000).
- [28] R. Sauer, *Halbleiterphysik: Lehrbuch für Physiker und Ingenieure, Online-Ausgabe (Oldenbourg, München, 2010)*, S. 92, 195, 400.
- [29] F. Schwierz, M. Kittler, H. Foster und D. Schipanski, *Diamond and Related Materials* **6**, 1512 (1997).
- [30] R. Gao, G. Bian, H. Yuan und H. Wang, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54**, 505109 (2021).
- [31] M.R. Krames, O.B. Shchekin, R. Mueller-Mach, G.O. Mueller, L. Zhou, G. Harbers und M.G. Craford, *J. Disp. Technol.* **3**, 160 (2007).
- [32] L.Y. Lee, *Mat. Sci. Technol.* **33**, 1570 (2017).
- [33] B. Ding, M. Frentrup, S.M. Fairclough, G. Kusch, M.J. Kappers, D.J. Wallis und R.A. Oliver, *J. Appl. Phys.* **130**, 115705 (2021).
- [34] A. Radosavljević, J. Radovanović und V. Milanović, *Solid State Commun.* **182**, 38 (2014).
- [35] S. Kako, M. Holmes, S. Sergent, M. Bürger, D.J. As und Y. Arakawa, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 011101 (2014).
- [36] S.A. Church, M. Quinn, K. Cooley-Greene, B. Ding, A. Gundimeda, M.J. Kappers, M. Frentrup, D.J. Wallis, R.A. Oliver und D.J. Binks, *J. Appl. Phys.* **129**, 175702 (2021).
- [37] R. Liu, R. Schaller, C.Q. Chen und C. Bayram, *ACS Photonics* **5**, 955 (2018).
- [38] L.Y. Lee, M. Frentrup, M.J. Kappers, R.A. Oliver, C.J. Humphreys und D.J. Wallis, *J. Appl. Phys.* **124**, 105302 (2018).
- [39] C.H. Wei, Z.Y. Xie, L.Y. Li, Q.M. Yu und J.H. Edgar, *J. Electron. Mater.* **29**, 317 (2000).

- [40] R.M. Kemper, L. Hiller, T. Stauden, J. Pezoldt, K. Duschik, T. Niendorf, H.J. Maier, D. Meertens, K. Tillmann, D.J. As und J.K.N. Lindner, *J. Cryst. Growth* **378**, 291 (2013).
- [41] T. Wecker, G. Callsen, A. Hoffmann, D. Reuter und D.J. As, *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 05FG01 (2016).
- [42] C. Wetzel, R. Winkler, M. Drechsler, B.K. Meyer, U. Rössler, J. Scriba, J.P. Kotthaus, V. Härle und F. Scholz, *Phys. Rev. B* **53**, 1038 (1996).
- [43] M. Deppe, J.W. Gerlach, D. Reuter und D.J. As, *Phys. Status Solidi B* **254**, 1600700 (2017).
- [44] M. Deppe, J.W. Gerlach, S. Shvarkov, D. Gogalla, H.-W. Becker, D. Reuter und D.J. As, *J. Appl. Phys.* **125**, 095703 (2019).
- [45] T. Hiroshima and R. Lang, *Appl. Phys. Lett.* **49**, 456 (1986).
- [46] L.D. Whalley, J.M. Frost, B.J. Morgan und A. Walsh, *Phys. Rev. B* **99**, 085207 (2019).
- [47] P. Colman, P. Lunnemann, Y. Yu und J. Mørk, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 233901 (2016).
- [48] Z. Chai, X. Hu, F. Wang, X. Niu, J. Xie und Q. Gong, *Adv. Optical Mater.* **5**, 1600665 (2017).
- [49] H. Ohta und H. Hosono, *Mater. Today* **7**, 42 (2004).
- [50] H. Frenzel, A. Lajn, H. von Wenckstern, M. Lorenz, F. Schein, Z. Zhang und M. Grundmann, *Adv. Mater.* **22**, 5332 (2010).
- [51] B.W. Tilma, M. Mangold, C.A. Zaugg, S.M. Link, D. Waldburger, A. Klenner, A.S. Mayer, E. Gini, M. Golling und U. Keller, *Light Sci. Appl.* **4**, e310 (2015).
- [52] C.S. Ponseca, Jr., P. Chábera, J. Uhlig, P. Persson und V. Sundström, *Chem. Revs.* **117**, 10940 (2017).
- [53] S. Espinoza, S. Richter, M. Rebarz, O. Herrfurth, R. Schmidt-Grund, J. Andreasson und S. Zollner, *Appl. Phys. Lett.* **115**, 052105 (2019).

-
- [54] S. Richter, O. Herrfurth, S. Espinoza, M. Rebarz, M. Kloz, J.A. Leveillee, A. Schleife, S. Zollner, M. Grundmann, J. Andreasson und R. Schmidt-Grund, *New J. Phys.* **22**, 083066 (2020).
- [55] S. Richter, M. Rebarz, O. Herrfurth, S. Espinoza, R. Schmidt-Grund und J. Andreasson, *Rev. Sci. Instrum.* **92**, 033104 (2021).
- [56] O. Herrfurth, S. Richter, M. Rebarz, S. Espinoza, J. Zúñiga-Pérez, C. Deparis, J. Leveillee, A. Schleife, M. Grundmann, J. Andreasson und R. Schmidt-Grund, *Phys. Rev. Research* **3**, 013246 (2021).
- [57] M. Zahradník, M. Kiaba, S. Espinoza, M. Rebarz, J. Andreasson, O. Caha, F. Abadizaman, D. Munzar und A. Dubroka, *Phys. Rev. B* **105**, 235113 (2022).
- [58] L. Artús, M. Feneberg, C. Attacalite, J.H. Edgar, J. Li, R. Goldhahn und R. Cuscó, *Adv. Photonics Res.* **2**, 2000101 (2021).
- [59] D. Zhang, S. Zhang, N. Yapici, R. Oakley, S. Sharma, V. Parashar und Y.K. Yap, *ACS Omega* **6**, 20722 (2021).
- [60] M. Röppischer, Dissertation, Technische Universität Berlin (2011).
- [61] L.C. de Carvalho, A. Schleife und F. Bechstedt, *Phys. Rev. B* **84**, 195105 (2011).
- [62] P. Rinke, M. Winkelkemper, A. Qteish, D. Bimberg, J. Neugebauer und M. Scheffler, *Phys. Rev. B* **77**, 075202 (2008).
- [63] C. Cobet, Dissertation, Technische Universität Berlin (2005).
- [64] M. Deppe, Dissertation, Universität Paderborn (2020).
- [65] M. Deppe, T. Henksmeier, J.W. Gerlach, D. Reuter und D.J. As, *Phys. Status Solidi B* **257**, 1900532 (2020).
- [66] E. Baron, Masterarbeit, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg (2018).

- [67] M. Grundmann, *The Physics of Semiconductors: An Introduction Including Devices and Nanophysics*, 3rd Edition (Springer, Berlin, 2006), S. 81,249.
- [68] R. Cuscó, N. Domènech-Amador, S. Novikov, C.T. Foxon und L. Artús, *Phys. Rev. B* **92**, 075206 (2015).
- [69] F. Wooten, *Optical Properties of Solids*, (Academic Press, New York and London, 1972), p. 42.
- [70] G. Mirjalili, T.J. Parker, S.F. Shayesteh, M.M. Bülbül, S.R.P. Smith, T.S. Cheng und C.T. Foxon, *Phys. Rev. B* **57**, 8 (1998).
- [71] S.C. Lee, S.S. Ng, H. Abu Hassan, Z. Hassan, N. Zainal, S.V. Novikov, C.T. Foxon und A.J. Kent, *Mater. Chem. Phys.* **146**, 121 (2014).
- [72] M. Rüsing, T. Wecker, G. Berth, D.J. As und A. Zrenner, *Phys. Status Solidi B* **253**, 778 (2016).
- [73] R.J. Elliott, *Phys. Rev.* **108**, 1384 (1957).
- [74] P. Schley, Dissertation, Technische Universität Ilmenau (2010).
- [75] M. Feneberg, S. Osterburg, K. Lange, C. Lidig, B. Garke, R. Goldhahn, E. Richter, C. Netzel, M.D. Neumann und N. Esser, *Phys. Rev. B* **90**, 075203 (2014).
- [76] D. Fritsch, H. Schmidt und M. Grundmann, *Phys. Rev. B* **67**, 235205 (2003).
- [77] J.R.L. Fernandez, O.C. Noriega, J.A.N.T Soares, F. Cerdeira, E.A. Meneses, J.R. Leite, D.J. As, D. Schikora und K. Lischka, *Solid State Commun.* **125**, 205 (2003).
- [78] C. Buchheim, R. Goldhahn, M. Rakel, C. Cobet, N. Esser, U. Rossow, D. Fuhrmann und A. Hangleiter, *Phys. Status Solidi B* **242**, 2610 (2005).
- [79] E.O. Kane, *J. Phys. Chem. Solids* **1**, 249 (1957).

-
- [80] G. Bastard, wave mechanics applied to semiconductor heterostructures, Monographies de physique (Wiley, New York, 1988), S. 44.
- [81] E. Baron, R. Goldhahn, M. Deppe, D.J. As und M. Feneberg, Phys. Rev. Materials **3**, 104603 (2019).
- [82] J. Wu, W. Walukiewicz, W. Shan, K.M. Yu, J.W. Ager III, E.E. Haller, H. Lu und W.J. Schaff, Phys. Rev. B **66**, 201403 (2002).
- [83] P.Y. Yu und M. Cardona, Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties, 4th Edition (Springer, Berlin, 2010), S. 260, 356.
- [84] T.S. Moss, Proc. Phys. Soc. B **67**, 775 (1954).
- [85] E. Burstein, Phys. Rev. **93**, 632 (1954).
- [86] K.-F. Berggren und B.E. Sernelius, Phys. Rev. B **24**, 1971 (1981).
- [87] R.A. Abram, G.J. Rees und B.L.H. Wilson, Adv. Phys. **27**, 799 (1978).
- [88] M. Feneberg, J. Nixdorf, C. Lidig, R. Goldhahn, Z. Galazka, O. Bierwagen und J.S. Speck, Phys. Rev. B **93**, 045203 (2016).
- [89] A. Ferreira da Silva und C. Persson, J. Appl. Phys. **92**, 2550 (2002).
- [90] B. Arnaudov, T. Paskova, E.M. Goldys, S. Evtimova und B. Monemar, Phys. Rev. B **64**, 045213 (2001).
- [91] W.G. Spitzer und H.Y. Fan, Phys. Rev. **106**, 882 (1957).
- [92] P. Schley, R. Goldhahn, A.T. Winzer, G. Gobsch, V. Cimalla, O. Ambacher, H. Lu, W.J. Schaff, M. Kuroichi, Y. Nanishi, M. Rakel, C. Cobet und N. Esser, Phys. Rev. B **75**, 205204 (2007).
- [93] F. Ruske, A. Pflug, V. Sittinger, B. Szyszka, D. Greiner, B. Rech, Thin Solid Films **518**, 1289 (2009).

- [94] M. Feneberg, K. Lange, C. Lidig, M. Wieneke, H. Witte, J. Bläsing, A. Dadgar, A. Krost und R. Goldhahn, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 232104 (2013).
- [95] P. Kühne, T. Hoffmann, M. Schubert, D. Nilsson, A. Kakanakova-Georgieva, E. Janzén und V. Darakchieva, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 212107 (2013).
- [96] M.P. Hasselbeck und P.M. Enders, *Phys. Rev. B* **57**, 9674 (1998).
- [97] E. Baron, R. Goldhahn, S. Espinoza, M. Zahradník, M. Rebarz, J. Andreasson, M. Deppe, D.J. As und M. Feneberg, arXiv:2206.02223 [cond-mat.mtrl-sci] (2022). DOI: 10.48550/arXiv.2206.02223
- [98] K.A. Bulashevich und S.Y. Karpov, *Phys. Status Solidi RRL* **10**, 480 (2016).
- [99] C. Persson, B.E. Sernelius, A. Ferreira da Silva, C. Moysés Araújo, R. Ahuja und B. Johansson, *J. Appl. Phys.* **92**, 3207 (2002).
- [100] N.F. Mott, *Solid State Electron.* **21**, 1275 (1978).
- [101] M.A. Hopkins, D.W.E. Allsopp, M.J. Kappers, R.A. Oliver und C.J. Humphreys, *J. Appl. Phys.* **122**, 234505 (2017).
- [102] M. Feneberg, persönliche Mitteilung, Datenübermittlung durch e-Mail am 22.07.2016.
- [103] Guide to Using WVASE Spectroscopic Ellipsometry Data Acquisition and Analysis Software, Software manual, J.A. Woollam CO., Inc. (2012), S. 11-11.
- [104] T. Werninghaus, M. Friedrich, V. Cimalla, J. Scheiner, R. Goldhahn, D.R.T. Zahn und J. Pezoldt, *Diam. Relat. Mater.* **7**, 1385 (1998).
- [105] J. Scheiner, R. Goldhahn, V. Cimalla, G. Ecke, W. Attenberger, J.K.M. Lindner, G. Gobsch und J. Petzoldt, *Mat. Sci. Eng. B* **61-62**, 526 (1999).
- [106] Ch. Zgheib, Ch. Förster, P. Weih, V. Cimalla, M. Kazan, P. Masri, O. Ambacher und J. Pezoldt, *Thin Solid Films* **455**, 183 (2004).

-
- [107] J. Pezoldt, Ch. Zgheib, V. Lebedev, P. Masri und O. Ambacher, Superlattices and Microstructures **40**, 612 (2006).
- [108] J.-M. Costantini, S. Miro und O. Pluchery, J. Phys. D: Appl. Phys. **50**, 095301 (2017).
- [109] B. Johs, C.M. Herzinger, J.H. Dinan, A. Cornfeld und J.D. Benson, Thin Solid Films **313-314**, 137 (1998).
- [110] C.M. Herzinger, B. Johs, W.A. McGahan und J.A. Woollam, J. Appl. Phys. **83**, 3323 (1998).
- [111] Y.S. Ihn, T.J. Kim, T.H. Ghong, Y.D. Kim, D.E. Aspnes und J. Kossut, Thin Solid Films **455-456**, 222 (2004).
- [112] C. M. Herzinger und B. D. Johs, *Dielectric function parametric model, and method of use*, U.S. Patent 5796983 (1998).
- [113] Software, S&I VistaControl v4, Spectroscopy & Imaging GmbH (2017).
- [114] C. Hamaguchi, Basic Semiconductor Physics, 2nd ed. (Springer, Berlin, 2010), S. 169.
- [115] R. Cuscó, L. Artús, S. Hernández, J. Ibáñez und M. Hopkinson, Phys. Rev. B **65**, 035210 (2001).
- [116] Yu.A. Pusep, M.T.O. Silva, J.R.L. Fernandez, V.A. Chitta, J.R. Leite, T. Frey, D.J. As, D. Schikora und K. Lischka, J. Appl. Phys. **91**, 6197 (2002).
- [117] N.B. Sedrine, A. Zukauskaitė, J. Birch, J. Jensen, L. Hultman, S. Schöche, M. Schubert und V. Darakchieva, J. Phys. D: Appl. Phys., **48**, 415102 (2015).
- [118] A. Kasic, M. Schubert, T. Frey, U. Köhler, D.J. As und C.M. Herzinger, Phys. Rev. B **65**, 184302 (2002).
- [119] J.-M. Wagner und F. Bechstedt, Phys. Rev. B **66**, 115202 (2002).

- [120] C.G. Van de Walle, Phys. Rev. B **68**, 165209 (2003).
- [121] L.T. Romano, C.G. Van de Walle, J.W. Ager III, W. Götz und R.S. Kern, J. Appl. Phys. **87**, 7745 (2000).
- [122] E. Kluth, M. Wieneke, J. Bläsing, H. Witte, K. Lange, A. Dadgar, R. Goldhahn und M. Feneberg, Semicond. Sci. Technol. **35**, 095033 (2020).
- [123] M. Feneberg, E. Baron, E. Kluth, K. Lange, D.J. As, M. Deppe, F. Tacke, M. Wieneke, J. Bläsing, H. Witte, A. Dadgar und R. Goldhahn, *unpublished*.
- [124] H. Harima, J. Phys.: Condens. Matter **14**, R967 (2002).
- [125] J. Rose, Bachelorarbeit, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg (2022).
- [126] S.L. Chuang, Physics of Optoelectronic Devices (Wiley, New York, 1995), S. 138.
- [127] D. Ahn, S.J. Yoon, S.L. Chuang und C.-S. Chang, J. Appl. Phys. **78**, 2489 (1995).
- [128] Y.H. Lee, A. Chavez-Pirson, S.W. Koch, H.M. Gibbs, S.H. Park, J. Morhange, A. Jeffery, N. Peyghambarian, L. Banyai, A.C. Gossard und W. Wiegmann, Phys. Rev. Lett. **57**, 2446 (1986).
- [129] L.A. Coldren und S. W. Corzine, Diode Lasers and Photonic Integrated Circuits (Wiley, New York, 1995), S. 115.
- [130] C.G. Rodrigues, V.N. Freire, J.A.P. da Costa, A.R. Vasconcelos und R. Luzzi, Phys. Status Solidi B **216**, 35 (1999).
- [131] R. Klann, O. Brandt, H. Yang, H.T. Grahn und K.H. Ploog, Appl. Phys. Lett. **70**, 1808 (1997).
- [132] J.H. Buß, T. Schupp, D.J. As, D. Hägele und J. Rudolph, J. Appl. Phys. **126**, 153901 (2019).

- [133] S. Hafiz, F. Zhang, M. Monavarian, V. Avrutin, H. Morkoç, Ü. Özgür, S. Metzner, F. Bertram, J. Christen und B. Gil, *J. Appl. Phys.* **117**, 013106 (2015).
- [134] M. Hocker, P. Maier, L. Jerg, I. Tischer, G. Neusser, C. Kranz, M. Pristovsek, C.J. Humphreys, R.A.R. Leute, D. Heinz, O. Rettig, F. Scholz und K. Thonke, *J. Appl. Phys.* **120**, 085703 (2016).
- [135] J. Petalas, S. Logothetidis, S. Boultadakis, M. Alouani und J.M. Wills, *Phys. Rev. B* **52**, 8082 (1995).
- [136] A.R. Degheidy und E.B. Elkenany, *Semiconductors* **45**, 1251 (2011).
- [137] H. Kawai, K. Yamashita, E. Cannuccia und A. Marini, *Phys. Rev. B* **89**, 085202 (2014).
- [138] R. Pässler, *Phys. Rev. B* **66**, 085201 (2002).
- [139] E. Baron, R. Goldhahn, M. Deppe, D.J. As und M. Feneberg, *Phys. Status Solidi B* **257**, 1900522 (2020).
- [140] A. Philippe, C. Bru-Chevallier, M. Vernay, G. Guillot, J. Hübner, B. Daudin und G. Feuillet, *Mat. Sci. Eng. B* **59**, 168 (1999).
- [141] C.-W. Chen, M.-C. Wu, S.-C. Lu und C.-C. Chang, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 2725 (1993).
- [142] J. Menniger, U. Jahn, O. Brandt, H. Yang und K. Ploog, *Phys. Rev. B* **53**, 1881 (1996).
- [143] I. Pelant und J. Valenta, *Luminescence Spectroscopy of Semiconductors*, 1st ed. (Oxford University Press, 2012), S. 121.
- [144] E. Baron, M. Feneberg, R. Goldhahn, M. Deppe, F. Tacke und D.J. As, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54**, 025101 (2021).
- [145] J. Ibáñez, S. Hernández, E. Alarcón-Lladó, R. Cuscó, L. Artús, S.V. Novikov, C.T. Foxon und E. Calleja, *J. Appl. Phys.* **104**, 033544 (2008).

- [146] H. Harima, T. Inoue, S. Nakashima, H. Okumura, Y. Ishida, S. Yoshida, T. Koizumi, H. Grille und F. Bechstedt, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 191 (1999).