

Hoch orts-zeitaufgelöste
optische Untersuchungen
zum exzitonischen Transport
in GaN und ZnO

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium

(Dr. rer. nat.)

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

von **Dipl.-Phys. Martin Noltemeyer**
geboren am **05.02.1981** in **Verden (Aller)**

Gutachter: **Prof. Dr. Jürgen Christen**
Prof. Dr. Andreas Waag

Eingereicht am: 17.12.2015
Verteidigt am: 13.09.2017

Kurzfassung

Ziel dieser Arbeit ist die Etablierung einer hochauflösenden optischen Untersuchungsmethode zur Bestimmung des exzitonischen Transports und Ableitung der beteiligten Streumechanismen insbesondere im Hinblick auf Grenzflächeneinflüsse in Heterostrukturen. Hierdurch soll ein Beitrag geleistet werden, ein tiefergehendes Verständnis für den exzitonischen Transport in Wide-Bandgap Halbleitern erlangen zu können. Die den Transport limitierenden Streumechanismen werden aus der temperaturabhängigen Beweglichkeit abgeleitet. Zwei Methoden wurden verwendet, die sowohl experimentell, als auch theoretisch auf die verwendete hoch orts-, zeit- und spektralaufgelöste Kathodolumineszenzmikroskopie (KL) übertragen und angepasst wurden. Das resultierende Wechselwirkungsvolumen und Einflüsse einer Maskierung auf die Anregung fanden in den theoretischen Ableitungen Berücksichtigung. Die aufgestellten Transportgleichungen wurden analytisch gelöst.

Eine direkte Bestimmung der Beweglichkeit μ ist mit den hier verwendeten Methoden nicht möglich, so dass die Lebensdauer τ , die Diffusionslänge λ oder Diffusionskonstante D gemessen werden. Hieraus wird die Beweglichkeit μ berechnet.

Die erste Methode beruht auf einer kontinuierlichen Anregung, bei der ein Linescan senkrecht über die Kante einer lichtundurchlässigen Maske aufgenommen wird (cw-Linescan). Die Transparenz der Maske für die Primärelektronen erlaubt es, ein Lumineszenzintensitätsprofil in Abhängigkeit vom Abstand der Maskenkante aufzunehmen. Über die Auswertung dieses Profils lässt sich die Diffusionslänge λ bestimmen. Die Lebensdauer τ der Exzitonen wird unter möglichst identischen Anregungsbedingungen weit entfernt von der Maskierung bestimmt, um eine Diffusion der Exzitonen unter die Maskierung zu verhindern.

Die zweite Methode beruht auf einer gepulsten Anregung im Zentrum eines Loches innerhalb einer für die Lumineszenz intransparenten Maskierung. Die entstehende Lumineszenz wird als Funktion von der Zeit aufgenommen. Durch Anpassung des entwickelten theoretischen Modells an den Abfall der Lumineszenzintensität wird die Diffusionskonstante D direkt unter Vorgabe des Lochdurchmessers R und der Lebensdauer τ bestimmt.

Untersucht wurden je zwei ZnO-, als auch zwei GaN-bulk-Proben mit je beiden Methoden. Die bestimmten Exzitonen-Diffusionslängen erreichen dabei im Temperaturintervall von 5 K bis 300 K Werte von $\lambda=200$ nm bis $\lambda=3$ μm (GaN) und $\lambda=200$ nm bis $\lambda=4$ μm (ZnO). Ihre Beweglichkeiten reichen von $\mu=7$ cm^2/Vs bis $\mu=7 \cdot 10^5$ cm^2/Vs (GaN) und $\mu=50$ cm^2/Vs bis $\mu=10^6$ cm^2/Vs (ZnO). Eine für Ladungsträger dominante Streuung an ionisierten Störstellen ist nicht nachweisbar, die Fröhlichwechselwirkung und die Deformationspotentialstreuung jedoch haben einen großen Einfluss auf die Beweglichkeit der Exzitonen.

Mit der Methode der transparenten Kreisflächen wurden zwei ZnO/MgZnO Quantenfilmproben untersucht. Beide zeigen den quantum confined Stark effect (QCSE). Die ermittelten Exzitonen-Diffusionslängen im Quantenfilm reichen von $\lambda=300$ nm bis $\lambda=2$ μm , die Beweglichkeiten von $\mu=30$ cm^2/Vs bis $\mu=9 \cdot 10^3$ cm^2/Vs . Die Fröhlichwechselwirkung ist auch hier ein dominanter Streumechanismus. Für eine Probe konnte bei tiefen Temperaturen eine temperaturabhängige Beweglichkeit aufgezeigt werden, charakteristisch für glatte Grenzflächen, in der anderen eine thermische Aktivierung des Transports, was für vergleichsweise raue Grenzflächen spricht. Beide Interpretationen werden jeweils von weiteren Auswertungen gestützt.

Abstract

The objective of the following thesis is the establishment of highly resolved optical methods for researching the excitonic transport in semiconductors to analyse the underlying scattering mechanisms particularly with respect to the effect of heterointerfaces in twodimensional structures. A more profound comprehension of the excitonic transport in wide-bandgap semiconductor materials should be a consequence of this work. The scattering mechanisms limiting the transport are derived from temperature dependend transportparameters. There are two methods experimentally and theoretically evaluated and adopted to the highly laterally, time and spectrally resolved cathodoluminescence microscopy (CL) used. The theoretical models take into account a non ideal excitation range and an interaction of primary electrons with the required masking material. The transportequations are completely analytically solved. Using these methods a direct determination of the mobility μ is not possible with the result that the transportparameters lifetime τ and diffusion length λ or diffusionconstant D are measured. The mobility μ is calculated using theses parameters. The lifetime τ is obligatory for both used methods.

The first method is based on a continuous excitation with the e-beam in a scanning electron microscope (SEM). A linescan is performed perpendicular to the edge of a mask that is intransparent for the luminescence (cw-linescan). The transparency of the mask regarding the primary electrons allows to record a luminescence intensity profile dependent on the distance of the mask's edge. Analysing this profile the diffusion length λ can be determined. The lifetime τ of the excitons is determined far away from any mask to prevent excitons reaching the mask.

The second method is based on pulsed excitation in the center of a circular aperture within a mask that is completely intransparent for the luminescence that is recorded as a function of time. Fitting the theoretical model to the decay of the transients (presetting the hole diameter as well as the exciton lifetime) the diffusionconstant D is directly derived.

The excitonic transport is analyzed in two bulk ZnO and two bulk GaN samples with both methods respectively. Concerning the temperatures contemplated the diffusion length ranges from $\lambda=200$ nm to $\lambda=3$ μm (GaN) and $\lambda=200$ nm to $\lambda=4$ μm (ZnO). The exciton mobility ranges from $\mu=7$ cm^2/Vs to $\mu=7 \cdot 10^5$ cm^2/Vs (GaN) and $\mu=50$ cm^2/Vs to $\mu=10^6$ cm^2/Vs (ZnO). All samples under study show the Fröhlich-Coupling and the deformationpotential scattering as dominant scattering mechanisms for the excitons. The scattering at ionized impurities is completely absent for the electrically neutral excitons.

In addition, the excitonic transport in two ZnO/MgZnO quantumwell samples is analysed with the method the transparent apertures. Both of them show the quantum confined Stark effect (QCSE). The diffusion length ranges from $\lambda=300$ nm to $\lambda=2$ μm , the excitonic mobility from $\mu=30$ cm^2/Vs to $\mu=9 \cdot 10^3$ cm^2/Vs . As well as for the bulk samples the Fröhlich-Coupling is one of the dominant mobility restricting scattering mechanisms. Furthermore, one sample shows a temperature independent mobility at low temperatures indicating smooth interfaces. The other sample shows a thermal activation of the excitonic transport giving evidence to comparatively rough interfaces. Both interpretations are backed by additional evaluations.

Danksagung

Ich möchte mich an dieser Stelle bei all denen bedanken, die an der Entstehung dieser Arbeit auf ganz unterschiedliche Weise mitgewirkt haben.

An erster Stelle möchte ich mich bei Hrn. Prof. Dr. Jürgen Christen bedanken. Er hat mich nicht nur stets bei Rückschlägen ermutigt neue Anläufe zu wagen, sondern hat mir durch die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe erst die Möglichkeit gegeben, diese Arbeiten durchzuführen. Für sein entgegengebrachtes Vertrauen und zahlreiche fundierte Unterstützung, sowie die Begutachtung dieser Dissertation möchte ich mich besonders bedanken.

Ebenso möchte ich mich bei Hrn. Prof. Andreas Waag für die Begutachtung und die aktive Teilnahme an der Verteidigung danken.

Ferner danke ich PD Dr. habil. Frank Bertram für seine Geduld, die ich oft strapaziert habe und sein unnachgiebiges Engagement bei seiner nicht nur ausschließlich fachlichen Unterstützung. Auch ohne ihn wäre diese Arbeit vermutlich nie entstanden.

Dr. Matthias Brandt (Universität Leipzig) danke ich für die Bereitstellung der ZnO-Quantenfilm-Proben und die zahlreichen, erhellenden Gespräche. Ein großer Dank sei auch für die Mühen ausgesprochen, meinen Wünschen entsprechende Proben herzustellen und aus dem bestehenden Sortiment aufwändig herauszusuchen.

Für das freistehende HVPE-GaN danke ich Dr. Tim Wernicke (Ferdinand-Braun-Institut, Leibniz-Institut für Höchstfrequenztechnik, Berlin).

Martin Lange und Marko Stölzel (Universität Leipzig) danke ich für das Wachstum und den Austausch von ZnO-basiertem Probenmaterial und zahlreiche Diskussionen zu den jeweiligen Probeneigenschaften, die das Verständnis für diese Proben deutlich erhöht haben.

Vielen Dank, Herr Dr. Thomas Hempel, für die zahlreichen Aufnahmen mit dem FEREM, die häufig auch außerhalb der Zeitplanung entstanden sind. Zudem gilt mein Dank PD Dr. habil. Armin Dadgar und Dr. Anatol Lochmann für diverse Prozessierungen und Beschichtungen von Probenmaterial, die unbedingt nötig waren, um diese Arbeit mit Inhalt füllen zu können.

Jürgen Weißenborn danke ich für die extrem zuverlässige und hochwertige Bearbeitung und Herstellung von vielen, vielen Kleinteilen in der Institutswerkstatt, seine Kreativität und für das immer offene Ohr für Probleme und andere Dinge des Lebens. Gleichmaßen gilt der Dank auch seinem Werkstattteam.

Dr. Alexander Franke und Dr. Stefanie Fritze danke ich für ihren Einsatz und ihre Hilfe bei den Bemühungen die gesamte Prozessierung der Titanmaskierungen im eigenen Hause zu etablieren.

Dr. Sören Heinze danke ich für die Unterstützung bei der Einarbeitung in das Materialsystem ZnO, seine hinterlassenen Unterlagen und seine unaufhörlichen Motivationsversuche.

Björn Diez danke ich für sein großes Engagement alle nötigen Chemikalien, Teile, Werkzeuge heranzuschaffen, sowie viele größere und kleinere Defekte an den unterschiedlichsten Gerätschaften schnell und zuverlässig beseitigt zu haben. Außerdem bin ich ihm äußerst dankbar für eine tolle Zeit, die ich so schnell nicht vergessen werde.

Genauso danke ich Anja Dempewolf, Sebastian Metzner und Mathias Müller mir jederzeit gute Freunde gewesen zu sein und mir fachlich und nicht fachlich zur Seite gestanden zu haben.

Selbstverständlich sind auch im privaten Umfeld in der Zeit der Entstehung dieser Arbeit manche Familienangehörige und Freunde zu kurz gekommen. Ich danke euch allen dafür, dass ihr es mir nie krumm genommen habt, wenn ich kaum Zeit für euch hatte. Ich danke euch für das Zuhören und für das Lesen, auch, wenn ihr euch für das Thema weniger begeistern konntet als ich.

Herausgestellt sei ein ganz besonderer Dank. Er richtet sich an meine Eltern, Angela und Willi Noltemeyer, für ihre jahrelange Unterstützung, das entgegengebrachte Vertrauen und so vieles, vieles mehr. Das gilt genauso auch für meine Freundin Doreen. Weiterhin bedanke ich mich bei meinem Bruder Dierk und seiner Familie und meiner Schwester Madlen für ihre anhaltenden Motivationsversuche.

Zudem danke ich der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) für die finanzielle Unterstützung im Rahmen des Sonderforschungsbereiches (SFB) 762 - „Funktionalität Oxidischer Grenzflächen“.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Kristallstruktur von ZnO und GaN	5
2.2	Bandstruktur und Lumineszenz	8
2.3	Phononen	11
2.4	Exzitonen in Halbleitern	14
2.5	Rekombinationskinetik	18
2.6	Heterostrukturen - der quantum confined Stark effect	20
2.7	Transport von Ladungsträgern und Exzitonen	23
2.8	Wichtige Streumechanismen	29
2.8.1	Streuung an Phononen	30
2.8.2	Streuung an Gitterdefekten	35
2.8.3	Streuung in 2D-Strukturen	38
2.8.4	Streuung an Grenzflächenrauigkeiten	39
3	Experimentelle Grundlagen	45
3.1	FEREM	45
3.2	Orts-, zeit- und spektralaufgelöste Kathodolumineszenz	47
3.3	Prozessierung der verwendeten Titan-Maskierungen	53
4	Methodik der optischen Untersuchung exzitonischen Transports	57
4.1	Methode der cw-Linescans	58
4.1.1	Analyse der Elektronen- und Lichtdurchlässigkeit von Titan-Schichten	61
4.2	Methode der transparenten Kreisflächen	67
4.2.1	Vergleich Kathodolumineszenz / Photolumineszenz	69
4.3	Ableitung der Transportgleichungen	71
4.3.1	Ableitung der Transportgleichung für cw-Linescans	71
4.3.2	Ableitung der Transportgleichung für transparente Kreisflächen	77
5	Ergebnisse	83
5.1	Vorbetrachtungen zur Methode des cw-Linescans	83
5.1.1	Anregungsweite, Maskierung, Prozessierung	83
5.1.2	Abschätzung der apparativen und methodischen Auflösungsgrenze	89
5.2	Transportuntersuchungen an dickem, freistehendem HVPE GaN	91
5.2.1	Methode 1: cw-Linescans	91
5.2.2	Methode 2: transparente Kreisflächen	100
5.3	Transportuntersuchungen an ZnO-Substraten	107
5.3.1	Methode 1: cw-Linescans	107

5.3.2	Methode 2: transparente Kreisflächen	118
5.4	Exzitoner Transport in keilförmigen ZnO/MgZnO-Quantenfilmen	123
5.4.1	ZnO/MgZnO-QW: Filmdicke $q=4$ nm	123
5.4.2	ZnO/MgZnO-QW: Filmdicke $q=5,5$ nm	136
6	Zusammenfassung	149
	Literaturverzeichnis	155

1 Einleitung

Halbleiter mit großer Bandlücke und hohen Exzitonenbindungsenergien wie Galliumnitrid und Zinkoxid, sowie deren ternären und quaternären Verbindungen besitzen diverse Eigenschaften, die sie zu idealen Kandidaten für die Anwendung in Bereichen wie transparenter Elektronik machen, oder Anwendungen, bei denen es auf besonders hohe Schaltfrequenzen ankommt. Ganz besonders jedoch eignen sie sich für optoelektronische Anwendungen. [FRE10], [OEZ05], [MOR08], [MOR09] Diese Materialien werden daher bereits seit einigen Jahren intensiv untersucht [REY99], [MEY04], woraus etliche Anwendungen wie zum Beispiel LED Beleuchtungs- und Sterilisationssysteme, Biosensoren und leistungsfähige (sowie transparente) Feldeffekttransistoren hervorgegangen sind. [FRE10]

Insbesondere die Nachfrage nach immer leistungsfähigeren Bauelementen - hohe Schaltfrequenzen, hohe Effizienz - bedingt Untersuchungen der konkreten Materialien in Bezug auf Punkt- und strukturelle Defekte [LOO99], auf elektrische und ambipolare Transportfähigkeiten und beteiligte Streumechanismen, welche diesen Transport behindern. Aufgrund der zunehmenden Miniaturisierung ist es zudem notwendig diese Mechanismen nicht nur weiter auf einer makroskopischen Skala, sondern vermehrt auf Mikrometer- oder sogar Nanometerskala zu untersuchen, um weitere Optimierungen vornehmen zu können. Hier ist es hauptsächlich der Transport parallel zu Heterorenzflächen [AUR94] solcher Bauelemente, welcher zunehmende Bedeutung erlangt. So ist die Frage nach dem Einfluss solcher Grenzflächen auf den Transport zu beantworten, um sowohl das konkrete Design, als auch die notwendigen Wachstums- und Strukturierungsbedingungen zielgerichtet optimieren zu können.

Während elektrische Untersuchungen zum Transport von Elektronen und Löchern wohl etabliert sind und Standardcharakterisierungsmethoden darstellen, geben diese Untersuchungen lediglich Aufschluss über makroskopische Transportbedingungen. Erst optische Untersuchungsmethoden dringen durch hohe örtliche Auflösungen in den Submikrometerbereich vor. Insbesondere die hoch orts-, zeit- und spektral aufgelöste Kathodolumineszenzmikroskopie erlaubt es Phänomene auf einer Nanometerskala zu untersuchen. Darüber hinaus bieten erst diese optischen Methoden die Möglichkeit, sich der Beobachtung von Ladungsträgern zu entziehen und nicht geladene Teilchen wie Exzitonen zu analysieren. Dies erlaubt einen Einblick in Mechanismen, welche Ladungsträger nicht aufzeigen, oder sich aufgrund anderer, deutlich dominanter Effekte der Analyse verwehren. So ist bekannt, dass Ladungsträger insbesondere bei sehr tiefen Materialtemperaturen an ionisierten Störstellen streuen. [MOL93] Diese ionisierten Störstellen sind höchst effektive Streuzentren für Ladungsträger. Somit werden andere, ebenfalls den Transport limitierende Mechanismen derart „überstimmt“, dass sie durch die Beobachtung von Elektronentransport nicht untersucht werden können. Exzitonen hingegen, als elektrisch neutrale Teilchen, unterliegen dieser Art der Streuung nicht, wie unter anderem in dieser Arbeit für ZnO und GaN und in [HIL90] für GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen gezeigt wird. Hierdurch treten andere Streumechanismen in den Vordergrund, so dass es möglich wird, deren Einfluss

auf den Transport zu untersuchen. Dies gilt besonders für die Grenzflächenrauigkeitsstreuung [HIL88], [JAH96], welche für die oben angesprochene Leistungsfähigkeit in Strukturen wie Transistoren (FETs) einen limitierenden Faktor darstellen kann. Mithilfe der Exzitonen können somit z.B. nanoskopische Potentialfluktuationen durch Transportanalysen untersucht werden und hierdurch Erkenntnisse über Transportphänomene in Halbleitermaterialien und -bauelementen gewonnen, sowie Hinweise auf die Beschaffenheit von Grenzflächen erlangt werden. Die Erarbeitung des Verständnisses des Transports von Exzitonen in „Wide-Band-Gap-Materialien“ und deren Heterostrukturen könnte zusätzliche Impulse für die Entwicklung optoelektronischer Bauelemente geben.

Trotz der Möglichkeiten die sich in diesem Feld bieten, finden sich in der Literatur nur wenige Arbeiten, die sich mit dem Transport von Exzitonen in Bulk Materialien oder Quantenfilmen, geschweige denn mit den Materialsystemen Galliumnitrid und Zinkoxid beschäftigen. Beispiele für Veröffentlichungen zum Thema exzitonischen Transports sind [JEO12], [NGM94], [OBH93], [HIL90], [HIL88]. Vornehmlich wurden diese Untersuchungen an Galliumarsenid-basierten Halbleitermaterialien durchgeführt. Die Werte der Diffusionskonstanten D liegen dabei häufig im Bereich einiger hundert cm^2/s . Für eine bulk ZnO Probe konnten in [JEO12] Diffusivitäten der Exzitonen von lediglich $D=5 \text{ cm}^2/\text{s}$ bis $D=8 \text{ cm}^2/\text{s}$ bei einer Temperatur von $T=11 \text{ K}$ mittels zeitaufgelöster differentieller Reflektometrie gefunden werden. Für Galliumnitrid konnten keine Vergleichswerte in der Literatur gefunden werden.

In dieser Arbeit wurden zur Bestimmung der Transportkenngrößen, welche die Ableitung der beteiligten Streumechanismen ermöglichen, zwei Methoden verwendet. Beide Methoden stützen sich dem Grunde nach auf bereits bekannte und erfolgreich eingesetzte optische Untersuchungsverfahren. Hier jedoch wurden diese Methoden zum einen auf eine hoch orts-, zeit- und spektral auflösende Kathodolumineszenzmikroskopie-Apparatur übertragen, mit der entsprechend kurze Diffusionslängen nachgewiesen werden können. Zum anderen wurden für beide Methoden die zugrundeliegenden Diffusionsgleichungen vollständig analytisch gelöst. Außerdem wurde in beiden Modellentwicklungen die Tatsache berücksichtigt, dass bei Anregung mit einem hochenergetischen Elektronenstrahl ein verteiltes Anregungsgebiet entsteht, das sogenannte Bethevolumen. Dies unterscheidet diese Arbeit in einem weiteren Punkt von den in der Literatur vorzufindenden Modellen. Die durch Nichtberücksichtigung entstehenden Abweichungen sind experimentell am Beispiel der Diffusionslängenmessung mittels stationärer ortsaufgelöster Untersuchungen exemplarisch dargestellt und betragen, je nach konkreten Bedingungen, bis zu einer halben Größenordnung.

Die erste Methode entspricht historisch betrachtet dem Shockley-Haynes-Experiment zur Bestimmung der Ladungsträgerbeweglichkeit [SHO51] und wird in ähnlicher Weise wie in der vorliegenden Arbeit bereits in [ZAR89] und [LEE93] beschrieben. Dabei wird mittels Elektronenstrahl ein Linescan senkrecht über eine Maskierung und dessen Kante hinweg aufgenommen. Die Maske ist dabei transparent für die Primärelektronen, jedoch intransparent für die entstehende Lumineszenz. Aus dem sich ergebenden Lumineszenzintensitätsprofil als Funktion vom Abstand der Anregung (dem Elektronenstrahl) von der Maskenkante lässt sich die Diffusionslänge ermitteln. Zusammen mit der Messung der Lebensdauer mittels zeitaufgelösten Untersuchungen lassen sich alle weiteren Transportkenngrößen ableiten. Die Grundlagen dieser Methode wurden bereits in meiner Abschlussarbeit (Diplomarbeit) erarbeitet und im Rahmen meiner weiteren Arbeiten op-

timiert. Somit sind auch die Auswertungen der dort gezeigten Daten in dieser Arbeit nochmals mit der optimierten Version durchgeführt und die Ergebnisse entsprechend präzisiert worden. Diese Ergebnisse bilden das Fundament der hier etablierten Methode.

Die zweite Methode ist eine optische Flugzeitmethode der transparenten Kreisflächen nach Vorbild von [HIL89]. Anders als dort, erfolgt die (in diesem Falle gepulste) Anregung jedoch nicht flächig in der gesamten Kreisfläche, sondern ausschließlich auf einem räumlich stark eingegrenzten Gebiet im Zentrum der Kreisfläche, was, wie in dieser Arbeit gezeigt wird, die Empfindlichkeit der Methode deutlich erhöht. Auch wird in dieser Arbeit das Abklingen der Exzitonenkonzentration aus einem Quasigleichgewichtszustand betrachtet. Dies ist bei [HIL89] nicht der Fall. Dort wird noch vor Erreichen eines Gleichgewichtszustandes aus Generation und Rekombination die Anregung beendet. Ferner werden für diese Methode die Anregungsweiten durch das Wechselwirkungsvolumen der Primärelektronen mit dem Probenmaterial berücksichtigt und eine analytische Lösung der Transportgleichung erarbeitet und verwendet. Diese Methode liefert im Gegensatz zur stationären Variante (siehe oben) zusammen mit der Kenntnis über die Lebensdauer der Exzitonen direkt die Diffusionskonstante D . Die Lösung der aufgestellten Transportgleichung wurde in Zusammenarbeit mit und maßgeblich von Hrn. Andrey Polyakov von der staatlichen Tsiolkovskii Universität Kaluga, Russland während seines Stipendiaufenthaltes am Institut für Festkörperphysik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg erarbeitet. Daraus hervorgegangen sind entsprechende gemeinsame Veröffentlichungen, die Teile dieser Arbeit enthalten. [POL121] und [POL122]

Für beide Methoden wurden die Untersuchungen jeweils in Abhängigkeit von der Proben temperatur durchgeführt, um die Beweglichkeit der Exzitonen als Funktion von der Proben temperatur zu erhalten und somit die beteiligten Streumechanismen über deren charakteristischen Temperaturverlauf ableiten zu können.

Jeweils zwei Proben der Materialien Galliumnitrid und Zinkoxid wurden mit beiden Methoden hinsichtlich des exzitonenischen Transports untersucht. Alle vier Proben sind Bulk-Materialien. Als Vertreter des Zinkoxids wurden kommerzielle Substrate zweier unterschiedlicher Hersteller untersucht. Das Galliumnitrid besteht aus freistehenden, dicken HVPE gewachsenen Schichten, die am Ferdinand-Braun-Institut, Leibnizinstitut für Höchstfrequenztechnik in der Arbeitsgruppe von Hrn. Prof. Dr. Markus Weyers hergestellt wurden.

Darüber hinaus wurden zur Klärung des Grenzflächeneinflusses auf den Transport von Exzitonen zwei ZnO basierte Quantenfilme aus ZnO/MgZnO untersucht. Diese wurden an der TU-Leipzig von Hrn. Matthias Brandt in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Marius Grundmann mittels Pulsed-Laser-Deposition hergestellt. Details zu diesen und verwandten Proben finden sich in seinem Paper [BRA10].

Die Proben müssen für die Analyse des exzitonenischen Transports mit entsprechenden Maskierungen versehen werden. Die verwendeten rechteckigen Metallmaskierungen wurden mittels Lift-Off-Verfahren an der TU-Berlin (Arbeitsgruppe von Prof. Dr. D. Bimberg) und am Ferdinand-Braun-Institut, Leibniz-Institut für Höchstfrequenztechnik (Arbeitsgruppe von Prof. M. Kneissl) hergestellt. Die Lochkreis maskierungen wurden möglich durch die Metallbedampfung, die von Hrn. Priv. Doz. Dr. A. Dadgar, Otto-von-Guericke-Universität, Magdeburg an der TU-Berlin durchgeführt wurden. Alle weiteren Prozessschritte für diese Maskierungen wurden in Eigenleistung erarbeitet und durchgeführt.

Sämtliche Sekundärelektronenkontrastbilder, die in dieser Arbeit gezeigt werden, wurden von Hrn. Dr. T. Hempel an der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg erstellt.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Kristallstruktur von ZnO und GaN

Im Fokus dieser Arbeit stehen die beiden Halbleitermaterialien Zinkoxid (ZnO) und Galliumnitrid (GaN). Beide kristallisieren üblicherweise in der Wurtzitstruktur. Sie zeichnet sich aus durch eine ABAB... Stapelfolge in Richtung der c -Achse, wobei A und B jeweils ein Paar aus Kation und Anion bilden ($\text{Zn}^A\text{O}^A\text{Zn}^B\text{O}^B\text{Zn}^A\text{O}^A\dots$). Dabei bilden die Atome des Kristallgitters eine hexagonal dichteste Packung (Abbildung 2.1a), welche aus zwei hexagonalen Untergittern besteht, die um $5/8c$ in Richtung der c -Achse verschoben sind. Diese Struktur ist unter normalen Bedingungen die thermodynamisch stabilste [KLI95].

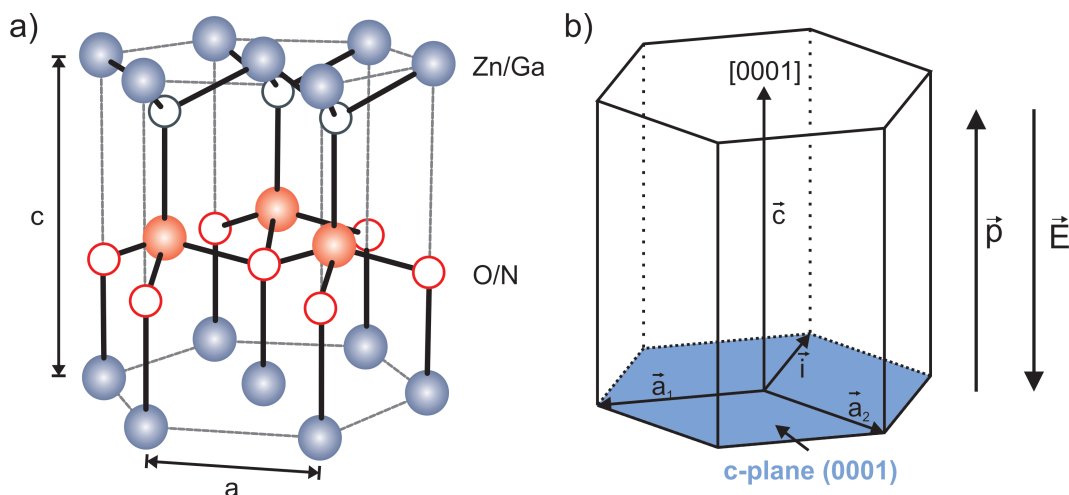


Abbildung 2.1: a) Wurtzitstruktur des ZnO beziehungsweise GaN. Volle Kreissymbole stehen für Zn bzw. Ga, die leeren Kreissymbole für O bzw. N. Die farbliche Folge (blau-rot-blau) entspricht der Stapelfolge ABAB..., b) entsprechendes hexagonales Gitter mit Gitter-Einheitsvektoren und exemplarischer Miller-/Flächenindizierung bzw. Nomenklatur. Daneben: Orientierung des eingepprägten Elektrischen Feldes \vec{E} und der zugehörigen spontanen Polarisation \vec{p} .

Neben dieser Kristallisationsphase existieren weitere, kubische Konfigurationen, welche nur der Vollständigkeit halber genannt werden sollen. Sowohl das GaN, als auch das ZnO können unter bestimmten Voraussetzungen in der sogenannten Zinkblendestruktur kristallisieren. Diese kubische Phase des GaN erhält man unter Verwendung kubischer Substrate in Kombination mit niedrigen Wachstumstemperaturen und einem Stickstoffüberangebot während der Kristallisation. Beim ZnO erreicht man diese, indem (ebenfalls) auf kubische Substrate aufgewachsen wird. Besonders geringe Wachstumstemperaturen werden jedoch nicht benötigt. Gleichsam kann auf diese Weise die Steinsatzstruktur (NaCl-Struktur) erhalten werden, wenn das Wachstum unter hohem Druck stattfindet. [DES98], [ASH00], [OEZ05]

Jedes Zn- oder Ga-Kation wird in der Wurtzitstruktur, wie in der Abbildung 2.1a gezeigt, von vier O- oder N-Anionen in einer tetraedrischen Anordnung benachbart. Dieses ist typisch für eine kovalente sp^3 Bindung. Jedoch besitzt gerade das ZnO eine Bindungscharakteristik, die an der Grenze von ionisch zu kovalent liegt [OEZ05].

Die Art der Bindung (kovalent/ionisch) wird dabei unterschieden durch die Differenz der Elektronegativitäten (ΔEN) der beteiligten Elemente. Bei einem $\Delta EN > 1,7$ liegt eine überwiegend ionische, bei Werten von $\Delta EN < 1,7$ eine kovalente Bindung vor. Das ΔEN von ZnO beträgt 1,79 und befindet sich damit an der Grenze, jedoch bereits in dem Bereich, der charakteristisch für ionische Bindungen ist. Für GaN ist $\Delta EN = 1,23$ und somit die vorliegende Bindungsart kovalent.

Die Einheitszelle (hexagonal) des Wurtzits wird durch drei Basisvektoren $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{c}$ vollständig definiert. Die Vektoren \vec{a}_1 und \vec{a}_2 nehmen zueinander einen Winkel von 120° ein und spannen die Basalebene des Hexagons auf. Senkrecht zu \vec{a}_1 und \vec{a}_2 steht der Basisvektor \vec{c} . Auf diese Weise geben die drei Gittervektoren auch direkt die Indizierung (Millersche Indizes - hkl) vor. Aufgrund der hexagonalen Struktur und der daraus folgenden dreizähligen Rotationssymmetrie wird üblicherweise die Viererschreibweise (Miller-Bravais-Indizierung) der Dreierschreibweise vorgezogen. Sie ergibt sich aus $i = -(h + k)$. Hieraus erhält man durch einfache Permutation von $(hkli)$ sämtliche symmetrieäquivalenten Flächen des Wurtzits [KLU94]. So wird z.B. die Basisfläche, also jene zum Vektor \vec{c} senkrecht stehende Fläche, mit (0001) bezeichnet (siehe Abbildung 2.1b).

Für die Wurtzitstruktur des ZnO bzw. GaN wurden die Bindungslängen vielfach experimentell bestimmt und bewegen sich bei Raumtemperatur im Bereich von $a = 3,2475 \text{ \AA}$ bis $a = 3,2501 \text{ \AA}$ und $c = 5,2042 \text{ \AA}$ bis $c = 5,2075 \text{ \AA}$ für ZnO [OEZ05]. Die Gitterkonstanten des GaN sind $a = 3,175 \text{ \AA}$ und $c = 5,158 \text{ \AA}$ [SIN03]. Damit besitzen die beiden Materialien nicht nur die gleiche, thermodynamisch bevorzugte wurtzitische Kristallstruktur, sondern auch recht ähnliche Bindungslängen.

In der idealen Wurtzitstruktur beträgt das Verhältnis der Gitterkonstanten $\frac{c}{a} = \sqrt{\frac{8}{3}} = 1,633$. In realen Strukturen jedoch gibt es hiervon Abweichungen. Entsprechend der oben genannten Werte sind diese im GaN $\frac{c}{a} = 1,625$, im ZnO reichen sie von $\frac{c}{a} = 1,601$ bis 1,604. Sie fallen also kleiner als das ideale Verhältnis aus, was bedeutet, dass eine Anisotropie zwischen Basalfläche und c-Achse besteht. Hieraus resultiert ein Teil ihrer spontanen Polarisation. Ein weiterer Anteil an der in diesen Materialien starken spontanen Polarisation verursacht ein nicht idealer Abstand der übernächsten Nachbarn einer Stapelfolge in c-Richtung (A..B..A ; B..A..B). Details dazu sind unter anderem zu finden in [BAS12].

Neben der spontanen Polarisation besitzen beide Materialien zudem piezoelektrische Polarisation, welche bei Verspannungen des Kristalls (durch z.B. äußere Einwirkung oder pseudomorphes Wachstum auf einem Substrat) auftritt und aufgrund der Veränderung der Gitterkonstanten zu einer Änderung der eingepprägten Polarisation führt. Die Ausrichtung der piezoelektrischen Polarisation ist dabei direkt verknüpft mit der Orientierung der c-Achse des Kristalls. So ist es also entscheidend, ob das Material in $+\vec{c}$ oder $-\vec{c}$ Richtung gewachsen wird. Ob die Orientierung positiv oder negativ ist, wird in der Regel über den Abschluss der Bindungspartner zum Substrat definiert (vgl. Abbildung 2.1b). Befindet sich also das Anion (N oder O) näher am Substrat und liegt so auf der Oberseite (in Wachstumsrichtung) das Kation (Ga oder Zn) vor, so ist die Orientierung positiv. Man bezeichnet dies auch als Ga- bzw. Zn-Polarität oder Ga- bzw. Zn-face. Im umgekehrten Fall, der negativen Orientierung, spricht man von N- bzw. O-face. Der Polarisationsvektor \vec{P} ist dabei immer orientiert vom negativen zum positiven Ladungsschwerpunkt, das elektrische Feld entsprechend entgegengesetzt ausgerichtet. [GRU06]

Für die spontane Polarisierung in GaN wurden von Bernardini et. al Werte von $0,034 C/m^2$ berechnet, für ZnO ein Wert von $0,057 C/m^2$ [BER97]. Den vorhandenen Polarisationsfeldern kommt gerade in Quantenfilmen / Heterostrukturen eine besondere Bedeutung zu (siehe hierzu Abschnitt 2.6).

2.2 Bandstruktur und Lumineszenz

Neben einer sehr ähnlichen Kristallstruktur besitzen Zinkoxid und Galliumnitrid auch eine sehr ähnliche Bandstruktur. Beiden Materialien gemein ist eine große, direkte Bandlücke im Bereich des nahen ultravioletten Spektralbereiches um $E_g(5K) = 3,5 eV$ (ca. $\lambda = 350 nm$).

Das Leitungsband wird dabei von den s-Orbitalen der positiv geladenen Ionen, also den Metallatomen Ga bzw. Zn, gebildet. Das Valenzband hingegen wird aus den p-Orbitalen der negativ geladenen Gruppe II und III Atomen, also dem Sauerstoff bzw. Stickstoff gebildet [GRU06].

Dies bedeutet, dass für das Leitungsband $l=0$ gilt und so der Spin der Elektronen mit $s=\frac{1}{2}$ eine Multiplizität von $m_s = \pm\frac{1}{2}$ liefert. Für das Valenzband hingegen gilt entsprechend ihrer Bildung aus den p-Orbitalen $l = 1$. Zusammen mit den damit möglichen Spinkonfigurationen ergeben sich daraus für die Valenzbandgesamtimpulse $j=1+s=\frac{1}{2}$ und $\frac{3}{2}$. Das Band mit $j=\frac{1}{2}$ liegt jedoch energetisch tiefer als das Band mit $j=\frac{3}{2}$. So erhält man zwei Bänder unterschiedlicher energetischer Lage (vgl. Abbildung 2.2). Diese Aufspaltung wird als Kristallfeldaufspaltung bezeichnet. Neben der Kristallfeldaufspaltung jedoch, die die eben dargestellte Aufhebung der Entartung verursacht, führt im hexagonalen Kristall zusätzlich die Spin-Bahn-Wechselwirkung zu einer energetischen Aufspaltung zwischen den Bändern mit $m_j = \pm\frac{3}{2}$ und $m_j = \pm\frac{1}{2}$. Auf diese Weise erhält man im wurtzitischen Kristall drei, energetisch in unterschiedlicher Lage befindliche, Valenzbänder (siehe Abbildung 2.2).

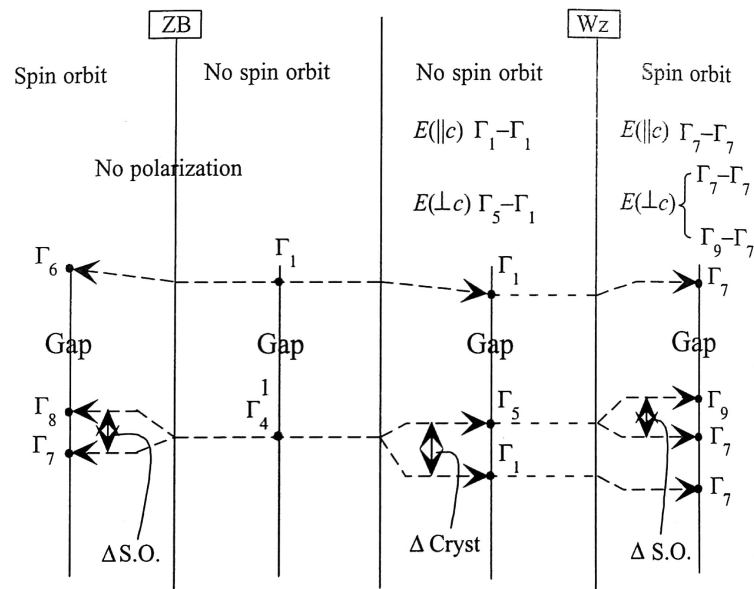


Abbildung 2.2: ZnO- und GaN-Bandstruktur und Auswahlregeln für Zinkblende- (ZB) und davon ausgehend für Wurtzitstrukturen (WZ) am Beispiel von ZnO. Kristallfeldaufspaltung und Spin-Bahn-Wechselwirkung sind schematisch dargestellt. [MOR09]

Die Bänder werden mit zunehmend tiefer liegender Energie A-, B- und C-Valenzband genannt (vergleiche Abbildung 2.3).

Die Bandlücke, d.h. die energetische Differenz vom Minimum des Leitungsbandes zum Maxi-

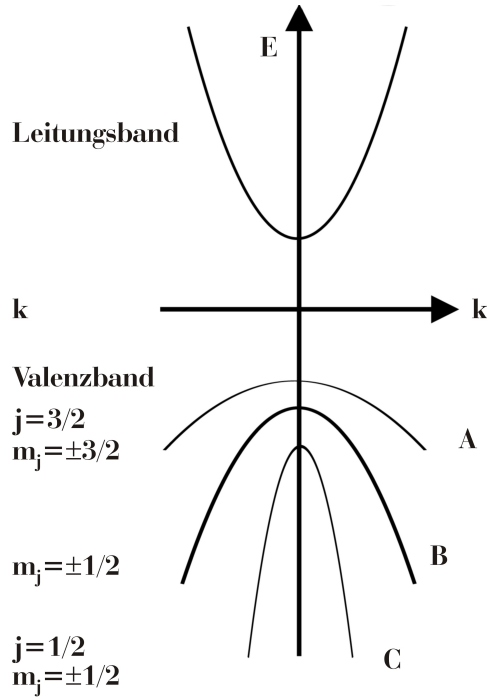


Abbildung 2.3: Bandstruktur am Γ -Punkt in wurtzitischem GaN und ZnO entsprechend ihrer Auswahlregeln [KLI95] am Beispiel von GaN bzw. ZnO. Je stärker die Krümmung des Bandes, desto leichter die effektive Masse m^* des entsprechenden Ladungsträgers (vgl. (2.9)).

mum des A-Valenzbandes, beträgt bei $T=1,6\text{ K}$ im ZnO $E_{gap}=3,437\text{ eV}$ [MEY04], die Differenz zwischen A- und B-Valenzband $\Delta_{AB}=16\text{ meV}$ und zwischen B- und C-Valenzband $\Delta_{BC}=43\text{ meV}$ [REY99].

Für das GaN wurden von Bernard Gil et al. [GIL95] in Epitaxieschichten, gewachsen auf Saphirsubstrat, für Temperaturen unter $T=10\text{ K}$ folgende Werte ermittelt: $E_{gap}=3,4775\text{ eV}$, $\Delta_{AB}=7\text{ meV}$ und $\Delta_{BC}=21,7\text{ meV}$.

Die Aufspaltung der Valenzbänder fällt beim GaN also etwas geringer aus als beim ZnO, wohingegen die Bandlücke von GaN etwas größer ist.

Durch z.B. Photoabsorption oder Stößen mit Elektronen ausreichend hoher Energie können Elektronen aus den Valenzbändern ins Leitungsband überführt werden. Die damit entstehenden Elektron-Loch-Paare (e-h-Paare) bzw. Exzitonen werden nach einiger Zeit wieder rekombinieren - das Elektron aus dem Leitungs- in das Valenzband zurückfallen. Die dabei abgegebene Energie (zumeist in Form eines Photons) entspricht der zugehörigen Bandlücke, ggf. abzüglich einer Exzitonen-Bindungsenergie. Auf diese Weise kann aus der Wellenlänge des ausgesandten Lichts auf die Zugehörigkeit der einzelnen Valenzbänder geschlossen werden.

Wie bereits durch die Angaben von Temperaturen zu den ermittelten Bandlücken der beiden Materialsysteme angedeutet, ändert sich die Bandlücke eines Halbleiters mit der Temperatur. Im Jahr 1967 erschien von Y. P. Varshni eine Publikation im physikalischen Blatt "Physica" [VAR67] in dem die Temperaturabhängigkeit verschiedener Materialien untersucht wurde. Entsprechend wurde nach ihm die "Varshni Formel" (2.1) benannt.

$$E_g = E_0 - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} \quad (2.1)$$

Die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke und damit der Änderung der energetischen Position der optischen Übergänge ist gerade deshalb so wichtig zu berücksichtigen, als dass die Streumechanismen aus der Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit der freien Exzitonen abgeleitet werden sollen. Hierzu muss also ganz offensichtlich bei den durchzuführenden Messungen die beobachtete spektrale Position des emittierten Lichtes mit Variation der Materialtemperatur jeweils angepasst werden. Die Anpassung geschieht hierbei entsprechend dem Temperaturverlauf aus der Varshni-Gleichung (vgl. Gleichung (2.1)).

Diese Anpassung gilt so jedoch nur bei Element- oder binären Halbleitern. Bei ternären oder quaternären Verbindungen hingegen kann es zum sogenannten S-Shape Verhalten kommen [BEL04]. Solche ternären Verbindungen wie zum Beispiel MgZnO werden im Rahmen dieser Arbeit als Barrierenmaterial für ZnO Quantenfilme eingesetzt. Hierbei verringert sich der Bandabstand zunächst von tiefen zu höheren Temperaturen, steigt dann jedoch wieder an, um mit noch weiter steigenden Temperaturen wieder entsprechend dem Varshni-Verlauf abzufallen. Christen et. al [CHR90] haben gezeigt, dass sich die Rotverschiebung mit sinkender Temperatur, verursacht durch statistische Kompositionsfluktuationen mit einem Ergänzungsterm

$$- \frac{\sigma_E^2}{k_B T} \quad (2.2)$$

beschreiben lässt. Durch diese Kompositionsfluktuationen kommt es zu Thermalisation und Ausfrierungen von Ladungsträgern in bzw. an Potentialminima. Der Term σ_E ist dabei die Standardabweichung der statistisch auftretenden Potentialfluktuationen und k_B die Boltzmannkonstante.

Die erweiterte Varshni-Gleichung lautet für den Fall auftretender Potentialfluktuationen durch z.B. Materialkompositionsunterschiede und damit verbundener Rotverschiebung der auftretenden Lumineszenz hin zu tiefen Temperaturen:

$$E_g = E_0 - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} - \frac{\sigma_E^2}{k_B T} \quad (2.3)$$

2.3 Phononen

Wie im Abschnitt 2.8.1 beschrieben wird, spielt die Streuung an sogenannten Phononen eine große Rolle bei der Leistungsfähigkeit von Halbleiterbauelementen, da der Ladungsträgertransport (und auch der exzitonische Transport) durch diese Prozesse stark limitiert wird. Aus diesem Grund soll in diesem Abschnitt ein allgemeines Verständnis der Begrifflichkeit erarbeitet werden. Für eine tiefere Betrachtung von Phononen (Gitterschwingungen) sei auf die einschlägige Literatur verwiesen, wie sie beispielhaft auch in diesem Abschnitt genannt wird.

Phononen sind Quasiteilchen der in Kristallen auftretenden Gitterschwingungen. Im allgemeinen handelt es sich dabei um die thermische Bewegung der Kristallatome, welche sich um ihre Gleichgewichtslage bewegen. In "[...] guter Näherung handelt es sich dabei um harmonische Schwingungen, wenn die Schwingungsamplituden klein gegen den Abstand nächster Nachbarn sind. Dies ist in einem großen Temperaturbereich der Fall, der nach oben durch die Schmelztemperatur des Kristalls begrenzt wird." [BER05]

In einem Kristall mit seiner dreidimensionalen Anordnung von Ionen/Atomen sind aufgrund der Kopplung der einzelnen Gitteratome untereinander sowohl longitudinale, als auch transversale Schwingungen möglich, die sich wellenartig fortbewegen können.

Nach

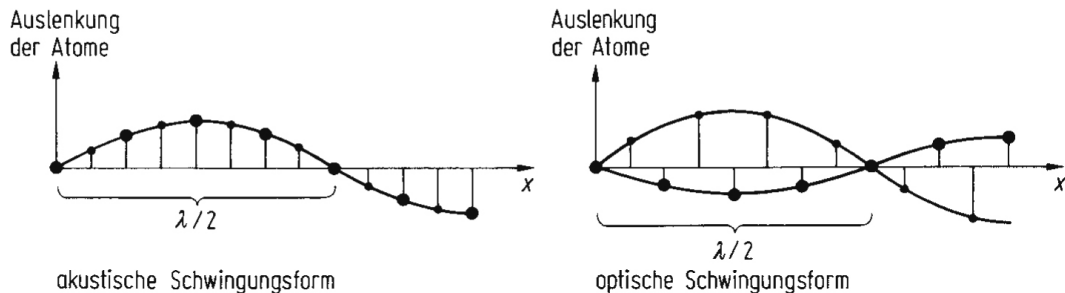


Abbildung 2.4: Mögliche Gitterschwingungsformen einer linearen Kette (Abbildung nach [BER05]). Große und kleine Punkte kennzeichnen jeweils die Metallionen und Nicht-Metallionen.

Die Theorie hinter der Betrachtung findet sich in nahezu jedem Festkörperphysik-Lehrbuch (z.B. [GRU06], [IBA03], [KOP92], [BER05] und vielen anderen) und soll deshalb in diesem Kapitel nur kurz angerissen werden.

Die übliche Vorgehensweise zum Ableiten einer Dispersionsrelation von Phononen der oben genannten Zweige (akustisch und optisch) mit deren jeweiligen Modi (longitudinal und transversal) in Halbleitermaterialien wie dem untersuchten GaN und ZnO ist die Betrachtung einer linearen Kette miteinander über Kopplungskonstanten (ähnlich zu verstehen wie klassische Federn) verbundener Teilchen unterschiedlicher Masse und dem Abstand $a/2$ zueinander. Die Größe a würde demnach der Gitterkonstanten entsprechen. Für dieses Konstrukt werden entsprechende Bewegungsgleichungen aufgestellt und zur Lösung periodische Randbedingungen vorausgesetzt. Diese periodischen Randbedingungen können gesetzt werden, wenn die Anzahl der Gitterplätze groß ist, also eine lange Kette in Bezug auf die Gitterkonstante betrachtet wird.

Folgt man der Herleitung in [GRU06], so lauten die Bewegungsgleichungen für die jeweiligen Atome der Sorte 1 und 2 gegeben durch die Gleichungen (2.4) und (2.5):

$$M_{1n}^2 = -C_1 (u_n^1 - u_n^2) - C_2 (u_n^1 - u_{n-1}^2) \quad (2.4)$$

$$M_{2n}^2 = -C_1 (u_n^2 - u_n^1) - C_2 (u_n^2 - u_{n+1}^1) \quad (2.5)$$

Hierin sind $M_{1,2}$ die Masse des jeweiligen Teilchens, $u_n^{1,2}$ die Verrückung aus ihrer jeweiligen Gleichgewichtsposition und die Konstanten $C_{1,2}$ die Kopplungskonstanten für die Bindung der Teilchen 1-2 innerhalb einer Basis (Gitterabstand) und für die Teilchen 2-1 zwischen verschiedenen „Basen“. Der Index n gibt die jeweilige Position auf der betrachteten Kette an.

Als Lösung erhält man die Dispersionsrelation (2.6)

$$\omega^2(k) = \frac{2C_x}{\gamma M_x} \left[1 \pm \sqrt{1 - \gamma^2 \frac{1 - \cos(ka)}{2}} \right] \quad (2.6)$$

ω ist die Kreisfrequenz, k die Wellenzahl, $C_x = \sqrt{C_1 C_2}$ und a , wie oben bereits genannt, die Gitterkonstante der betrachteten binären Kette. Mit der Ersetzung $C_+ = \frac{C_1 + C_2}{2}$ ist der Ausdruck $\gamma: \gamma = \frac{C_x M_x}{C_+ M_+}$. [GRU06]

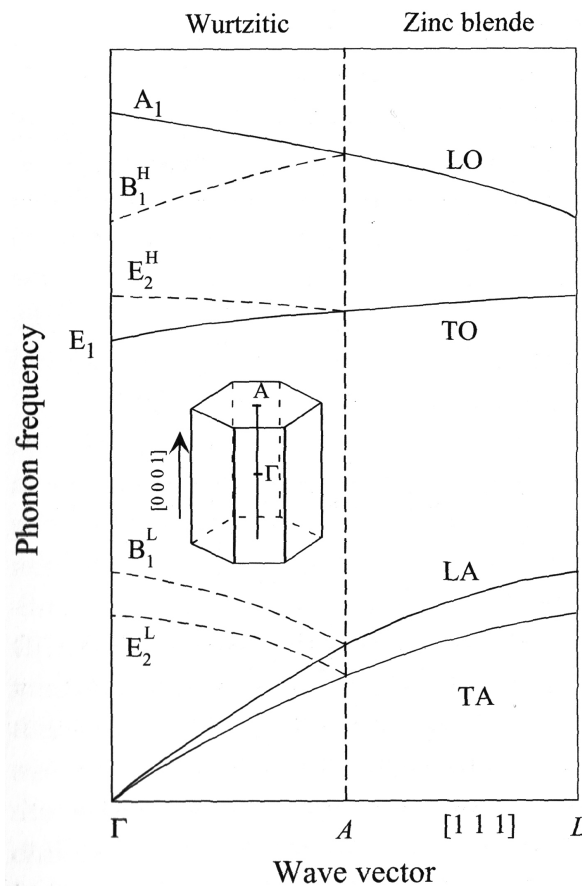


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung der Phononendispersionsrelationen in Zinkblende- und wurtzitischem ZnO. [MOR09]

Wie in der Gleichung (2.6) zu sehen ist, existieren offenbar zwei Lösungen bzw. zwei Zweige

für die Dispersionsrelation der Phononen. Jener mit dem negativen Vorzeichen beschreibt dabei die akustische Variante, d.h. jene Schwingung bei der benachbarte Atome gleichphasig schwingen (siehe Abbildung 2.5 unten). Das positive Vorzeichen liefert die Dispersionsrelation für die optische Variante, d.h. jene Schwingung bei der benachbarte Atome gegenphasige Bewegungen ausführen (siehe Abbildung 2.5 oben).

Betrachtet man reelle Halbleitermaterialien oder Kristalle, so ist leicht einzusehen, dass dessen Atome nicht eine lineare Kette, sondern eine dreidimensionale Matrix bilden. Die Phononendispersionsrelationen lassen sich jedoch auch für diese Fälle berechnen - z.B. mittels Gruppentheorie. [DAV98] In [IBA03] findet sich beispielsweise eine Gegenüberstellung eines experimentellen Befundes und einer Modellrechnung für die Phononendispersionsrelation in Silizium (Si). Die Übereinstimmungen sind sehr genau.

Die Existenz von Phononen kann auch in Lumineszenzspektren beobachtet werden. Durch Wechselwirkungsprozesse mit z.B. Licht können Phononen generiert werden. Wird bei einem Rekombinationsprozess (z.B. der Rekombination eines Exzitons) ein Phonon generiert, so finden sich im zugehörigen Spektrum Linien, die gegenüber der eigentlichen Rekombinationsenergie des betrachteten Komplexes um genau den Betrag der Energie rotverschoben liegen, die dem dabei erzeugten Phonon entspricht.

Im Lumineszenzspektrum finden sich so zum Teil diverse "Phononenrepliken", da auch mehrere Phononen je Rekombination erzeugt werden können. Diese Intensitätsmaxima sind energetisch äquidistant. Die Energie dieser Phononen (am Γ -Punkt) belaufen sich bei ZnO auf $E_{LO}=72$ meV [WAS09], bei GaN auf $E_{LO}=92$ meV [DAR07]. Aufgrund der Abnahme der Wahrscheinlichkeit der Erzeugung mehrerer Phononen je Rekombinationsvorgang sinkt die Intensität mit zunehmender Ordnung von Phononenrepliken. Die Abnahme der Intensität mit steigender Anzahl erzeugter longitudinal optischer Phononen (LOs) folgt dabei individuell für jedes Material dem Huang-Rhys-Faktor. [HUA03]

2.4 Exzitonen in Halbleitern

Elektronen im Leitungsband und Löcher im Valenzband können mittels Coulombwechselwirkung aneinander koppeln und auf diese Weise ein Quasiteilchen bilden, welches nach außen elektrisch neutral erscheint. Dieses Quasiteilchen ist in der Lage, sich im Halbleiterkristall zu bewegen, an Donatoren oder Akzeptoren zu binden und zu rekombinieren. Zudem besitzen Exzitonen keine fermionischen, sondern bosonische Eigenschaften¹, welches eine makroskopische Besetzung des Grundzustandes erlaubt (Bose-Einstein-Kondensation)². Dieser Effekt kann zum Beispiel für Einzelphotonenlaser bzw. Polaritonenlaser ausgenutzt werden.

Im Allgemeinen unterscheidet man zwei Arten von Exzitonen. In anorganischen Halbleitermaterialien (wie ZnO, GaN, AlN, GaAs, und vielen weiteren), welche eine „relativ große“ Dielektrizitätskonstante ϵ besitzen und damit das Feld, also die Coulombwechselwirkung zwischen Ladungsträgern abschwächen, finden sich im allgemeinen die sogenannten Wannier oder Wannier-Mott Exzitonen mit einer Ausdehnung deutlich größer als die Ausdehnung der Einheitszelle des entsprechenden Materials. Vornehmlich in organischen Materialien hingegen, welche eine eher kleine Dielektrizitätskonstante aufweisen, finden sich hingegen die sogenannten Frenkel Exzitonen, welche eine sehr kleine Ausdehnung besitzen und vielfach an ein einzelnes Molekül lokalisiert sind. Die in dieser Arbeit also ausschließlich auftretenden und betrachteten Exzitonen sind die Wannier-Exzitonen.

In Bezug auf die den Transport limitierenden Streumechanismen stellen Exzitonen eine äußerst attraktive Ergänzung zur Untersuchung der Ladungsträgerbeweglichkeit dar. Aufgrund ihrer elektrischen Neutralität treten gewisse Streumechanismen in den Hintergrund. Jede elektrisch geladene Störstelle welche ein effektives Streuzentrum für Ladungsträger darstellt, ist für die elektrisch neutralen Exzitonen ein äußerst ineffektives Streuzentrum und wirkt höchstens schwach durch eine gleichzeitig stattfindende Dipolinduzierung im Exziton. Andere Streumechanismen (z.B. Grenzflächenrauigkeitsstreuung in Heterostrukturen) treten dadurch in den Vordergrund und werden so überhaupt erst zugänglich. Aus diesem Grund werden im Folgenden die Grundlagen zu den Eigenschaften von Exzitonen beschrieben.

Wie in [WAN37] gezeigt wird, kann das Exziton analog zum Wasserstoffatom beschrieben werden. Die Exzitonenbindungsenergie ist, analog zum Wasserstoffatom, abhängig davon, ob sich das Exziton in einem angeregten ($n > 1$) oder im Grundzustand ($n = 1$) befindet und errechnet sich nach:

$$E_{Ex}^b = -\frac{Me^4}{32\pi^2\hbar^2\epsilon^2\epsilon_0^2} \frac{1}{n^2}, \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (2.7)$$

e ist die Elementarladung des Elektrons, $\hbar = \frac{h}{2\pi}$, mit h , dem Planckschen Wirkungsquantum, M ist die reduzierte Exzitonenmasse und errechnet sich nach Gleichung (2.8), ϵ die Dielektrizitätskonstante des Halbleitermaterials, in dem sich das Exziton befindet und ϵ_0 ist die Vakuumdielektrizitätskonstante.

Um diese Bindungsenergie wird gegenüber dem Bandabstand die Rekombinationsenergie reduziert, wie Gleichung (2.12) aufzeigt. Die verwendete reduzierte Masse M des Exzitons berechnet sich nach:

¹Bose, Z. Phys. **26**, 178 (1924)

²A. Einstein, Sitzungsber. Preuss. Akad. Wiss. **1924**, 3 (1925)

$$\frac{1}{M} = \frac{1}{m_n} + \frac{1}{m_p} \quad (2.8)$$

und berücksichtigt somit die Kristalleigenschaften über die effektiven Massen der Elektronen (m_n) und Löcher (m_p), welche spezifisch sind für jedes Material. Sie errechnen sich nach Gleichung (2.9) aus der Bandkrümmung des jeweiligen Bandes im Impuls- bzw. (k -)Raum.

$$m_{n,p} = \hbar \left(\frac{d^2 E_{c,v}}{dk^2} \right)^{-1} \quad (2.9)$$

Der Index c steht für das Leitungs-, der Index v für das Valenzband, entsprechend den englischen Bezeichnungen „conductionband“ und „valenceband“.

Ebenfalls in Analogie zum Wasserstoffatom wird auch der Exzitonen-Bohr-Radius berechnet.

$$a_B^{Exziton} = a_B^H \epsilon \frac{m_0}{M} = \frac{\hbar^2}{M e^2} \quad (2.10)$$

Für ZnO beträgt die Exzitonenbindungsenergie 59 meV und der Exzitonenbohrradius 1,4 nm. [MOR09], [MEY04], [OEZ05] Diese im Vergleich hohe Exzitonenbindungsenergie macht das ZnO besonders interessant für Anwendungen bei Raumtemperatur, in denen exzitonische Effekte ausgenutzt werden sollen. Die thermische Energie $E_{therm}(300\text{ K}) = k_B T = 25,8\text{ meV}$ ist wesentlich geringer als die Bindungsenergie. Anders stehen die Verhältnisse in Galliumnitrid. Hier beträgt die Exzitonenbindungsenergie lediglich 27 meV und der Exzitonen-Bohr-Radius 2,8 nm [RAM98]. Bereits bei nur geringfügig höheren Temperaturen als der Raumtemperatur von $T = 300\text{ K}$ dissoziiert das Exziton. Dies ist insbesondere unter den üblichen Betriebsbedingungen der meisten elektronischen bzw. optoelektronischen Geräte hinderlich, deren typischen Betriebstemperaturen 320-400 K erreichen und damit thermische Energien von $E_{therm}(400\text{ K}) \approx 34,5\text{ meV}$ bedeuten. Jedoch beziehen sich die Bindungsenergien ausschließlich auf die Bulk-Eigenschaften der beiden Materialien. In niederdimensionalen Konstrukten ist die Bindungsenergie teils deutlich erhöht [KLI95] und somit unter Umständen ein Einsatz exzitonisch basierter Bauelemente auch mit GaN bei höheren Temperaturen möglich.

Wie bereits oben erwähnt, fällt aufgrund der Exzitonenbindungsenergie die Rekombinationsenergie im Vergleich zur Band-Band-Rekombination geringer aus. Jedoch kann sich das Exziton zum Teil im Festkörper bewegen und so einen weiteren energetischen Beitrag zur Rekombinationsenergie aus seiner kinetischen Energie leisten. Diesen Zusammenhang beschreibt die Dispersionsrelation des Exzitons nach Gleichung (2.12).

Die Dispersionsrelation eines freien Exzitons im Halbleiter ist nach [IBA03]:

$$E_{Ex} = E_g + E_{Ex}^b \cdot \frac{1}{n^2} + E_{kin} \quad (2.11)$$

$$E_{Ex} = E_g - \frac{M e^4}{32 \pi^2 \hbar^2 \epsilon^2 \epsilon_0^2} \cdot \frac{1}{n^2} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2(m_n + m_p)} \quad (2.12)$$

E_{kin} , der letzte Term dieser beiden Gleichungen ist die kinetische Energie des freien Exzitons. Die Gleichung zeigt, dass die bei der Rekombination des Exzitons freiwerdende Energie ohne Anteil kinetischer Energie kleiner ist als die Bandlücke. Die Differenz entspricht gerade der

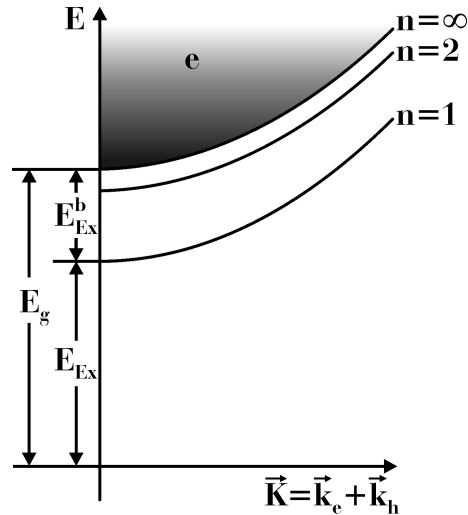


Abbildung 2.6: Dispersionsrelation eines Exzitons nach [KLI95] für einen direkten Halbleiter. Zusätzlich sind exemplarisch die ersten beiden angeregten Zustände ($n=1$ und $n=2$) und der Dissoziationsfall ($n \rightarrow \infty$) dargestellt.

Exzitonenbindungsenergie (wenn $T=0\text{ K}$ und $|\vec{k}|=0$).

Die Abbildung 2.6 zeigt die Dispersionsrelation eines Exzitons entsprechend der Gleichung (2.12). Ebenfalls mit dargestellt sind exemplarisch angeregte Zustände des Quasiteilchens. Wie hier zu sehen ist, dissoziiert das Exziton für $n \rightarrow \infty$. Infolge dessen liegen wieder Elektron-Loch-Paare bzw. freie Elektronen vor.

Neben den eben besprochenen freien Exzitonen, existieren zudem gebundene Exzitonen (BX für „bound exciton“). Die Bindung besteht dabei an Störstellen wie Donatoren, Akzeptoren, Versetzungen und ähnliches. Diese Störungen des Kristallgitters bewirken relativ kurzreichweitige, lokale Potentialänderungen [BOG97] welche in den Exzitonen ein Dipolmoment induzieren. So können diese eingefangen werden (trapping). Die Bindungsenergien, die die Exzitonen an die jeweilige Störstelle besitzen (d.h. an die Änderung des örtlichen, elektrischen Potentials) ist dabei abhängig von dem konkreten Element oder der Art der Störung. Das heißt, sie ist charakteristisch für eine bestimmte Störstelle. So konnten zum Beispiel im ZnO nach [MEY04] Lokalisierungsenergien von 15,1 meV dem Element Aluminium und Lokalisierungsenergien von 16,1 meV dem Element Gallium zugeordnet werden. Diese Lokalisierungsenergien E_{loc} erhält man experimentell z.B. durch die energetische Differenz der spektralen Lage der Lumineszenzlinien der freien Exzitonen und jener energetisch niedriger gelegenen Linien.

Eine Unterscheidung exzitonischer Lumineszenz und nicht-exzitonischer Lumineszenz ist für eine entsprechende Analyse unausweichlich und geschieht in der Regel über die Auswertung von Anregungsdichteabhängigkeiten und Temperaturabhängigkeiten, soll an dieser Stelle jedoch nicht Gegenstand der Diskussion sein. Ein weiteres Indiz für das Vorliegen von Lumineszenz gebundener Exzitonen liefert zudem die Linienschärfe. Aufgrund der Lokalisierung besitzen gebundene Exzitonen keine translatorische Energie. Eine Verbreiterung entsprechend dem Term der kinetischen Energie wie sie in Gleichung (2.12) auftaucht ist nicht gegeben, das heißt $|\vec{k}| = 0$.

$$E_{BX} = E_g + E_{Ex}^b \cdot \frac{1}{n^2} - E_{loc} \quad (2.13)$$

Die dennoch auftretende Linienbreite gebundener Exzitonen begründet sich vornehmlich aus

der Heisenberg'schen Unschärferelation und der endlichen Lebensdauer der Exzitonen. Die energetische Unschärfe folgt also der Beziehung $\Delta E \cdot \Delta t \geq \hbar$.

Der Effekt des Trappings, also des Einfangens von freien Exzitonen, ist dabei besonders effektiv bei tiefen Temperaturen. Hier besitzen die freien Exzitonen keine ausreichende kinetische Energie, um ein Potentialminimum einer Störstelle zu verlassen. Dieser Einfangmechanismus limitiert somit die mittlere freie Weglänge freier Exzitonen im Kristall und damit die Diffusionslänge, welche im Rahmen dieser Arbeit bestimmt wurde. Zudem reduziert der Einfang die Lebensdauer freier Exzitonen im Vergleich zu höheren Temperaturen, da ein Teil der freien Exzitonen von Störstellen eingefangen wird. Was hier unter dem Begriff der Lebensdauer zu verstehen ist, wird im nachfolgenden Abschnitt 2.5 erläutert.

Neben den besprochenen Gründen für das Auftreten mehrerer Lumineszenzlinien die energetisch unterhalb der Bandkante liegen und exzitonischen Ursprungs sind, finden sich weitere exzitonische Übergänge wie Phononenrepliken (bei Erzeugung von Phononen aus der Rekombinationsenergie - in ZnO und GaN üblicherweise longitudinal optische Phononen [HUA03]) oder Zweielektronensatelliten (bei denen der einstige Bindungspartner in einem angeregten Zustand zurück bleibt).

Auch die Linienbreite eines exzitonischen Übergangs kann Aufschlüsse über strukturelle/chemische Eigenschaften des Materials liefern. So können in Quantenfilmen die Halbwertsbreiten (FWHM) der exzitonischen Lumineszenz unter Umständen eine Aussage über die Beschaffenheit der Grenzflächen treffen. Je breiter die FWHM, desto größer ist die Unordnung innerhalb des Films. Dies liegt darin begründet, dass die effektive Bandlücke mit der Schichtdicke moduliert, welche wiederum in die Übergangsenergie der Exzitonen entsprechend Gleichung (2.12) mit E_g eingeht. Eine Zusammenfassung der bisher erarbeiteten Zusammenhänge der FWHM und der Beschaffenheit eines Quantenfilms findet sich z.B. in [BAJ01]. In ternären und quaternären etc. Halbleitern kann die FWHM die Unordnung der Materialkomposition innerhalb eines beobachteten Volumens aufzeigen.

2.5 Rekombinationskinetik

Bereits im vorangegangenen Abschnitt wurde auf die Lebensdauer von Exzitonen hingewiesen. Ihre Kenntnis ist notwendig, um die Diffusivität und die Beweglichkeit zu bestimmen, wie im Abschnitt 2.7 beschrieben ist. Diese wird nun in diesem Abschnitt erläutert und aus der Kontinuitätsgleichung für die vorliegenden experimentellen Rand- bzw. Anfangsbedingungen abgeleitet. Die Lebensdauer wird hier auf optischem Wege bestimmt und die dazugehörige Messmethode im Abschnitt 3.2 erläutert.

Um eine Überlagerung unterschiedlicher Effekte zu umgehen und eine mathematisch eindeutige, korrekte Beschreibung des Zerfallsprozesses zu erreichen, wird für die Transportuntersuchungen die anfängliche Lebensdauer der freien Exzitonen herangezogen. Diese wird erhalten aus dem Grenzfall von $t_0 \rightarrow 0$. Dieser Zeitpunkt beschreibt exakt jenen Moment, in dem die Generation von Überschussladungsträgern aus einem Gleichgewicht aus Generation und Rekombination (instantan) gestoppt wird (vgl. Abschnitt 3.2). Für diese Anfangsbedingung existiert eine exakte Lösung der aufzustellenden Kontinuitätsgleichung für den zu beschreibenden Prozess.

Wird ein Halbleiter durch Anregung (z.B. wie in den hier durchgeführten Experimenten mittels Beschuss hochenergetischer Elektronen) aus seinem thermodynamischen Gleichgewicht ausgelenkt, also e-h-Paare bzw. Exzitonen generiert und anschließend diese Anregung abgeschaltet, so kehrt das (elektronische) System Halbleiter nach einer gewissen Zeit wieder in den thermodynamischen Gleichgewichtszustand zurück. Die überschüssig generierten Ladungsträger / Exzitonen rekombinieren. Genauer: die Elektronen- und Löcherkonzentrationen kehren wieder in den Zustand der thermodynamischen Gleichgewichtskonzentrationen zurück.

Um diesen Prozess zu beschreiben, wird eine Generationsrate G_0 definiert, mit welcher e-h-Paare erzeugt werden. Mit Hilfe dieser lässt sich die Kontinuitätsgleichung für die erzeugten und wieder relaxierten Überschussladungsträger (in unserem Fall werden dies die freien Exzitonen X sein) formulieren. [FER00]

$$\frac{d(\Delta n_X)}{dt} = G_0 - \frac{n_X}{\tau} = -\frac{\Delta n_X}{\tau} \quad (2.14)$$

Der Term $-\left(\frac{n_X}{\tau}\right)$ beschreibt die Rate, mit der die Exzitonen rekombinieren und τ deren Lebensdauer. Es ist anzumerken, dass die Lebensdauer τ selbst eine äußerst komplexe Funktion sein kann, abhängig von der Zeit, der Ladungsträger-, Defekt- und Dotierkonzentration, der Temperatur und anderen systemcharakterisierenden Größen (Dotant, Kristallqualität, konkreter Rekombinationskanal wie Band-Band-Übergang, Band-Störstellen-Übergang, Donator-Akzeptor-Übergang,...).

Die Größe n_X in Gleichung (2.14) setzt sich hier zusammen aus der Summe $n_{X0} + \Delta n_X$ wobei n_{X0} die Exzitonenkonzentration im thermodynamischen Gleichgewicht und Δn_X die Konzentration der generierten, also überschüssigen Exzitonen ist.

Erreicht man einen stationären Zustand während der Anregung, also gleichgroße Raten der Generation und Rekombination, so wird die zeitliche Ableitung der Überschussladungsträgerkonzentration bzw. der Konzentration erzeugter Exzitonen (siehe (2.14)) zu Null. Daraus resultiert entsprechend, dass $G_0 = \frac{n_{X0}}{\tau}$ wird. Das heißt, G_0 kann als Gleichgewichtsgenerationsrate interpretiert werden.

Ist die Generationsrate zeitlich invariant, ist also ein stationärer Zustand während der Generation gesichert wie dies in der verwendeten Versuchsanordnung durch lange Pulsdauern erreicht

wird (siehe Abschnitt 3.2), so gilt Gleichung (2.15).

$$n_X = n_{X0} + G\tau \quad (2.15)$$

Bildet man nun den Grenzfall $t_0 \rightarrow 0$, befindet sich also exakt in dem Moment, in dem die Generation von Ladungsträgern nach Erreichen des Gleichgewichtes gestoppt wird, so ist die Lösung von Gleichung (2.14) mit (2.15):

$$n_X(t) = n_{X0} + G\tau e^{-\frac{t}{\tau}}. \quad (2.16)$$

Diese Lösung beschreibt die anfängliche Abklingrate der Exzitonenkonzentration, welche offensichtlich direkt nach Beenden ihrer Generation monoexponentiell mit der Zeit abnimmt. Sie ist die exakte Lösung des formulierten Problems. Die Lebensdauer τ wird deshalb als „anfängliche Lebensdauer“ bezeichnet. Da die Konzentration der Exzitonen zudem proportional zur emittierten Lumineszenzintensität I ist ($G\tau \propto I$), lässt sich Gleichung (2.16) auch schreiben als:

$$\boxed{I(t) = I_0 e^{-\frac{t}{\tau}}} \quad (2.17)$$

Die Gleichgewichtsüberschusskonzentration (aus dem thermodynamischen Gleichgewicht) fließt nicht in die Betrachtung mit ein, da der Anteil der aus der Rekombination aus dem Gleichgewicht entstandenen Lumineszenz als vernachlässigbar anzusehen ist und diese nicht explizit zeitabhängig ist. Die Gleichung (2.17) wird so zur Bestimmung der anfänglichen Lebensdauer aus transienten KL-Messungen herangezogen, wie im Abschnitt 3.2 beschrieben wird.

Nicht beachtet werden in diesem Fall Effekte, die im Verlauf der Relaxation des elektronischen Systems die Lebensdauer mit beeinflussen (also für $t > 0$) und ein Abweichen vom monoexponentiellen Abfall verursachen. Sie sind auch nicht ausschlaggebend, denn Gleichung 2.16 zeigt, dass im Grenzfall $t \rightarrow 0$ das monoexponentielle Abklingen die exakte Lösung von 2.14 ist.

Die erhaltenen Transienten der Lumineszenzintensität enthalten selbstverständlich alle diese Prozesse über den gesamten Beobachtungszeitraum. So lässt sich für „lange“ Zeiträume eine effektive Lebensdauer bestimmen. Sie setzt sich aus den Lebensdauern für jeden einzelnen Prozess zusammen und ist nach der Mathiessen-Regel superpositioniert. Die einfachste Unterscheidung stellt die Aufspaltung in strahlende und nicht-strahlende Rekombinationen dar. Nach [BAS97] ergibt sich demnach für die Lebensdauer:

$$\frac{1}{\tau_{Leben}} = \frac{1}{\tau_{strahlend}} + \frac{1}{\tau_{nichtstrahlend}}. \quad (2.18)$$

Die Lebensdauer kann so auch Aufschluss über die Qualität eines Halbleitermaterials geben. Je besser die Qualität ist, desto länger die Lebensdauer. Nichtstrahlende Rekombinationszentren im ZnO sind z.B. Zn-Vakanzen [KOI03]. Befinden sich Störstellen im Kristall, so werden Exzitonen insbesondere bei tiefen Temperaturen aufgrund ihrer geringen kinetischen Energie von diesen „eingefangen“. Die Lebensdauer der freien Exzitonen wird damit zu tiefen Temperaturen hin verringert. Erst, wenn die thermodynamische Energie über der Bindungsenergie eines Exzitons an eine solche Störstelle liegt, finden diese Einfangprozesse nicht mehr statt. Auch die Wechselwirkung mit Phononen (inelastische Streuungen, Absorption) verringert die Lebensdauer der Exzitonen. Hierbei verringert sie sich jedoch aufgrund der zunehmenden Phononendichte mit steigender Temperatur

2.6 Heterostrukturen - der quantum confined Stark effect

Neben der Etablierung der Analyse exzitonen Transportes mittels Kathodolumineszenzuntersuchungen, sollte im Rahmen dieser Arbeit auch der Transport entlang von Grenzflächen untersucht werden. Hierzu wurden Heterostrukturen, das heißt Quantenfilme aus MgZnO/ZnO, untersucht. Hier gilt es aufgrund der Eigenschaften dieser Materialien einige Randbedingungen zu berücksichtigen. Bereits im Kapitel 2.1 wurde auf die Polarität der Realstrukturen von GaN und ZnO eingegangen und auf die Bedeutung der Polarisationsfelder auf Heterostrukturen hingewiesen. Aufgrund der Tatsache, dass sich die einzelnen Polarisierungen im Wurtzitkristall nicht gegenseitig neutralisieren, kommt es auch an den Grenzflächen von Heterostrukturen zu Ladungsträgerakkumulationen und eingepprägten Feldern in den Schichtstrukturen, sofern diese nicht senkrecht zur Orientierung der Polarisationsfelder gewachsen sind. Maximal sind sie demnach in Richtung der c-Achse und umso größer, je dicker die jeweiligen Quantenfilme ausfallen. Die Felder - und damit einhergehend die räumliche Trennung von Überschussladungsträgern - im Quantenfilm bedingen in diesem eine Bandverbiegung in Richtung seiner Schichtdicke. So stellt sich eine Abweichung vom idealen, rechteckigen Potentialtopf ein. Dieser wird nunmehr zu einem Dreieckspotential, wie es in der Abbildung 2.7 schematisch dargestellt ist. [WOO08]

Allgemein stellt sich die Rekombinationsenergie (2.19) eines strahlenden Übergangs von Exzitonen innerhalb einer solchen Heterostruktur dar als die Summe der Bandlücke des Volumenmaterials (Bulk-Material) und den Quantisierungsenergien von Elektron und Loch. Hiervon abzuziehen ist noch die Exzitonenbindungsenergie im Quantenfilm. Dies gilt unabhängig von der Existenz von Feldern. Existieren jedoch Felder parallel zur Schichtdicke, so führt die Bandverbiegung zu einem Absinken der effektiven Bandlücke und damit der Rekombinationsenergie. Diese Reduzierung der Bandlücke wird mit dem letzten Summanden in der Gleichung (2.19) ausgedrückt. Je größer demnach das Feld F_z , desto stärker wird die „effektive“ Bandlücke des Quantenfilmmaterials reduziert (siehe Abbildung 2.7). [WOO08]

$$E_X = E_{g,QW} + E_{nn} + E_{hn} - E_X^b - eF_z L_z \quad (2.19)$$

Auf der linken Seite der Gleichung (2.19) steht die Rekombinationsenergie eines im Quantenfilm befindlichen Exzitons, $E_{g,QW}$ ist die Bandlücke des entsprechenden Volumenmaterials, E_{nn} und E_{hn} sind die Quantisierungsenergien von Elektron und Loch, E_X^b ist die Exzitonenbindungsenergie, e die Elementarladung, F_z das elektrische Feld im Quantenfilm und L_z entsprechend die Dicke des Films.

Die Quantisierungsenergie für Elektronen in einem Potentialtopf mit unendlich hohen Barrieren lässt sich relativ einfach nach Gleichung (2.20) errechnen. [GRU06]

$$E_{nn} = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{n\pi}{L_z} \right)^2 \quad (2.20)$$

Die effektive Elektronenmasse im ZnO beträgt dabei $m^*=0,24m_0$, wobei m_0 die Elektronenruhemasse im Vakuum ist. [FAN05]. n entspricht der Ordnung der Quantisierung.

Betrachtet man lediglich die ersten drei Terme der Gleichung (2.19), so erkennt man die aufgrund der Quantisierung zu erwartende Blauverschiebung der Rekombinationsenergie gegenüber einem Volumenmaterial - sie werden zur Bandlücke addiert. Der letzte Term jedoch beschreibt den sogenannten *quantum confined Stark effect* (QCSE). Dieser kann vom Betrag her Werte

erreichen, die die Quantisierung überkompensieren und so effektiv zu einer Rotverschiebung der Lumineszenz aus dem Quantenfilm, auch noch unterhalb der Bandlücke, verursachen. Auch lässt sich aus diesem letzten Term ablesen, dass mit zunehmender Filmdicke L_z (und damit zunehmendem Polarisationsfeld) der QCSE stärker wird.

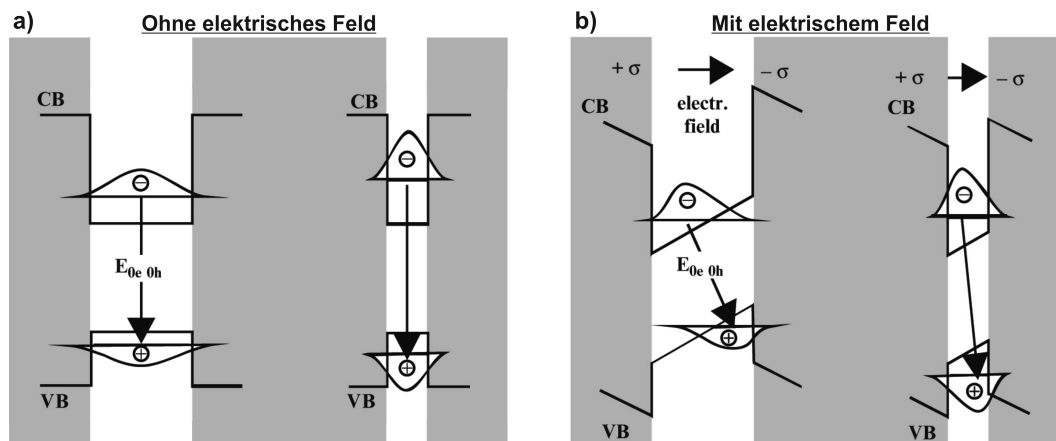


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung des Bandverlaufes eines Einzelquantenfilms (QW) für zwei unterschiedliche Filmdicken (links dick, rechts dünn). a) ohne elektrischem Feld: die Rekombinationsenergie von Elektron und Loch im QW nimmt mit geringerer Schichtdicke aufgrund der stärkeren Quantisierung zu (Blauverschiebung). b) mit elektrischem Feld: es muss vom rechteckigen zum dreieckigen Potentialtopf übergegangen werden. Hier reduziert sich die effektive Bandlücke aufgrund der Krümmung der Bänder und führt somit zu einer Rotverschiebung. Dieser Effekt wird „quantum confined Stark effect“ (QCSE) genannt. Je größer die Schichtdicke ausfällt, umso größer ist das Polarisationsfeld aufgrund der sich akkumulierenden Ladungen. Zudem wird der Übergang zunehmend indirekt aufgrund der stärkeren Lokalisierung der Ladungsträger an die jeweilige Grenzfläche. Dies um so stärker, je dicker der Quantenfilm ist. [WOO08]

Durch die dreiecksförmige Ausbildung des Bandverlaufes des Quantenfilms folgt eine Lokalisierung von Elektron und Loch an jeweils gegenüberliegende Grenzflächen. Daraus resultiert, dass mit stärker werdendem QCSE die Oszillatorstärke des optischen Übergangs kleiner wird bzw. sich das Überlappintegral von Elektron- und Lochwellenfunktion verringert. In der Abbildung 2.8 wird exemplarisch das Quadrat des Überlappintegrals von Elektron- und Lochwellenfunktion in einem InGaN Quantenfilm in Abhängigkeit von der Filmdicke dargestellt. Mit zunehmender Dicke und damit einhergehend zunehmendem Einfluss des QCSE (vgl. Gleichung (2.19)) verringert sich der Überlapp, die Oszillatorstärke nimmt ab. Dies bedeutet eine Verringerung der Wahrscheinlichkeit einer Rekombination von Elektron und Loch, da der Übergang zunehmend indirekt wird.

Dies hat direkt Auswirkungen auf die Lebensdauer der Exzitonen (oder e-h-Paare). Werden Übergänge weniger Wahrscheinlich, so erhöht sich diese. Zum Ausdruck kommt dieses Verhalten auch aus der Abhängigkeit der strahlenden Lebensdauer nach Gleichung (2.21). Hier befindet sich die Oszillatorstärke f_{osc} im Nenner des Ausdruckes. Je kleiner also diese wird, desto größer wird τ_{rad} .

$$\tau_{rad} = \frac{2\pi\epsilon_0 m_0 c^3}{n e^2 \omega_{cv}^2 f_{osc}} \quad (2.21)$$

In dieser Gleichung sind ϵ_0 die Dielektrizitätszahl, m_0 die Ruhemasse des Elektrons, e wieder die Elementarladung und c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum. n beschreibt hier, anders als in den Notationen oben, den Brechungsindex, ω_{cv} ist die Frequenz des optischen Überganges (Kehrwert der Wellenlänge des emittierten Photons) und f_{osc} ist die zugehörige exzitonische Oszillatorstärke (siehe Gleichung (2.22))

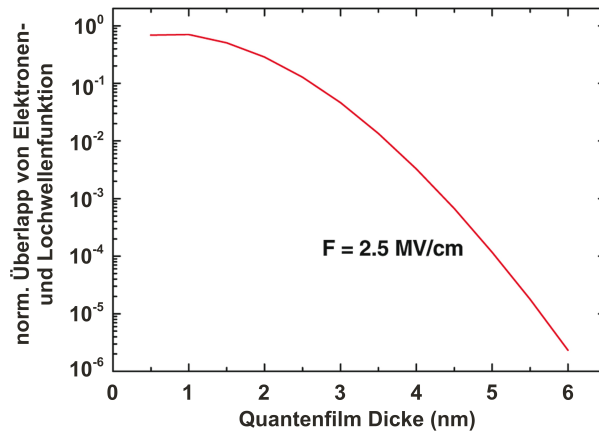


Abbildung 2.8: Funktion des Quadrats der Überlappintegrale von Elektron und Loch Envelopenwellenfunktion für einen Einzel-Quantenfilm aus $\text{In}_{0,17}\text{Ga}_{0,83}\text{N}/\text{GaN}$ in Abhängigkeit der Filmdicke. Polarisationsfeld 2,5 MV/cm. [WOO08]

$$f_{osc} = \frac{2}{m_e \hbar \omega_{cv}} |\langle u_c | \mathbf{p} \mathbf{e} | v \rangle|^2 \left| \int f_e(z) f_h(z) dz \right|^2 \quad (2.22)$$

Mit $\langle c | \mathbf{p} \mathbf{e} | v \rangle$, dem Dipolmatrixelement und $|c\rangle$ und $|v\rangle$ als End- und Anfangszustand des betrachteten optischen Übergangs. \mathbf{p} ist der Elektronenimpulsoperator, \mathbf{e} ist der Einheitspolarisationsvektor, $f_e(z)$ und $f_h(z)$ beschreiben die Elektronen- und Lochwellenfunktion, z ist die Dicke des Quantenfilms, über welche zu integrieren ist. So ist der letzte Term der Gleichung (2.22) das Überlappintegral entsprechend der Abbildung 2.8 und nimmt offensichtlich mit zunehmender Quantenfilmdicke ab.

2.7 Transport von Ladungsträgern und Exzitonen

Um den Transport von Exzitonen beschreiben zu können wird zunächst der Transport von Ladungsträgern diskutiert und aus der theoretischen Betrachtung des feldfreien Falls die Beweglichkeit durch Diffusion definiert. Anschließend wird der Übergang vom Ladungsträgertransport zum exzitonischen Transport geschaffen, sodass die Beweglichkeit der Exzitonen, welche im Rahmen dieser Arbeit untersucht wird, ebenfalls entsprechend definiert ist. Der Weg zur Ermittlung der Beweglichkeit führt dabei über die Diffusionskonstante und die Einsteinrelation, wie in diesem Abschnitt gezeigt werden wird.

Elektronen und Löcher, welche sich im Leitungs- beziehungsweise Valenzband aufhalten sind quasifrei sowohl in Bezug auf ihre Bewegung im Raum, als auch in ihrer Energie. Dies gilt ebenso auch für freie Exzitonen. Ferner können sie Energie (z.B. kinetische Energie) aus Wechselwirkungen mit z.B. externen Feldern oder Stößen unterschiedlicher Art aufnehmen.

Die Bewegung der Teilchen (Elektronen, Löcher, Exzitonen und andere) wird bedingt durch Wechselwirkungen mit internen und externen Feldern sowie durch Konzentrationsgradienten. Bei elektrisch neutralen Teilchen wie Exzitonen findet eine Wechselwirkung mit homogenen externen Feldern nicht statt. Bewegen sich diese, so ist dies auf Stöße, mikroskopische Felder beziehungsweise Feldgradienten, die ein Dipolmoment induzieren und/oder auf Konzentrationsgradienten zurückzuführen. Eine Wechselwirkung von elektrischen Feldern und Exzitonen findet nur statt, wenn ein Feldgradient auf der Längenskala des Exziton-Bohr-Radius existiert. [GÄR06]

Der Ladungsträger- und Exzitonentransport in Halbleitern ist ein nichtidealer Prozess, da aufgrund von Abweichungen vom idealen Kristallgitter Streuzentren existieren, welche die mittlere freie Weglänge limitieren. Die Summe aller Streueignisse und Wechselwirkungen begrenzt und charakterisiert die Teilchenbewegung, ihre Beweglichkeit.

Eine erste Vorstellung zur elektrischen Leitfähigkeit von Metallen wurde durch Paul Drude gegeben. Diese beruht auf einem idealen Elektronengas in einem Festkörper, welches unter dem Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes und einer inneren Reibung zu der klassischen Bewegungsgleichung

$$m\vec{v} + \frac{m_n}{\tau_n}\vec{v}_D = -e\vec{E} \quad (2.23)$$

führt. Der Reibungsterm $\frac{m_n\vec{v}_D}{\tau_n}$ geht dabei auf Streuungen der die Elektronen ausgesetzt sind zurück, $\vec{v}_D = \vec{v} - \vec{v}_{thermisch}$ ist die durch ein existierendes elektrisches Feld erzeugte Driftgeschwindigkeit mit der Geschwindigkeit $\vec{v}_{thermisch}$ basierend auf thermischer Energie der Ladungsträger. τ_n ist die Relaxationszeit, also jene Zeit, in der \vec{v} zu $\vec{v}_{thermisch}$ nach abschalten des Feldes zurückkehrt. Der Index n steht hier für Elektronen. Später wird noch der Index p verwendet, welcher Löcher kennzeichnet (hierbei würden sich an dieser Stelle lediglich die Vorzeichen aufgrund der positiven Ladung der Löcher ändern).

Findet keine Beschleunigung der Ladungsträger statt, gilt also der stationäre Fall, so ist die zeitliche Ableitung der Geschwindigkeit $\dot{\vec{v}} = 0$ und damit die Driftgeschwindigkeit:

$$\vec{v}_D = -\frac{e\tau_n}{m_n}\vec{E} \quad (2.24)$$

Konstruiert man hiermit eine Stromdichte \vec{j} mit der Ladungsträgerdichte n , so ist diese:

$$\vec{j}_n = -en\vec{v}_D = ne\mu_n\vec{E} = \frac{e^2\tau_n n}{m_n}\vec{E} \quad (2.25)$$

n ist also die Dichte der freien Elektronen. Der Faktor μ_n wird als Beweglichkeit bezeichnet. Vergleicht man Gleichung (2.25) mit Gleichung (2.24) so erhält man für die Definition der Beweglichkeit (2.26).

$$\mu_n = \frac{e}{m_n}\tau_n \quad (2.26)$$

Um hieraus beteiligte Streumechanismen ableiten zu können, sind jedoch weitere Überlegungen anzustellen, da die Streuzeit τ_n nicht mit der zur Verfügung stehenden Technik gemessen werden kann. Aus diesem Grund wird im Folgenden der „Reibungsterm“ näher betrachtet.

Konstruiert man dazu einen Zylinder mit der Länge der mittleren freien Weglänge l und einem Streuquerschnitt s , so nimmt jedes im Material existente Streuzentrum im Mittel dieses Volumen ein. Ist N_{Streu} die Dichte der Streuzentren, so ist die mittlere freie Weglänge gegeben durch:

$$l = \frac{1}{sN_{Streu}} \quad (2.27)$$

und die Zeit, die zwischen zwei Streueignissen vergeht ist:

$$\tau = \frac{l}{v} = \frac{1}{vsN_{Streu}} \quad (2.28)$$

v steht für die mittlere quadratische Geschwindigkeit und ist gegeben durch Gleichung (2.29). Die hierin enthaltenen Größen sind: k die Boltzmannkonstante, T die Temperatur und m die Masse des betrachteten Teilchens.

$$v = \sqrt{\langle v^2 \rangle} = \sqrt{\frac{3kT}{m}} \quad (2.29)$$

Ersetzt man nun die Streuzeit τ_n in Gleichung (2.26) durch den Quotienten der mittleren freien Weglänge l und der mittleren quadratischen Geschwindigkeit v , so erhält man für die Beweglichkeit:

$$\mu_n = \frac{e}{m_n} \frac{l}{v} \quad (2.30)$$

So ist die Beweglichkeit direkt proportional zum Quotienten aus mittlerer freier Weglänge und mittlerer quadratischer Geschwindigkeit.

Wie bereits einleitend erwähnt wurde, lässt sich auch dann eine „gerichtete“ Bewegung von Teilchen beobachten, wenn keine Felder auf sie einwirken. Bisher wurde die Ableitung der Beweglichkeit für Ladungsträger vorgenommen. Dies soll beibehalten werden, um eine schlüssige Argumentationskette von separatem Elektron und Loch hin zu deren gebundenen Zustand des Exzitons zu erhalten. Beachtet man allerdings den Umstand nicht existenter Felder, so lassen sich die nachfolgenden Ergebnisse ebenfalls auf elektrisch neutrale Teilchen (Atome, Moleküle, Exzitonen etc.) übertragen. Das heißt für die nachstehenden Schritte und Ergebnisse lediglich, dass die Elementarladung „ e “ aus den Gleichungen zu eliminieren wäre, um nicht den Ladungs- oder Ladungsträgertransport, sondern einen Stoff- bzw. Teilchentransport zu beschreiben. Ent-

fernt man aus den Gleichungen (2.31) „e“, so steht dort direkt das sogenannte 1. Ficksche Gesetz, welches z.B. auch für Gase (und damit elektrisch neutrale Teilchen) gilt.

Eine durch Konzentrationsgradienten getriebene Bewegung wird als Diffusion bezeichnet. Solche Konzentrationsgradienten lassen sich beispielsweise durch lokale Ladungsträgergeneration mittels Elektronenstrahlanregung erzeugen.

Zunächst werden die Elektronen- und Löcherdiffusion betrachtet und anschließend über die Schwerpunktbewegung zu sogenanntem ambipolarem Transport übergeleitet, um damit die Exzitonendiffusion gegenüber den vorher betrachteten Fällen abzugrenzen. Zudem wird die Anwendbarkeit der gesamten Betrachtung auf Exzitonen erläutert.

Der „Diffusionsstrom“ soll also proportional zum Gradienten der Ladungsträgerkonzentration sein. Zudem wird für systemcharakterisierende Bedingungen ein weiterer Proportionalitätsfaktor definiert. Die Diffusionskonstante D . In ihr sollen alle Material-, Teilchen- und sonstigen Eigenschaften enthalten sein. So ist der Diffusionsstrom für Elektronen und Löcher nach [BOE202]:

$$j_n = eD_n \frac{dn}{dx} \quad j_p = -eD_p \frac{dp}{dx} \quad (2.31)$$

$j_{n,p}$ gibt dabei die Diffusionsstromdichte der Elektronen (n) und Löcher (p) an, $D_{n,p}$ ist der zugehörige Diffusionskoeffizient und besitzt die Einheit $\left[\frac{\text{cm}^2}{\text{s}}\right]$. Er beschreibt somit die Ausbreitungsgeschwindigkeit in einer Fläche.

Der Diffusionsstrom kann hergeleitet werden aus der Differenz zweier, durch vollständig zufällige Bewegung der Ladungsträger hervorgerufene, Ströme aus Gebieten geringfügig unterschiedlicher Ladungsträgerkonzentration (vergleiche Abbildung 2.9). Der Strom, welcher bei $x_0 + \frac{dx}{2}$ auftritt und von rechts nach links über x_0 läuft wird hervorgerufen durch die Brown'sche Bewegung der Elektronen mit einer Konzentration von $n_0 + \frac{dn}{2}$. Dieser Strom ist gegeben durch:

$$j_n = e \left(n_0 + \frac{dn}{2} \right) \frac{v^2 \tau_n}{3 dx} \quad (2.32)$$

Der Strom, welcher auf der anderen Seite von links nach rechts über $x_0 - \frac{dx}{2}$ fließt ist:

$$j_n = e \left(n_0 - \frac{dn}{2} \right) \frac{v^2 \tau_n}{3 dx} \quad (2.33)$$

Dieser Strom ist demnach proportional zur mittleren quadratischen Geschwindigkeit v der Ladungsträger und ihrer mittleren freien Wegstrecke l_n , wobei nach (2.28) $l_n = v\tau_n$ ist. Der Faktor $\frac{1}{3}$ stammt aus der kinetischen Gastheorie unter Annahme, dass die mittlere quadratische Geschwindigkeit isotrop verteilt ist. Wenn also gilt: $\overline{v^2} = v^2 = v_x^2 + v_y^2 + v_z^2$ und $v_x^2 = v_y^2 = v_z^2$. Damit erhält man für die x -Komponente, welche bisher betrachtet wurde, $v_x^2 = \frac{v^2}{3}$.

Die Differenz der Ströme aus den Gleichungen (2.32) und (2.33) ist der Gesamtstrom in dem betrachteten Gebiet und liefert:

$$j_n = e \frac{v^2 \tau_n}{3} \frac{dn}{dx} \quad (2.34)$$

und damit die Diffusionskonstante mit Gleichung (2.31):

$$D_n = \frac{v^2 \tau_n}{3}. \quad (2.35)$$

Entsprechend der Gleichung (2.29) ist die kinetische Energie.

$$\frac{m}{2} \langle v^2 \rangle = \frac{3}{2} k T \quad (2.36)$$

Verwendet man nun diesen Ausdruck (2.36) für die mittlere quadratische Geschwindigkeit, so sind die Diffusionsströme:

$$j_n = \mu_n k T \frac{dn}{dx} \quad j_p = -\mu_p k T \frac{dp}{dx} \quad (2.37)$$

Mit diesem Ausdruck für den Diffusionsstrom (2.37) und dem zu Beginn dieses Abschnitts formulierten Zusammenhang zwischen Diffusionsstrom und Diffusionskonstanten (vgl. (2.31)) erhält man nun die **Einsteinrelation** aus einem simplen Vergleich beider Ausdrücke.

$$D_{n,p} = \mu_{n,p} \frac{kT}{e} \quad (2.38)$$

Wobei ebenso gilt:

$$D_{n,p} = \frac{\lambda^2}{\tau} \quad (2.39)$$

Wodurch sich durch umstellen von (2.38) aus den mittels Messungen erfassbaren Größen Diffusionslänge λ und Lebensdauer τ die Beweglichkeit μ definieren lässt.

Leitet man diese Gleichung in selber Art und Weise für z.B. Atome eines Gases ab, so entfällt, wie eingangs erwähnt, der konstante Faktor „e“ der Elementarladung. Man erhält dann anstelle von (2.38) die nachstehende Gleichung (2.40), welche auch als Einstein-Smoluchowski-Beziehung bezeichnet wird und in vergleichbarer Form von Einstein 1905 in [EIN05] formuliert wurde.

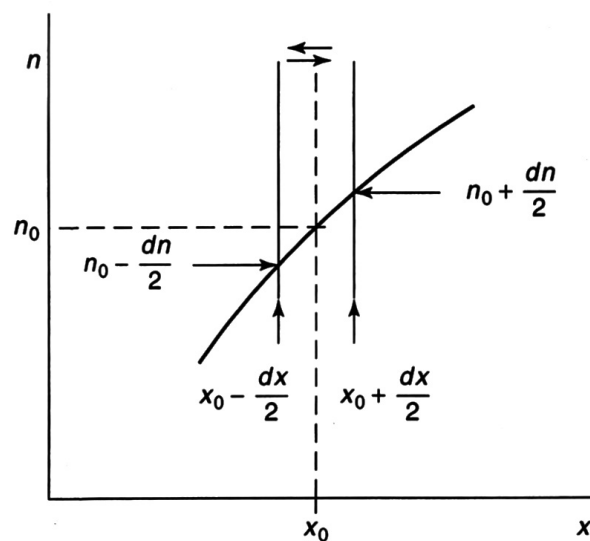


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung zur Herleitung des Diffusionsstroms aus zufälliger Bewegung eines Ladungsträgerensembles. [BOE202]

$$D = \mu k_B T \quad (2.40)$$

Wobei in diesem Fall k_B , anders als in den obigen Fällen k in der Einheit [J/K] zu verwenden ist, was nichts anderes bedeutet als $k_B = \frac{k}{e}$. Es ist bereits jetzt zu erkennen, dass die Einsteinrelation für beliebige Teilchen anwendbar ist, um eine Beweglichkeit zu definieren. Nachstehend wird diese Thematik in Bezug auf die betrachteten Exzitonen jedoch noch weiter detailliert.

In einem typischen, realen System treten zumeist unterschiedliche Einzelbeweglichkeiten auf. Das heißt, jedes Teilchen unterliegt anderen Streumechanismen, besitzt eine andere kinetische Energie, hat andere Anfangs- und Randbedingungen. Diese „Mikrobeweglichkeiten“ addieren sich entsprechend der Matthiessen-Regel mit ihren Kehrwerten (2.41) zur „Makrobeweglichkeit“. Gleiches gilt im Übrigen auch für die einzelnen Streuzeiten, die sich im Gesamtsystem zu einer mittleren Streuzeit entsprechend ihren Kehrwerten addieren und für die „Nettobeweglichkeit“ verschiedener Teilchen.

$$\frac{1}{\mu} = \sum_i \frac{1}{\mu_i} \quad (2.41)$$

mit i als Laufindex für die unterschiedlichen Einzelbeweglichkeiten.

Im folgenden wird hiermit die Beweglichkeit von Exzitonen abgeleitet. Dies geschieht zunächst über die Betrachtung des ambipolaren Transports, also dem gleichgerichteten Transport von Elektronen und Löchern, die jedoch noch als jeweils individuelle Teilchen agieren. Dies wurde bereits von [HIL89] ausführlich besprochen und führt diesen Ausführungen folgend unter Berücksichtigung der Generation G und Rekombination R der Ladungsträger unter Verknüpfung mit der Kontinuitätsgleichung zu Gleichung (2.42)

$$\frac{\partial n, p}{\partial t} = -\frac{1}{e} \operatorname{div} j_{n, p} + G - R \quad (2.42)$$

Wobei n, p wieder als Überschussladungsträgerkonzentrationen von Elektronen (n) und Löchern (p) gelten.

Gleichung (2.42) gibt somit die zeitliche Änderung der Konzentration von Elektronen oder Löchern unter Berücksichtigung einer Bewegung in bzw. aus einem Gebiet an (Divergenzterm). Der Rekombinationsterm R ist bereits aus (2.14) bekannt und lautet $R = \frac{n, p}{\tau_{n, p}}$. Ferner gilt nach [HIL89] für die Stromdichte Gleichung (2.43).

$$j_{n, p} = -e D_{n, p} \frac{\partial n, p}{\partial x} - e (n, p) \mu_{n, p} E \quad (2.43)$$

Es handelt sich dabei also um eine Erweiterung der Gleichung (2.25), in der lediglich der Drift- bzw. Feldstromanteil betrachtet wurde. Hier wurde nun also ein Diffusionsterm (erster Summand) addiert.

Somit ergibt sich für die Gleichung (2.42) mit (2.43) und der Annahme, dass $n = p = c$ gilt die Kontinuitätsgleichung für die Ambipolare Diffusion:

$$\frac{dc}{dt} = \left(\frac{D_p \mu_n + D_n \mu_p}{\mu_n + \mu_p} \right) \Delta c + G - R. \quad (2.44)$$

Unter Zuhilfenahme der Einsteinrelation (2.38) vereinfacht sich der in Gleichung (2.44) in der

Klammer stehende Ausdruck zu:

$$D_{ambipolar} = \frac{2}{D_n^{-1} + D_p^{-1}} \quad (2.45)$$

Hiermit erhält man dann für die ambipolare Beweglichkeit den Ausdruck (2.46).

$$\mu_{ambipolar} = \frac{2}{\mu_n^{-1} + \mu_p^{-1}} = \frac{2}{\left(\frac{e}{m_n} \tau_n\right)^{-1} + \left(\frac{e}{m_p} \tau_p\right)^{-1}} \quad (2.46)$$

Es findet also eine Addition der beiden Einzelbeweglichkeiten von Elektronen und Löchern statt, die sich beide unabhängig voneinander, d.h. ohne Kopplung, bewegen können.

Im Falle von Exzitonen werden Elektron und Loch als EIN Teilchen mit EINER effektiven Masse beschrieben. Aus der Gleichung (2.46) und (2.26) wird so die gesuchte Beschreibung der exzitonsichen Beweglichkeit (2.47), die diesen Umstand berücksichtigt. Es folgt also für die Beweglichkeit der Exzitonen:

$$\mu_{Exziton} = \frac{e}{m_{Exziton}} \tau = \frac{e}{m_n + m_p} \tau. \quad (2.47)$$

Diese Herleitung der exzitonsichen Beweglichkeit zeigt auf, dass die für Elektronen und Löcher bereits gefundenen und theoretisch beschreibbaren Transportvorgänge bzw. Ausdrücke analog verwendet werden können. Bedingungen oder Eigenschaften an die Teilchen, weder die Ladungsträger noch die Exzitonen wurden im gesamten Herleitungsprozess keine gestellt. Lediglich ihre gesonderte bzw. gemeinsame Betrachtung (über ihre effektive Masse) wurden entsprechend angepasst. Die zuletzt genannte Gleichung (2.47) zeigt, dass für Ladungsträger gültige Beschreibungen der Beweglichkeit - das heißt in letzter Konsequenz auch der Einsteinbeziehung (2.38) - eins zu eins für die elektrisch neutralen Exzitonen übernommen werden können. Die in diesem Zusammenhang leicht zu Verwirrungen führende Einheit der Beweglichkeit $\mu = [\text{cm}^2/\text{Vs}]$ mit der elektrischen Spannung im Nenner lässt sich mit den Ausführungen oben (siehe u.a. (2.40)) ebenso auflösen. An den physikalischen Eigenschaften ändert sich dadurch nichts.

2.8 Wichtige Streumechanismen

In den folgenden Abschnitten werden die wichtigsten Streumechanismen in Kristallen für den feldfreien Fall hergeleitet bzw. betrachtet. Die Abbildung 2.10 zeigt die wichtigsten Streumechanismen entsprechend ihrer Zuordnung „Streuung an Defekten“ oder „Streuung am Gitter“. Letztere entsprechen Streuungen, die auch im idealen Kristall auftreten können, da auch diese bei Temperaturen $T > 0$ K Gitterschwingungen vollführen, das heißt sich Phononen in ihnen ausbreiten / bewegen. Die erste Kategorie hingegen beschreibt sämtliche Störungen des idealen Kristalls und den damit verbundenen Streuzentren. Hierbei wird noch unterschieden zwischen Versetzungen, welche auch ohne Existenz von Fremdatomen in einem Material bestehen können und jenen, in denen Verunreinigungen im Kristall Streuzentren darstellen.

Unterschiedliche Streumechanismen besitzen unterschiedliche Abhängigkeiten der Beweglichkeit von der Temperatur. Diese Temperaturabhängigkeiten werden im folgenden für die wichtigsten Streumechanismen hergeleitet und dargelegt. Zunächst erfolgt eine ausführlichere Behandlung für die Streuung im Volumenmaterial, anschließend werden für zweidimensionale Strukturen die entsprechenden Charakteristika genannt und auf den Einfluss von Grenzflächenrauigkeiten auf den Transport, das heißt die Beweglichkeit eingegangen. Die wesentlichen Inhalte entstammen [BOE202].

Da, wie in Abschnitt 2.7 aufgezeigt, die für Ladungsträger gefundenen Transportgrößen offensichtlich auch für Exzitonen gelten, wird im Folgenden keine weitere Unterscheidung mehr vorgenommen.

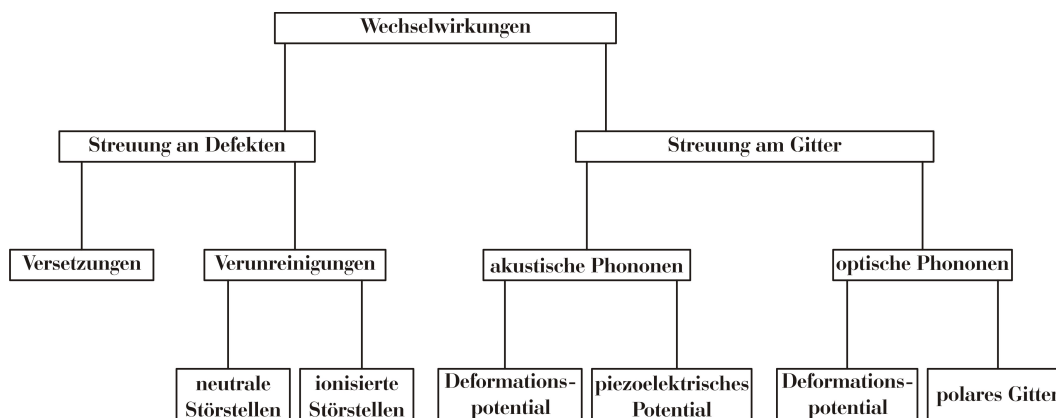


Abbildung 2.10: Übersicht der in Kristallen wichtigsten Streumechanismen und deren Zugehörigkeit zu Streuungen an Defekten und am Kristallgitter.

2.8.1 Streuung an Phononen

In diesem ersten Abschnitt werden die Streuungen am Gitter behandelt, welche Phononen zugrundeliegen. Aufgrund der Verschiebung der Kristallatome gegeneinander ändern sich ihre Abstände zueinander und somit das lokale Potential. Zur Erinnerung: entsprechend 2.3 unterscheidet man verschiedene Arten von Phononen bzw. Phononenzweigen. Die erste Unterscheidung stellen die „optischen“ (O) und „akustischen“ (A) Phononen dar, welche sich weiter unterteilen in „longitudinale“ (L) und „transversale“ (T) Moden.

Optische Phononen besitzen nach [BOE102] zumeist Energien $E_{LO,TO} \approx kT$ mit $T = 300\text{ K}$. Das wiederum heißt, dass optische Phononen bei sehr tiefen Temperaturen lediglich in zu vernachlässigender Anzahl existieren werden, sofern sich der Halbleiter im thermodynamischen Gleichgewicht befindet und keine „hochenergetischen“ Teilchen / Prozesse im Material stattfinden, welche eine Erzeugung optischer Phononen auch bei Temperaturen kleiner als Raumtemperatur forcieren. Das heißt im Umkehrschluss jedoch auch, dass bei Temperaturen kleiner als $\hbar\omega_{LO,TO}$ eine Streuung vornehmlich an akustischen Phononen stattfinden wird, deren Energie bei $\hbar\omega = 0$ für $q = 0$ beginnt. [BER05] Die Änderung der Energie der Teilchen, welche einer solchen Streuung unterworfen sind, wird infolge dessen jedoch nur sehr geringfügig geändert, so dass näherungsweise von elastischer Streuung gesprochen werden kann.

Deformationspotentialstreuung

Häufig tritt die sogenannte Deformationspotentialstreuung auf, einer Streuung von Teilchen (im weiteren Verlauf wird von Ladungsträgern gesprochen werden) an akustischen Phononen unter der Wechselwirkung mit dem resultierenden Deformationspotential. Die Potentiallandschaft, die ein periodisch aufgebauter Kristall aufweist, wird aufgrund von Phononen örtlich gestört, da diese eine Kontraktion oder Dilatation der Gitterabstände bedeuten. Mit solchen Potentialdeformationen können die Ladungsträger wechselwirken. Die Abbildung 2.11 skizziert eine solche Modulation der Potentiallandschaft (und damit des Bandabstandes) und erläutert das zugehörige Stufenmodell, mit dem die Bewegung von Ladungsträgern in einem solchen Deformationspotential abgeleitet wird. Exemplarisch soll die Herleitung der charakteristischen Beweglichkeit von Elektronen für diesen Streumechanismus gezeigt werden. Die Herleitung entstammt [BOE202] Die zugehörige Modulation des Bandabstandes wird beschrieben durch die Gleichung (2.48) in der sämtliche Reaktionen des Gitters sowie des Bandabstandes unter Kompression und Dilatation enthalten sind. [BOE202]

$$\Delta E_g = \left(\frac{\partial E_g}{\partial \chi} \right)_T \Delta \chi. \quad (2.48)$$

Wobei χ für die Kompression/Dilatation des Gitters steht und eine entsprechend der Kristallstruktur komplexere Funktion darstellt.

So werden für Ladungsträger abwechselnd attraktive und abstoßende Potentiale geschaffen, an denen diese wiederum entsprechend streuen. Dieses Modell kann vereinfacht werden, in dem die Modulation des Bandabstandes nicht kontinuierlich entsprechend der Deformationswelle verläuft, sondern als stufenförmig angenommen wird. Trifft die Welle eines Ladungsträgers auf eine solche Stufe, so wird diese zum Teil transmittiert und zum Teil reflektiert.

Die Wahrscheinlichkeit für eine solche Welle reflektiert zu werden, wird aus der Lösung der

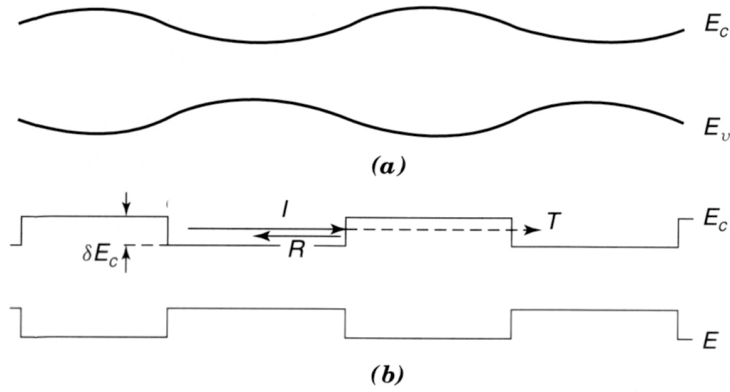


Abbildung 2.11: (a) Kontinuierliche Änderung des Bandabstandes durch "Kompressionswellen" (z.B. longitudinal akustische Phononen), (b) zugehöriges Stufenmodell. [BOE202]

Schrödingergleichung als Differenz aus eintreffender und transmittierter Welle bestimmt. Die Energien dieser Wellen sind gegeben durch Gleichung (2.49).

$$E_{ein} = \frac{\hbar^2 k_{ein}^2}{2m_n} \quad E_{trans} = \frac{\hbar^2 k_{trans}^2}{2m_n} = E_{ein} - \delta E_c \quad (2.49)$$

E_{ein} und E_{trans} sind die Energien der einfallenden beziehungsweise transmittierten Welle, k_{ein} und k_{trans} sind die Wellenvektoren der einfallenden und transmittierten Welle, $\hbar = \frac{h}{2\pi}$ mit h , dem Planckschen Wirkungsquantum. δE_c ist die Stufenhöhe, also die Änderung des Bandabstandes infolge des Einwirkens der Phononenwelle. Diese Änderung des Bandabstandes bzw. die resultierende Barrierenhöhe ist also direkt verknüpft mit der Gitterkompression /-dilatation und wird beschrieben durch Gleichung (2.50).

$$\delta E_c = -\Xi \frac{\delta V}{V}. \quad (2.50)$$

Ξ ist das Deformationspotential (mittleres Deformationspotential in anisotropen Medien), also die Änderung des Bandabstandes je Einheitsdruck und üblicherweise ein Tensor der für jedes Material spezifisch ist. V und δV sind das zugehörige betrachtete Volumen und dessen Änderung. Die damit einhergehende thermische Energie lässt sich ableiten aus der thermodynamischen Analogie (2.51).

$$\frac{1}{2} \delta p \delta V = c k T. \quad (2.51)$$

Wobei c lediglich ein Proportionalitätsfaktor ist und dem Elastizitätstensor entstammt [BOE202]. Er liegt typischerweise in der Größenordnung von 1.

Die inkrementelle Druckänderung δp in (2.51) lässt sich wiederum durch die Kompressibilitätsbeziehung (2.52) ersetzen.

$$\kappa = \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial \chi} \quad (2.52)$$

Nach [BOE102] ist bei $k_{ein} \simeq k_{trans}$ die Reflektionswahrscheinlichkeit:

$$R \simeq \left(\frac{k_{ein} - k_{trans}}{k_{ein} + k_{trans}} \right)^2 \quad (2.53)$$

Hieraus erhält man für die Reflektionswahrscheinlichkeit nach Umstellen mit (2.49) den Ausdruck (2.54).

$$R \simeq \left(\frac{m_n \delta E_c}{2\hbar^2 k_{ein}^2} \right)^2 \quad (2.54)$$

Setzt man nun (2.50), (2.51) und (2.52) in Gleichung (2.54) ein, so folgt daraus für die Reflektionswahrscheinlichkeit letzten Endes die Beziehung (2.55).

$$R \simeq \left(\frac{m_n}{2\hbar^2 k_{ein}^2} \right)^2 \frac{c\kappa kT}{V} \Xi^2 \quad (2.55)$$

Verknüpft man die Reflektionswahrscheinlichkeit mit der mittleren freien Weglänge l über $a = \frac{l}{R}$, mit a als Länge des betrachteten Mediums mit dem Volumen $V = a^3$ und setzt für $k_{ein} \simeq \frac{\pi}{a}$, was nach [BOE202] für langwellige akustische Phononen zutrifft, so erhält man für die mittlere freie Weglänge l die Gleichung (2.56)

$$l \simeq \frac{\hbar^4}{4m_n^2 c\kappa kT \Xi^2} \quad (2.56)$$

Nimmt man die mittlere freie Weglänge als energieunabhängig an und ersetzt für die Berechnung der Beweglichkeit aus Gleichung (2.30) v mit Gleichung (2.29), so erhält man für die Beweglichkeit von Elektronen unter Streuung an akustischen Phononen mit den oben erhaltenen Ergebnissen den Zusammenhang (2.57):

$$\mu_{n,Deformationspotential} = \frac{\sqrt{8\pi}}{3} \frac{eh^4}{4c\kappa m_n^{\frac{5}{2}} (kT)^{\frac{3}{2}} \Xi^2} \quad (2.57)$$

und damit eine Abhängigkeit der Beweglichkeit von der Temperatur von:

$$\boxed{\mu_{n,Deformationspotential} \propto T^{-\frac{3}{2}}} \quad (2.58)$$

Streuung an akustischen Phononen unter piezoelektrischer Wechselwirkung

Neben der Streuung mit akustischen Phononen unter Wechselwirkung mit dem Deformationspotential kann Streuung auch mit akustischen Phononen mit piezoelektrischer Wechselwirkung stattfinden. In piezoelektrischen Kristallen werden durch die abwechselnde Kompression und Dilatation elektrische Felder erzeugt. Diese entstehen bei Verschieben ionischer Kristallatome durch Dipolinduktion in Richtung der Verschiebung, also in Ausbreitungsrichtung des Phonons. Diese induzierten elektrischen Felder können wiederum mit den Ladungsträgern in ihrer Umgebung wechselwirken, stellen also Streuzentren dar. Entsprechend [BOE202] und [MEY53] ist die Beweglichkeit für Elektronen unter dieser Art des Streumechanismus sehr ähnlich zu der Streuung mit dem Deformationspotential und gegeben durch Gleichung (2.59).

$$\mu_{n,piezoelektrisch} = \frac{16\sqrt{2\pi}}{3} \frac{\hbar^2 \epsilon \epsilon_0}{em_n^{\frac{3}{2}} K^2 (kT)^{\frac{1}{2}}} \quad (2.59)$$

K ist eine elektromechanische Kopplungskonstante, wobei K^2 als Verhältnis von der mechanischen und der gesamten Arbeit in einem piezoelektrischen Material beschrieben wird.³ Die Beweglichkeit bei piezoelektrischer Streuung unter Beteiligung von akustischen Phononen ist also:

$$\boxed{\mu_{n,\text{piezoelektrisch}} \propto T^{-\frac{1}{2}}} \quad (2.60)$$

Dieser Streumechanismus kann insbesondere bei tiefen Temperaturen zum dominierenden Streumechanismus auch für Elektronen werden, sofern im betrachteten Material eine lediglich sehr geringe Konzentration ionisierter Störstellen vorliegt, welche äußerst effektive Streuzentren für Ladungsträger darstellen. [SEE83], [NAG84]

Fröhlich Wechselwirkung

Die Streuung von Ladungsträgern mit longitudinal optischen Phononen (LO) in einem ionischen Kristall wird Fröhlichwechselwirkung genannt. Sie besitzt wesentlich größeren Einfluss auf die Beweglichkeit als die Deformationspotentialstreuung. Dies liegt vor allem an dem großen induzierten Dipolmoment welches durch diese Art der Gitterschwingungen (sie besitzen eine recht hohe Energie) hervorgerufen wird.

Das induzierte Feld ist proportional zur Polarisation P - vgl. Gleichung (2.61). Die Polarisation selbst kann berechnet werden aus (2.62).

$$F = -\frac{P}{\epsilon\epsilon_0} \quad (2.61)$$

$$P = \frac{e_c \delta a}{V_0} \quad (2.62)$$

Der Faktor δa steht für die Änderung des Atomaren Abstandes, V_0 für das Volumen der Gitter Einheitszelle und e_c ist die sogenannte effektive „Callen“ Ladung (2.63)(Erläuterungen: siehe [BOE102] und [BAL80]).

$$e_c = \frac{\omega_{TO}}{\epsilon_{opt}} \sqrt{\frac{\epsilon_0 (\epsilon_{st} \epsilon_{opt} M_r)}{N}} \quad (2.63)$$

Damit ist die Beweglichkeit nach [BOE202] gegeben durch Gleichung (2.64) und gültig für inelastische Streuungen bei Temperaturen unterhalb der materialspezifischen Debyetemperatur. Es darf davon ausgegangen werden, dass das Temperaturcharakteristikum der Beweglichkeit für die Fröhlichwechselwirkung (2.66) für die in dieser Arbeit betrachteten Temperaturen von bis maximal $T=300$ K Gültigkeit besitzt. Die Beweglichkeit nimmt offenbar linear mit steigender Kopplungskonstante α_c (2.65) ab, während sie aufgrund von Ausfrierungen optischer Phononen exponentiell mit fallender Temperatur zunimmt.

$$\mu_{n,\text{Fröhlich}} = \frac{e\hbar}{2m_n \alpha_c k \Theta} e^{\frac{\Theta}{T}} \quad (2.64)$$

³ K^2 kann als Quotient aus mechanischer zur gesamten Arbeit in einem piezoelektrischen Material ausgedrückt werden: $K^2 = \frac{e_{pz}^2}{c_l} / \left(\epsilon\epsilon_0 + \frac{e_{pz}^2}{c_l} \right)$. e_{pz} ist die piezoelektrische Konstante (welche sich im Bereich um 10^{-5} As/cm^2 bewegt) und c_l ist die longitudinale elastische Konstante.

α_c ist eine Kopplungskonstante und gegeben durch Gleichung (2.65) [BOE202]. Sie stellt das Verhältnis der Coulombenergie eines Polarons⁴ und der Energie eines LO-Phonons dar.

$$\alpha_c = \frac{\sqrt{2}e^2}{8\pi \left(\frac{1}{\epsilon_{optisch}} + \frac{1}{\epsilon_{statisch}} \right) \hbar} \sqrt{\frac{m_{pol}}{\hbar\omega_{LO}}} \quad (2.65)$$

m_{pol} ist die Masse eines Polarons und Θ die Debyetemperatur des betrachteten Halbleiters.

$$\boxed{\mu_{n,Froehlich} \propto e^{\frac{1}{T}}} \quad (2.66)$$

⁴Vereinfacht gesagt sind Polaronen Quasiteilchen (wie auch Exzitonen und Phononen). Sie beschreiben die Elektron-Phonon-Wechselwirkung

2.8.2 Streuung an Gitterdefekten

Nachdem die wichtigsten Streumechanismen am Gitter im vorangegangenen Abschnitt 2.8.1 behandelt wurden, werden in diesem zweiten Abschnitt die Streuungen an Defekten behandelt. Diese beinhalten Streuung an Versetzungen sowie an neutralen und ionisierten Störstellen. Letztere stellen zumindest für Ladungsträger äußerst effektive Streuzentren dar und sind insbesondere bei tiefen Temperaturen „aktiv“.

Coulombstreuung - ionisierte Störstellen

Der mit Abstand dominanteste Streumechanismus für Ladungsträger ist jener an geladenen Störstellen in dotierten Halbleitern. Er resultiert aus langreichweitiger Coulombwechselwirkung. Die Streuung von Ladungsträgern in einem Halbleiter unterscheidet sich dabei prinzipiell nicht von der Rutherfordstreuung und kann entsprechend mit den gleichen Überlegungen beschrieben werden. Verwendet man die statische Dielektrizitätskonstante des betrachteten Materials zur Berücksichtigung des Abschirmens des elektrischen Feldes durch umliegende Gitteratome und nutzt die effektive Masse der Ladungsträger im Halbleiterkristall, so ist der differentielle Streuquerschnitt somit gegeben durch (2.67) [BOE202].

$$s_n(\Theta)d\Omega = \left(\frac{Ze^2}{8\pi\epsilon_{st}\epsilon_0 dm_n v^2} \right)^2 \sin^{-4} \left(\frac{\Theta}{2} \right) d\Omega \quad (2.67)$$

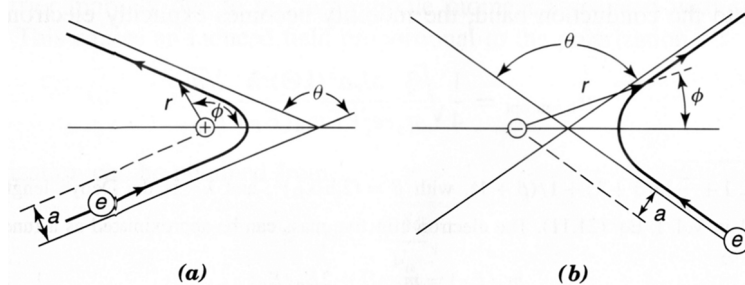


Abbildung 2.12: Trajektorien von Elektronen für (a) anziehende und (b) abstoßende Coulombwechselwirkung mit ionisierten Streuzentren. [BOE202]

Z ist die Kernladungszahl des Störstellenelements, Θ der Winkel, unter dem sich ein Ladungsträger mit der mittleren quadratischen Geschwindigkeit v auf ein solches ionisiertes Störstellenelement zubewegt. $d\Omega = 2\pi \sin \Theta d\Theta$ ist entsprechend das Raumwinkelelement, welches von der Trajektorie des eintreffenden und gestreuten Ladungsträgers aufgespannt wird und d ist der Minimalabstand, welcher zwischen Elektron und Streuzentrum eingenommen werden kann. Der Streuquerschnitt s_n wird [BOE202] folgend definiert über (2.68).

$$s_n = \pi r_i^2 \quad (2.68)$$

r_i ist dabei der Streuradius des beteiligten Ions [BOE202]. Das Raumwinkelelement Θ aus Gleichung (2.67) wiederum ist definiert durch (2.69):

$$\frac{\Theta}{2} = \arctan \left(\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_{\text{statisch}}\epsilon_0 dm_n v^2} \right) \quad (2.69)$$

Nach [BOE202] ist hiermit und unter Berücksichtigung einer Streuzeit, die ausreichend viele Streueignisse zulässt, um eine völlig willkürliche Bewegung (Verlust der Möglichkeit vorangegangene Streueignisse zurückzuverfolgen) zu erhalten, die Beweglichkeit für Elektronen unter Streuung an ionisierten Defekten beschrieben durch (2.70).

$$\mu_{n,ion} = \frac{8\pi\sqrt{2}(4\pi\epsilon_{\text{statisch}}\epsilon_0)^2 (kT)^{\frac{3}{2}}}{\pi^{\frac{3}{2}} Z^2 e^3 m_n^{\frac{1}{2}} N_{\text{Streu}}} \frac{1}{\ln \left(1 + \left(\frac{3\epsilon_{\text{statisch}}\epsilon_0 kT}{2Ze^2 N_{\text{Streu}}^{\frac{1}{3}}} \right)^2 \right)} \quad (2.70)$$

Die Beweglichkeit steigt mit zunehmender Temperatur also allometrisch mit dem Exponenten $+\frac{3}{2}$, sofern der logarithmische Termin vernachlässigt wird. Dies ist üblicherweise der Fall, denn der Beitrag aus diesem Term strebt für Temperaturen $T > 0$ K schnell gegen 1. So ist die Streuung von Ladungsträgern an ionisierten Störstellen charakterisiert durch eine Beweglichkeit entsprechend (2.71). Das bedeutet, dass mit fallender Temperatur die Beweglichkeit von Ladungsträgern bei Streuung an ionisierten Störstellen drastisch abnimmt.

$$\boxed{\mu_{n,ion} \propto T^{+\frac{3}{2}}} \quad (2.71)$$

Aus Gleichung (2.70) wird zudem ersichtlich, dass die Beweglichkeit im Kehrwert quadratisch mit der Kernladungszahl und linear mit der Dichte der ionisierten Störstellen abnimmt.

$$\mu_{ion} \propto \frac{1}{(eZ)^2 N_{\text{Streu}}} \quad (2.72)$$

Streuung an Versetzungen

Ein weiterer Streumechanismus bei dem die Coulomb-Wechselwirkung beteiligt ist, ist die Streuung an Versetzungen. Versetzungen stellen sehr effiziente Streuzentren für Ladungsträger dar, weil entlang solcher Versetzungslinien üblicherweise Ladungsverschiebungen entstehen. Zum einen wegen der „Neukonstruktion“ der Ladungsträgerverteilung, zum anderen aufgrund des in der Umgebung entstehenden Verspannungsinduzierten Feldes. Die Versetzungen stellen auf diese Weise, je nach Lage des Fermi-niveaus, attraktive Potentiale für freie Elektronen oder Löcher dar. Die entstehenden Felder werden wiederum durch Löcher oder Elektronen, die sich in einer zylindrischen Anordnung um diese Agglomeration ansammeln, abgeschirmt. Der Radius dieses Zylinders entspricht der Debye-Länge (2.73). [BOE202]

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_{st}\epsilon_0 kT}{e^2 p_0}} \quad (2.73)$$

p_0 ist hier die Löcherkonzentration im bulk-Material, für den Fall, dass Elektronen an die Versetzung gebunden werden. Im umgekehrten Fall sind die entsprechend gegengesetzten Ladungsträgertypen zu betrachten.

Die Streuung an einem so gearteten Zylinder und die damit verbundene Beweglichkeit wurde

von Bonch-Bruevich und Kogan (1959)⁵ und Pödör (1966)⁶ untersucht. Letzterer fand für die Beschreibung der Beweglichkeit den Zusammenhang nach (2.74). Hierfür wurden die Ladungsverteilungen entlang einer solchen Versetzungslinie als geladene Defektzentren mit einem festen, mittleren Abstand angesehen.

$$\mu_{n,Versetzung} = \frac{75\sqrt{p_0}a_l^2 (\epsilon_{statisch}\epsilon_0)^{\frac{3}{2}}}{e^2 N m_n^{\frac{1}{2}}} kT \quad (2.74)$$

N in $[cm^{-2}]$ ist die Versetzungsdichte und a_l der Abstand zwischen den geladenen Defektzentren entlang der Versetzungslinie. Die Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit von Ladungsträgern unter Streuung an Versetzungen folgt also einer Proportionalität entsprechend (2.75).

$$\boxed{\mu_{n,Versetzung} \propto T}. \quad (2.75)$$

Eine detailliertere Betrachtung dieses Streumechnismus liefert zudem, dass eine Bewegung von Ladungsträgern parallel zu den Versetzungslinien eine Beweglichkeit liefert, die denen äquivalent ist, welche auch zu erwarten ist für den Fall, dass keine Versetzungen vorliegen. Senkrecht zu den Versetzungslinien verlaufende Bewegungen jedoch resultieren in maximalen Streuungen bzw. Streuquerschnitten und damit zu einer signifikanten Reduktion der Beweglichkeit der freien Ladungsträger. [BOE202]

Streuung an neutralen Defekten

Weitere, jedoch wesentlich weniger effektive Streuzentren in Kristallen sind neutrale Defekte, sofern ihre Dichte geringer ausfällt als 10^{18} cm^{-3} . Singh folgend kann für diese das Streupotential aufgefasst werden als nicht verformbare Sphäre. [SIN03] Auf Grundlage dieses Modells fand er für die Streuzeit den Zusammenhang (2.76) und somit über die Einsteinbeziehung (2.38) für eine Streuung an neutralen Defekten die Proportionalität nach (2.77).

$$\frac{1}{\tau} = N_{Streu} \frac{2\pi}{\hbar} \left(\frac{4\pi}{3} r_0^3 U_0 \right)^2 \frac{m_n^{\frac{3}{2}} (kT)^{\frac{1}{2}}}{\sqrt{2\pi^2 \hbar^3}} \frac{4}{3} \quad (2.76)$$

N_{Streu} ist die Defektkonzentration, r_0 der Radius des Streupotentials (der nicht verformbaren Sphäre) und U_0 beschreibt das Streupotential.

$$\boxed{\mu_{neutral} \propto T^{-\frac{1}{2}}}. \quad (2.77)$$

Damit gleicht diese Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit von Ladungsträgern jener unter Streuung an akustischen Phononen in piezoelektrischen Kristallen (2.60). Eine Unterscheidbarkeit anhand des charakteristischen Verlaufes der Beweglichkeit als Funktion der Temperatur ist somit nicht möglich.

⁵ V. L. Bonch-Bruevich, Sh. M. Kogan, Sov. Phys. - Solid State (Engl. Transl.) **1**, 1118 (1959)

⁶ B. P. Pödör, Phys. Stat. Solidi **16**, K167

2.8.3 Streuung in 2D-Strukturen

Ein Ansatz zur Berechnung der Beweglichkeit für unterschiedliche Streumechanismen in 3D-, 2D- und 1D-Strukturen ist es entsprechend [HIL89], die Boltzmannsche Transportgleichung in Relaxationszeitnäherung für die Bewegung eines Ladungsträgers in einem elektrischen Feld F zu verwenden. Die Notation F für das elektrische Feld anstelle des üblichen \vec{E} wurde gewählt, um eine Verwechslung mit der Energie E zu vermeiden.

In einer Richtung, zum Beispiel der x -Richtung lautet die Boltzmannsche Transportgleichung:

$$\frac{eF}{m_c} \frac{\partial f}{\partial v_x} = -\frac{f - f_0}{\tau(E)} \quad (2.78)$$

Die Gleichgewichtsverteilungsfunktion ist im Boltzmannfall:

$$f_0 = c(r, t) \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{\frac{b}{2}} e^{-\frac{E}{kT_{n,p}}} \quad (2.79)$$

$T_{n,p}$ ist dabei die Ladungsträgertemperatur und $E = \frac{m}{2}v^2$. b im Exponenten der Klammer gibt die Dimensionalität der betrachteten Struktur an. Das heißt $b = 2$ für eine 2D-Struktur und $b = 3$ für eine 3D-Struktur (also Bulkmaterial). Die Beweglichkeit errechnet sich hiermit über (2.80).

$$\mu = -\frac{e}{m c} \int_{-\infty}^{\infty} v_x \tau(v) \frac{\partial f_0}{\partial v_x} d^b v \quad (2.80)$$

Abweichend von den oben dargestellten Abhängigkeiten der charakteristischen Beweglichkeiten unterschiedlicher Streumechanismen finden sich laut [HIL89] folgende Beschreibungen für zweidimensionale Strukturen:

$$\mu_{n,Deformationspotential}^{2D} \propto \frac{w}{T} \quad (2.81)$$

$$\mu_{n,Piezoelektrisch}^{2D} \propto T^{-1} \quad (2.82)$$

$$\mu_{n,ion}^{2D} \propto \frac{T}{w} \quad (2.83)$$

wobei w die Dicke der 2D-Struktur, also des Quantenfilms ist.

Dies bedeutet unter der Voraussetzung zweier ansonsten identischer Proben, dass je dicker der Quantenfilm ausfällt, desto höher ist die zu erwartende Beweglichkeit der Ladungsträger (oder Exzitonen), wenn die Deformationspotentialstreuung der limitierende Streumechanismus ist.

2.8.4 Streuung an Grenzflächenrauigkeiten

Grenzflächen zwischen zwei Materialien sind insbesondere in der modernen Halbleitertechnologie von großer Wichtigkeit. Dies wurde bereits in der Diskussion der Einleitung deutlich. Je nach Materialwahl, Wachstumsparameter und -methode bilden sich beim Aufbau von Schichtsystemen (hierbei sind von besonderer Bedeutung die Quantenfilme) mehr oder weniger raue Grenzflächen aus. Diese Grenzflächen verursachen durch die resultierende Schichtdicke Fluktuationen in der Potentiallandschaft und bilden somit mögliche Streuzentren. Aufgrund der möglichen geringen räumlichen Ausdehnung der verursachten Potentialfluktuationen (die in der Größenordnung der Ausdehnung des Exzitons (siehe Abschnitt 2.4) entsprechen) können sie für Exzitonen effektive Streuzentren darstellen. Der beliebige Grad der Komplexität mit der sich eine Grenzfläche ausbilden kann (Weite von Potentialinseln, Tiefe oder Höhe der Potentialtopographie sowie gegenseitige Beeinflussungen von Potentialmulden), erschwert eine theoretische Beschreibung des Streuvorganges. Ferner spielen auch Polarisationsfelder eine große Rolle bei dem Einfluss von Grenzflächenrauigkeiten auf den Ladungsträgertransport. Existieren starke Felder in Richtung der Schichtdicke eines Quantenfilms, so werden die Elektronen und Löcher in die Grenzfläche hineingetrieben (vgl. Abschnitt 2.6) und somit der streuende Einfluss von Potentialfluktuationen entsprechend größer.

Für die theoretische Beschreibung des Transports von Ladungsträgern unter Grenzflächenstreuung in Heterostrukturen gibt es verschiedene Ansätze. Sämtlich führen sie zu einer weitestgehend temperaturunabhängigen Beweglichkeit. An dieser Stelle soll die Beschreibung nach [SAK87] bzw. [GOL88] kurz dargelegt werden.

In diesem Modell werden unendlich hohe Potentialbarrieren für Ladungsträger in einem Quantenfilm angenommen. Die zugehörige Wellenfunktion der in einen solchen zweidimensionalen Film eingebetteten Elektronen ist gegeben durch die Gleichung (2.84).

$$\Psi(\vec{r}, z) = \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{L_w}} \cos\left(\frac{\pi z}{L_w}\right) e^{(i\vec{k}\bullet\vec{r})} \quad (2.84)$$

Wobei gilt: $-\frac{L_w}{2} < z < \frac{L_w}{2}$.

L_w ist die Filmdicke, \vec{k} und \vec{r} sind der zweidimensionale Wellenvektor und Koordinatenvektor entlang der Grenzflächen. Die Quantisierungsenergie E_0 für den Grundzustand eines Elektrons im Quantenfilm ist gegeben durch die Gleichung (2.85) (vgl. auch (2.20)).

$$E_0 = \left(\frac{\hbar^2}{2m^*}\right) \left(\frac{\pi}{L_w}\right)^2 \quad (2.85)$$

\hbar ist wieder die Planck-Konstante $\frac{h}{2\pi}$, m^* die effektive Elektronenmasse im betrachteten Halbleiter.

Da die Grenzflächenrauigkeit dafür sorgt, dass sich die Schichtdicke des Quantenfilms lokal ändert und somit die Quantisierung ebenfalls lokalen Fluktuationen unterliegt, gilt es die Grenzflächenrauigkeit, also die lokal unterschiedliche Schichtdicke $\Delta(r)$ des Quantenfilms, in die Beschreibung der Gleichung (2.85) zu integrieren. Sie ist gegeben durch die partielle Ableitung der Quantisierungsenergie nach der Schichtdicke des Quantenfilms (Gleichung (2.86)).

$$\delta E(\vec{r}) = \frac{\partial E_0}{\partial L_w} \Delta(\vec{r}) = -\frac{\pi^2 \hbar^2}{m^* L_w^3} \Delta(\vec{r}) \quad (2.86)$$

Diese Potentialfluktuationen stellen also die Streuzentren für zweidimensionale Ladungsträgersbewegung dar. Als Maß für die Rauigkeit gilt die Höhe Δ und deren laterale Größe Λ (als gaussche Fluktuation des Grenzflächenpotentials) und wird durch die „Autokorrelationsgleichung“ (2.87) ausgedrückt.

$$\langle \Delta(\vec{r}) \Delta(\vec{r}') \rangle = \Delta^2 \exp\left(-\frac{|\vec{r} - \vec{r}'|^2}{\Lambda^2}\right) \quad (2.87)$$

Die in den spitzen Klammern stehenden Ausdrücke stehen dabei für den Mittelwert des Ensembles von existierenden Fluktuationen im betrachteten Gebiet.

Mit den Gleichungen (2.86) und (2.87) kann das Quadrat des 2D-Matrixstreuelements M^2 angegeben werden (siehe Gleichung (2.88)).

$$M^2 = \frac{\pi^2 \hbar^4 \Delta^2 \Lambda^2}{m^* L_w^6} \exp\left(-\frac{\Lambda^2 q^2}{4}\right) \quad (2.88)$$

Die Größe q steht dabei für $\vec{q} = \vec{k} - \vec{k}'$ und stellt somit den zweidimensionalen Streuvektor (Streuwellenvektor) dar, wobei gilt $q = |\vec{q}|$.

Die inverse Relaxationszeit $\tau(E)$ welche sich für die Grenzflächenrauigkeitsstreuung ergibt ist gegeben durch Gleichung (2.89).

$$\frac{1}{\tau(E)} = \frac{1}{2\hbar\pi^2} \int \frac{M^2}{S(q, t)} (1 - \cos\theta) \delta(E_{\vec{k}'} - E_{\vec{k}}) d^2\vec{k}' \quad (2.89)$$

Die Funktion $S(q, T)$ ist ein Abschirmungsfaktor. Er berücksichtigt die Abschirmung des entstehenden Potentials durch freie Ladungsträger und ist sowohl abhängig vom Betrag des Streuvektors q als auch von der Temperatur. Dies ist sofort einzusehen, da mit variierender Temperatur auch die Dichte freier Ladungsträger variiert. Da im Rahmen dieser Arbeit jedoch bei der Generation der Exzitonen relativ geringe Anregungsdichten gewählt wurden, kann eine Abschirmung des Grenzflächenrauigkeitspotentials durch die erzeugten Überschussladungsträger vernachlässigt werden. Ferner ist die Zahl oder Dichte thermisch erzeugter freier Ladungsträger insbesondere bei tiefen Temperaturen ebenfalls zu vernachlässigen, sodass sich eine weitestgehend temperaturunabhängige Streuzeit (Relaxationszeit) für die Streuung von Exzitonen an der Grenzflächenrauigkeit ergibt. Anders verhält sich dieses bei unipolaren Transportexperimenten, da die hier erzeugten Ladungsträger und die relativ hohe Ladungsträgerdichte das Grenzflächenpotential stark abschirmen können. [HIL89]

Für den Zusammenhang der Beweglichkeit μ ergibt sich entsprechend den Gleichungen (2.84) bis (2.89) und (2.26) die Gleichung (2.91) mit der Relaxationszeit (2.90). Es zeigt sich, wie schon bei der Deformationpotentialstreuung in zweidimensionalen Strukturen, dass die Beweglichkeit umso höher ausfallen kann, je dicker der Quantenfilm ist. Gleichzeitig ist die Streuung jedoch umso effektiver (bedingt also eine geringere Beweglichkeit), je größer die Inseln gleicher Schichtdicke sind und um so höher die Schichtdickenunterschiede ausfallen. Handelt es sich demnach um eine raue Grenzfläche in dem Sinne vieler kleiner Inseln unterschiedlicher Schichtdicke des Quantenfilms, so ist die zu erwartende Beweglichkeit höher, als bei Grenzflächen, die sehr ausgedehnte Inseln aufweisen.

$$\langle \tau \rangle = \frac{\int \tau(E) E \frac{\partial f_0(E)}{\partial E} dE}{\int E \frac{\partial f_0(E)}{\partial E} dE} \quad (2.90)$$

$$\mu = \frac{e}{m^*} \langle \tau \rangle \propto \frac{L_w^6}{\Delta^2 \Lambda^2} g(\Lambda) \quad (2.91)$$

Die Funktion $g(\Lambda)$ in Gleichung (2.91) ist dabei selbst eine Funktion von Δ , N (Dichte freier Ladungsträger) und T . Δ und T sind dabei eng miteinander verknüpft und bringen lediglich über die thermische Energie der Ladungsträger (oder Exzitonen) eine Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit. Dies wird bedingt durch thermische Aktivierung des Transports heraus aus den Lokalisierungen, wie dies auch in der Abbildung 2.13 ersichtlich wird. Hier steigt die Beweglichkeit von Exzitonen in einem Quantenfilm bis zu einer bestimmten Temperatur an und kann als thermische Aktivierung interpretiert werden. Die Temperaturabhängigkeit ist also direkt verbunden mit der konkreten Ausartung der Grenzfläche. Je kleiner die Potentialfluktuationen sind, desto kleiner wird die Abhängigkeit von der Temperatur. Bei perfekt glatten Grenzflächen würde sich also eine Konstante für die Beweglichkeit ergeben, da die Funktion $g(\Lambda)$ selbst eine Konstante würde. Dieser Umstand wird nachstehend noch diskutiert. Die Funktion $f_0(E)$ ist die Fermi-Dirac-Verteilung.

Wie aus der Gleichung (2.91) ersichtlich wird, ist die Beweglichkeit unter Grenzflächenrauigkeitsstreuung proportional zu $\frac{L_w^6}{\Delta^2 \Lambda^2}$ und deckt sich mit den experimentellen Daten, die von [SAK87] angeführt werden. Insbesondere entscheidend sind also für die erreichbare Beweglichkeit von Ladungsträgern (und Exzitonen) unter Grenzflächenrauigkeitsstreuung sowohl die Dicke der Schichten, in denen diese sich bewegen, sowie die Höhe der Potentialfluktuationen und die Ausdehnung der sich ausbildenden Inseln unterschiedlicher Schichtdicke des Quantenfilms.

In [SIN03] findet sich eine Abschätzung für die Beweglichkeit von Ladungsträgern in FET-Strukturen im leitenden Kanal. Auch hier wird explizit keine Temperaturabhängigkeit gefunden und lediglich eine Proportionalität zur Ladungsträgerdichte genannt. Ferner ist auch hier die explizite Rauigkeit der Grenzfläche limitierender Faktor für die Beweglichkeit der Ladungsträger.

Einen experimentellen Ansatz wählte [HIL90]. Hier wurde unter kontrollierten Bedingungen die Grenzflächenrauigkeit zweier ansonsten identischer Quantenfilme aus GaAs eingestellt. Eine der Proben wurde ohne Wachstumsunterbrechung gezüchtet und enthält relativ raue Grenzflächen, bei der zweiten Probe wurden zu den jeweiligen Schichtwechseln Wachstumspausen eingefügt, um eine Reorganisation der Anordnung der Atome an der jeweiligen Oberfläche zu erreichen und somit die Rauigkeit zu reduzieren. Das Ergebnis sind somit zwei Proben mit unterschiedlicher Grenzflächenrauigkeit, ansonsten jedoch vergleichbaren Charakteristika. Anhand dieser 2D-Strukturen aus GaAs / Al_{0,37}Ga_{0,63}As wurde der Einfluss der Grenzflächenrauigkeit auf die Beweglichkeit von Exzitonen untersucht und verglichen.

Die Ergebnisse zeigen einen deutlichen Einfluss der rauerer Grenzfläche bei tiefen Temperaturen ($< 30 K$). Die Beweglichkeit nimmt mit fallender Temperatur stark ab, was durch Lokalisierungseffekte zu erklären ist, bei denen die Exzitonen in Potentialmulden, hervorgerufen durch die Grenzflächenrauigkeiten, ausfrieren. Dies wurde unter anderem auch von Bacher [BAC92]

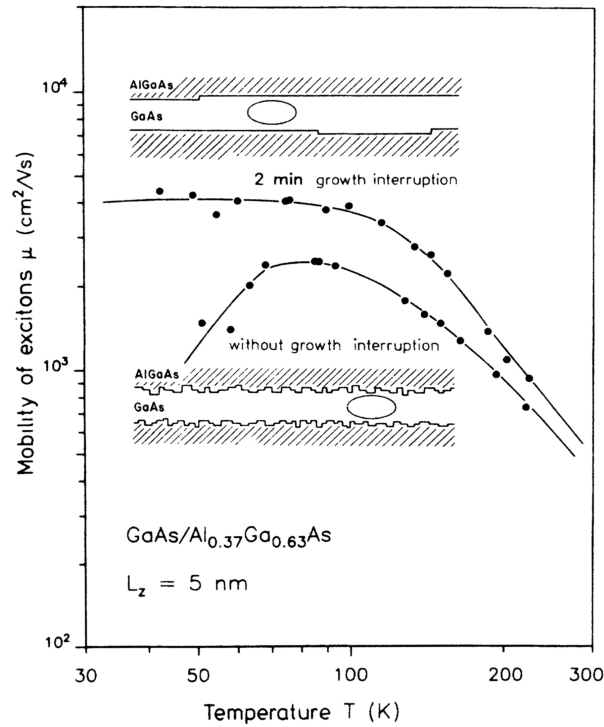


Abbildung 2.13: Exzitenenbeweglichkeit in Abhängigkeit von der Temperatur in einem wachstumsunterbrochenen (obere Darstellung) und nichtwachstumsunterbrochenen (untere Darstellung) Quantenfilm. Zusätzlich: modellhafte Darstellung der zugehörigen unterschiedlichen Grenzflächenrauigkeiten und schematische Ausdehnung eines Exzitons im 5 nm dicken Quantenwell. [HIL90]

anhand von kontrolliert unterschiedlich großen monolagigen Inseln dünner $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{P}/\text{InP}$ Quantenfilmen untersucht und durch theoretische Ableitungen gestützt. Hier wird auch herausgestellt, dass es keinen Unterschied macht, ob der ambipolare Transport beschrieben wird, oder der von Exzitenen. Beide Beschreibungen, so dessen Aussagen, liefert das gleiche Transportverhalten. Zum gleichen Ergebnis kommt auch [HIL89] und wurde bereits im Abschnitt 2.7 ausführlich dargelegt.

Bei höheren Temperaturen hat die Rauigkeit der Grenzflächen einen lediglich untergeordneten Einfluss, da durch eine höhere thermische Energie der Ladungsträger bzw. Exzitenen eine Überwindung der Potentialmulden ermöglicht wird. Der gefundene Temperaturbereich, in dem eine Lokalisierung stattfindet, liegt sowohl bei [HIL90] als auch bei [BAC92] bei etwa $T < 60\text{ K}$. Entsprechend der thermischen Energie steigt der Anteil Exzitenen mit steigender Temperatur weiter an, die aus den Potentialfluktuationen entkommen können. Hierin liegt der Anstieg der Beweglichkeit bei tiefen Temperaturen bei Anstieg der Proben temperatur begründet (vgl. Abbildung 2.13). Die konstante Beweglichkeit für die Exzitenen im Bereich kleiner Temperaturen in der Probe mit den glatten Grenzflächen liegt hingegen darin begründet, dass die hier vorhandenen Potentialfluktuationen so gering ausfallen, dass im betrachteten Temperaturintervall noch kein Ausfrieren, keine Lokalisierung zu beobachten ist. Dennoch finden Streueignisse zwischen den Exzitenen und den Potentialfluktuationen an den Grenzflächen statt. Diese limitieren die maximale Beweglichkeit der Exzitenen in diesem Bereich tiefer Temperaturen. Mit steigender Temperatur ($T > 60\text{ K}$) gleichen sich die Beweglichkeiten der Exzitenen in beiden Proben wieder an. Dies liegt insbesondere an den mit

zunehmender Temperatur dominanten Streuungen an Phononen, wie sie bereits im Abschnitt 2.8.1 beschrieben wurden. Diese Tatsache wurde experimentell auch unter anderem von Stanley et. al [STA91] und Pfeiffer [PFE89] anhand des Vergleiches von Ladungsträgertransport in GaAs/AlGaAs Quantengraben und GaAs Bulk-Material gefunden.

Die Untersuchungen zur Grenzflächenrauigkeitsstreuung sollen an Exzitonen stattfinden, weil die langreichweitige und vergleichsweise starke Coulombwechselwirkung, welcher Ladungsträger ausgesetzt sind, die vergleichsweise schwache Wechselwirkung mit kleineren Potentialschwankungen an einer Grenzfläche überlagert und sogar dominiert. Exzitonen hingegen wechselwirken auf Grund ihrer elektrischen Neutralität lediglich mit sehr kurzreichweitigen Potentialfluktuationen beziehungsweise Feldern, die im Bereich ihrer eigenen Ausdehnung liegen. Die sehr effektive Streuung an ionisierten Störstellen sollte somit unterbunden werden und der Transport unter Streuung an Grenzflächenrauigkeiten deutlicher hervortreten. Das heißt, dass Exzitonen eine hervorragend geeignete Sonde für gerade solche Streumechanismen sein sollten, in denen auf kleinen Längenskalen Potentialfluktuationen existieren. Diese Vermutung wird zum Beispiel durch die Arbeiten und Untersuchungen von [HIL89] und [BAC92] bestätigt.

Es ist grundsätzlich auch möglich den Ladungsträgertransport unter Grenzflächenrauigkeitsstreuung zu untersuchen, dies allerdings lediglich unter bestimmten Voraussetzungen, welche dann jedoch vergleichbare Ergebnisse liefern. In [BOE202] wird in diesem Zusammenhang auf Arbeiten von [STA91] und [PFE89] hingewiesen. Hier wurden zum einen der Ladungsträgertransport in einkristallinem GaAs [STA91] als auch in einem GaAs/AlGaAs Quantenfilm [PFE89] untersucht. Das Quantenfilmmaterial wurde qualitativ rein gewachsen, d.h. die Anzahl ionisierbarer Störstellen ist gegenüber „herkömmlichen“ Materialzüchtungen stark reduziert. Die Ladungsträger im Film stammen vornehmlich von ionisierten Störstellen des Barrierenmaterials, welches gezielt dotiert wurde. In einer relativ großen Entfernung zum Film wurde kontrolliert eine höhere Zahl von Dotanten mittels „Remote Doping“ eingebracht. Durch die große Entfernung (der sogenannten „Spacer“ Dicke) der ionisierten Störstellen zu den Ladungsträgern im Film wird die langreichweitige Coulombwechselwirkung (vgl. Abschnitt 2.8.2) reduziert bzw. unterdrückt. Auf diese Weise kann auch durch elektrische Transportmessungen die Grenzflächenrauigkeitsstreuung untersucht werden. Diese Voraussetzungen sind jedoch nicht für alle Materialien oder Bauelemente erreichbar bzw. zielführend, sodass sich im Allgemeinen die Grenzflächenrauigkeitsstreuung in den meisten Fällen durch elektrische Messungen des Zugangs verwehrt. Aus diesem Grund wird, wie oben bereits dargelegt, der Transport von Exzitonen untersucht, welche, wie die hier bereits aufgezeigten Beispiele, als auch die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen, aufgrund ihrer elektrischen Neutralität nicht der ionisierten Störstellenstreuung unterliegen.

In Ergänzung zum oben gezeigten „Schema“ der Grenzflächenbeschaffenheit (Abb. 2.13) und in Übereinstimmung mit Gleichung (2.91) zeigt [JAH96] schematisch die sich einstellenden Lokalisierungsenergien für Exzitonen in den sich ausbildenden Potentialminima, erzeugt durch die Grenzflächenrauigkeit (siehe Abbildung 2.14).

Hier wird deutlich, dass bei einer Ausdehnung von Potentialminima kleiner als der Exzitonbohrradius die resultierende Lokalisierungsenergie vergleichsweise klein ausfällt und somit mit bereits geringer kinetischer Energie diese überwunden werden können. Erreicht die Ausdehnung dieser Potentialfluktuationen (oder Inseln gleicher Schichtdicke) die Ausdehnung des Exzitons

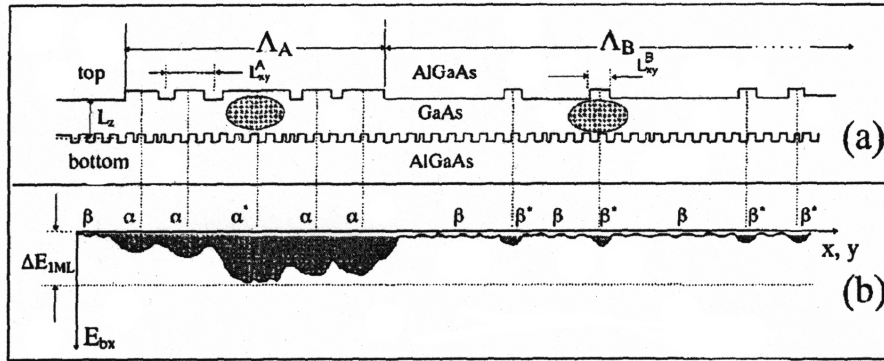


Abbildung 2.14: Schematische Darstellung der oberen und unteren Grenzfläche zweier unterschiedlich rauher Grenzflächen eines Quantenfilms mit einem darin enthaltenen Exziton (a) und darunter der resultierenden Lokalisierungsenergie für die Exzitonen in den sich ausbildenden Potentialfluktuationen (b). [JAH96]

oder reicht darüber hinaus, so ergeben sich wesentlich attraktivere Potentiale, so dass ein effektivere Streuung stattfindet. Grenzflächen, die in diesem Sinne also weitestgehend glatt sind und nur wenige Schichtdickenfluktuationen aufweisen, werden einen größeren Einfluss der Grenzflächenrauigkeitsstreuung aufweisen, als jene, die eine sehr raue Ober- bzw. Grenzflächenbeschaffenheit besitzen. Grund ist auch, dass die sich innerhalb kurzer Distanzen häufig wechselnden Potentiale od. Schichtdicken eine gegenseitige Abschirmung verursachen. Somit werden die Höhen der einzelnen Potentialminima- und maxima, d.h. in Konsequenz die Lokalisierungsenergien reduziert.

3 Experimentelle Grundlagen

In den folgenden Abschnitten werden die experimentellen Grundlagen der verwendeten Untersuchungs- und Prozessierungsmethoden erläutert. So werden das bildgebende Instrument FE-REM (Feldeffekt-Rasterelektronenmikroskop) und insbesondere die Kathodolumineszenzmikroskopie (KL), mittels der die Transportuntersuchungen durchgeführt wurden, erläutert. Letzteres wurde in einem Rasterelektronenmikroskop verwirklicht und erlaubt es simultan sowohl Ortsinformationen als auch Informationen zur Lumineszenz (spektral und/oder zeitlich) zu erfassen. Dazu wird erläutert, auf welche Weise die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben für die Transportuntersuchungen präpariert wurden.

3.1 FEREM

Das Feldeffektrasterelektronenmikroskop (FEREM), ein Hitachi Modell S-4800, wurde innerhalb dieser Arbeit als bildgebendes Verfahren zur Voruntersuchung eingesetzt¹. Die durch Feldeffekt aus der Kathode herausgelösten Elektronen (Primärelektronen) werden mit einer Spannung von ca. $V_{Acc}=15$ kV beschleunigt und erzeugen beim Auftreffen auf das bzw. in das beschossene Material oberflächennah Sekundärelektronen. Diese besitzen zumeist eine relativ geringe kinetische Energie und können aus dem evakuierten Probenraum mit einer geringen Spannung „abgesaugt“ werden. Über einen Szintillator werden diese Sekundärelektronen detektiert und entsprechend der Position des Elektronenstrahls einem Ort auf der betrachteten Fläche zugeordnet.

Je nach Art des Materials und insbesondere der Oberflächenbeschaffenheit, das heißt insbesondere dem Winkel, den die betrachtete Oberfläche zum einfallenden Elektronenstrahl einnimmt, werden unterschiedlich viele Sekundärelektronen erzeugt und somit detektiert. Auf diese Weise entsteht ein Hell-Dunkel-Kontrast von Sekundärelektronen, welcher die Oberflächenmorphologie des betrachteten Ausschnitts widerspiegelt. Dabei werden an Kanten aufgrund der großen wirksamen Oberfläche (z.B. zwei Oberflächen anstelle einer in der Ebene) mehr Sekundärelektronen freigesetzt, als in einer Ebene, sodass Spitzen und Kanten heller erscheinen. Dieser „Kanteneffekt“ erzeugt also ein ähnliches Kontrastverhalten, wie Licht, das auf Kanten trifft. Aus diesem Grund können in gewissen Grenzen auch dreidimensionale Gebilde in SE-Kontrastbildern wahrgenommen werden.

Aufgrund der hohen Ortsauflösung, die mit „kalt emittierenden“ Kathoden in diesem System erreicht werden, können starke Vergrößerungen realisiert werden. Die Möglichkeit zur hoch ortsaufgelösten Bildgebung ist für die Transportuntersuchungen von großer Bedeutung, da hiermit im Vorfeld der optischen Untersuchungen der Erfolg der durchgeführten Prozessierungen überprüft werden konnte. So konnten zudem diverse Fragen zum Verhalten der Lumineszenzintensität im Bereich von Kanten der aufgebrauchten Maskierungen erst durch dieses Verfahren

¹Sämtliche im Rahmen dieser Arbeit entstandenen Sekundärelektronenkontrastbilder, die mit dem FE-REM aufgenommen wurden, wurden von Hrn. Dr. Thomas Hempel erstellt.

erklärt werden, da mit ihr sowohl die Ausdehnung, als auch teilweise die Form dieser Kanten, welche im Bereich weniger 10 nm bis 100 nm liegen, untersucht werden konnte.

Das Prinzip, welches hinter diesem Rasterelektronenmikroskop steckt, unterscheidet sich von der unter 3.2 beschriebenen Funktion des REM dabei nur in wenigen Punkten und so soll im Wesentlichen auf dieses Kapitel verwiesen werden. Die im FEREM eingesetzte Kathode emittiert die Elektronen jedoch nicht thermisch und damit mit einer großen Bandbreite unterschiedlicher kinetischer Energie, sondern über das starke elektrische Feld an einer feinen Spitze aus einer „kalten“ Kathode, was eine gute Monochromatie der herausgelösten Elektronen zur Folge hat. Das heißt, die so aus der Kathode emittierten Elektronen besitzen eine wesentlich schmalere Verteilung kinetischer Energie und können infolge dessen wesentlich besser durch das Linsensystem (Elektromagneten) fokussiert werden, so dass die Ortsauflösung dramatisch steigt.

Die limitierende Auflösung wird dabei im wesentlichen nicht durch die Fokussierbarkeit der Elektronen gegeben, sondern durch das Wechselwirkungsvolumen der Elektronen im Probenmaterial. Dieses Volumen ist entscheidend für die Größe der Fläche (A), aus der Sekundärelektronen für jeden Ort ($x \pm dx, y \pm dy$), in den der Elektronenstrahl trifft, herausgelöst werden. Auf diesen Zusammenhang wird in Abschnitt 4.1.1 im Detail eingegangen.

Der Grund dafür, dass dieses System nicht direkt zur (Kathodo-) Lumineszenzuntersuchung eingesetzt wird, ist die wesentlich geringere Strahlstromstärke. Die in einer Zeiteinheit erhältlichen Elektronen aus der Kathode ist wesentlich geringer als jene eines thermischen Emitters, so dass die erhältliche Lumineszenzintensität aufgrund der sehr geringen Anregungsdichten extrem gering ausfallen würde und sich somit Schwierigkeiten bei der Detektion der Lumineszenz ergeben.

3.2 Orts-, zeit- und spektralaufgelöste Kathodolumineszenz

Als Kathodolumineszenz bezeichnet man jene Lumineszenz, welche als Folge von mit Elektronen hoher Energie (einige hundert eV bis wenige zehn keV) beschossenen Materialien entsteht. Kombiniert mit einem Rasterelektronenmikroskop und Monochromatoreinrichtung mit entsprechenden Detektionssystemen erlaubt diese Methodik die Verbindung von örtlichen mit spektralen (sowie in entsprechender Konfiguration zeitlichen) Informationen. Wird neben dem Lumineszenzsignal das Sekundärelektronensignal mit erfasst, so kann neben den rein örtlichen und spektralen Informationen der Lumineszenz eine Korrelation auch mit der Morphologie des untersuchten Probenmaterials vorgenommen werden.

Die Ortsauflösung des verwendeten Rasterelektronenmikroskops, welche sich im Bereich um wenige zehn nm bewegt, wird neben der Fokussierbarkeit des Elektronenstrahls im wesentlichen beschränkt durch das Wechselwirkungs- oder Bethevolumen. Gleichung (4.1) gibt die maximale Reichweite von Primärelektronen in einem Festkörper unter Berücksichtigung der Diffusion der Elektronen an und gibt damit gleichzeitig eine untere Grenze für die Auflösung des Elektronenmikroskopes. Eine feste Auflösungsgrenze, wie sie für Lichtmikroskope angegeben werden kann, ist dieser Gleichung zufolge also nicht möglich, da die Auflösung nicht nur durch die Energie der Elektronen (bei Lichtmikroskopen der Energie des verwendeten Lichts), sondern auch vom betrachteten Material definiert wird. Einen anderen Ansatz zur Bestimmung der Auflösung eines Elektronenmikroskops gibt [SCH07]. Hier wird das Anregungsvolumen ohne Diffusion betrachtet. Dieser Ansatz findet in der vorliegenden Arbeit jedoch keine weitere Berücksichtigung. Auch, weil für die Weite der Exzitonengenerationszone die Diffusion der Primärelektronen durchaus eine Rolle spielen kann.

Die Auflösung des verwendeten Monochromators (*Spex 270M*) zur spektralen Zerlegung der erzeugten Lumineszenz wird bestimmt durch folgende Größen: das verwendete Reflektionsgitter (austauschbar), welches mit verschiedenen Strichdichten als holographische Ausführung erhältlich ist, durch die gewählte Öffnung des Monochromatoreintrittspaltes, sowie seiner Fokuslänge. Bezüglich der Fokuslänge ist anzumerken, dass es sich bei dem Aufbauprinzip des Monochromators um eine „Czerny-Turner“ Anordnung handelt.

Der Aufbau der Kathodolumineszenzapparatur ist schematisch in Abbildung 3.1 dargestellt. Das verwendete REM ist ein modifiziertes *Jeol JSM6400*. Hierin werden Elektronen aus einer LaB₆-Kathode thermisch emittiert und durch ein elektrisches Feld beschleunigt. Die Beschleunigungsspannung kann von $V_{Acc}=0,2$ kV bis $V_{Acc}=40$ kV variiert werden. Durch ein Linsen- und Blendensystem wird der Elektronenstrahl auf eine im Probenraum befindliche Probe fokussiert, welche auf einem Probenhalter aufgebracht wird und sich wahlweise unter 45° oder 90° gegenüber dem Elektronenstrahl verkippt befindet. Der Halter (Kühlfinger) befindet sich in thermischem Kontakt zu einem He-Durchflusskryostaten (Firma Cryovac). Ferner ist unterhalb des Kühlfingers ein Heizdraht angebracht, welcher durch einen externen Temperaturcontroller angesteuert werden kann. Auf diese Weise sind Untersuchungen im Temperaturbereich von ca. $T=4$ K bis ca. $T=300$ K möglich.

Infolge der Wechselwirkungsprozesse zwischen Primärelektronen und Halbleitermaterial - das heißt inelastischen Stößen zwischen Primärelektronen und Valenzelektronen der Kristallgitter-

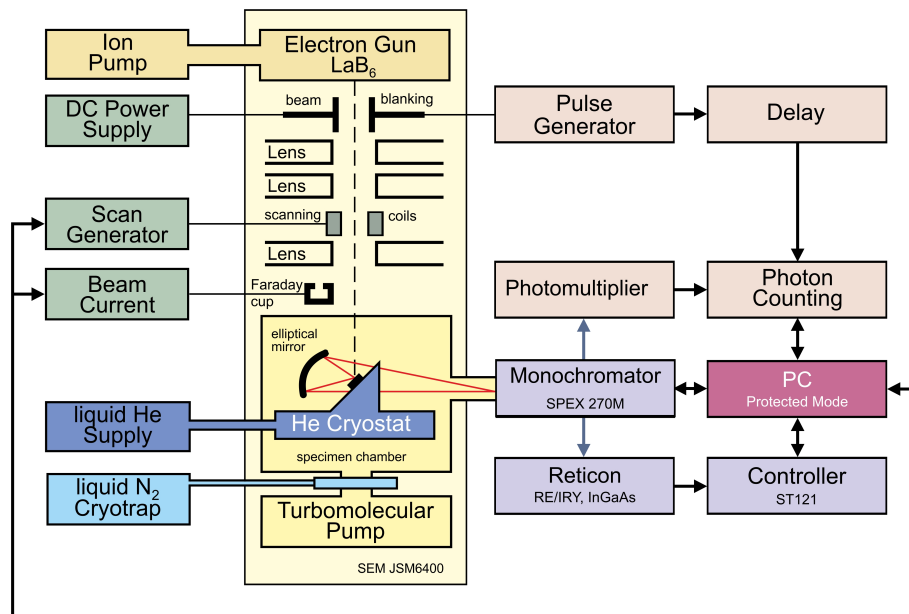


Abbildung 3.1: Blockdiagramm zur Funktion des verwendeten Kathodolumineszenzmessplatzes nach [BER06].

ratome - entstehen Überschussladungsträger und deren Produkte wie zum Beispiel Exzitonen. Diese emittieren bei ihrer Rekombination Lumineszenz. Diese wird über einen elliptischen Spiegel im Probenraum in den Eintrittspalt des Monochromators fokussiert. Die Probe befindet sich dabei in einem der Brennpunkte des elliptischen Spiegels, während der Eintrittspalt des Monochromators sich im zweiten Brennpunkt befindet. In dem Monochromator wird das Licht spektral zerlegt und kann mittels einem Diodenarray (Retikon) oder wahlweise über ein MCP-PMT (Micro Channel Plate - Photomultiplier) detektiert werden. Die Wahl des Detektors, welche beide zeitgleich an verschiedenen Seiten des Monochromators installiert sind, geschieht dabei über einen klappbaren Spiegel innerhalb des Monochromatorgehäuses (an letzter Position vor Austrittspalt). Das Retikon findet Anwendung für orts-spektralaufgelöste Untersuchungen. Das MCP-PMT wird bei zeitaufgelösten Untersuchungen eingesetzt.

Orts- und spektralaufgelöste Kathodolumineszenz

Bei den orts- und spektralaufgelösten Kathodolumineszenzuntersuchungen wird der Elektronenstrahl über einen gewählten Probenausschnitt rasterförmig bewegt. Je nach gewählter Vergrößerungsstufe wird dieses abgerasterte Gebiet größer und damit das Raster bei fester Bildpunktzahl gröber, oder kleiner und damit das Raster feiner. Die Steuerung wird dabei von einem entsprechenden Steuerrechner übernommen, die Positionierung des Elektronenstrahls geschieht über entsprechend angelegte elektrische Spannungen/Ströme an Spulen im Mikroskop (siehe Abbildung 3.1 - Scanning Coils). Zur Bildgebung werden Sekundärelektronen mit einer Elektronenfalle (Gitter mit angelegter Spannung zum „absaugen der Elektronen“) und einem Szintillator detektiert. Die zu jedem Punkt mittels Steuerrechner aufgenommenen Sekundärelektronenanzahlen werden später zu einem Sekundärelektronenkontrastbild (SE-Bild) zusammengesetzt und geben so die Oberflächenmorphologie der betrachteten Probe im gewählten Ausschnitt wieder.

Wie oben bereits beschrieben, wird die erzeugte Lumineszenz im Monochromator spektral zerlegt und von einem Retikon detektiert. Dieses ist derart gestaltet, dass die Dioden in einer Zeile angeordnet sind, auf welche die spektral zerlegte Lumineszenz abgebildet wird. Das vom Retikon aufgenommene Signal/ Spektrum aus 512 Kanälen wird mit einem Rechner ausgelesen und zusammen mit dem SE-Bild abgespeichert. Auf diese Weise können die Position auf der Probe und die erhaltene spektrale Information der Lumineszenz sowie der Lumineszenzintensität zu jeder detektierten Wellenlänge miteinander korreliert werden. Die Funktionsweise der verwendeten Kathodolumineszenzmikroskopie-Einrichtung wird unter anderem in [CHR91] detailliert dargestellt.

Die Detektion des Lumineszenzsignals erfolgt integral von der gesamten Probenoberfläche, gewichtet durch die Position zum Brennpunkt des elliptischen Spiegels. Die Ortsinformationen erhält man lediglich durch die Kenntnis der Position der Anregung, also der Elektronenpenetration, zum Zeitpunkt der Lumineszenzentstehung/ -detektion.

Insgesamt gibt es drei Modi, in denen der Elektronenstrahl geführt werden kann.

1. Spotmode. Hierbei wird der Elektronenstrahl ortsfest gehalten. Die Ablenkspulen werden also nicht bestromt.
2. Linescan. Hierbei führt man den Elektronenstrahl entlang einer Linie
3. Scan. Hier wird der Elektronenstrahl sowohl in der x- als auch der y-Richtung zeilenweise und Punkt für Punkt geführt. Dabei wird also über ein zweidimensionales Gebiet gerastert.

Im Falle einer abgerasterten Fläche besteht der gesamte Datensatz also für jeden einzelnen Punkt aus einem vierdimensionalen Datenarray. Zwei Ortsangaben (x,y), die Angabe der Wellenlänge λ der detektierten Lumineszenz und die zugehörige Intensität (I) werden simultan erfasst und in einer einzelnen Datei abgelegt. Die Auswertung dieser Datensätze erfolgt weitestgehend über eine Bildverarbeitung einer nicht-kommerziellen, in der Abteilung für Festkörperphysik der Universität Magdeburg, entstandenen Software. Notwendige Datensätze können anschließend zur weiteren Analyse, insbesondere zum Anwenden von mathematischen/theoretischen Modellen auf die Messdaten, als ASCII-Datei exportiert und somit in anderen Programmen, plattformunabhängig weiterverarbeitet werden.

Zeitaufgelöste Kathodolumineszenz

Von großer Wichtigkeit für die optischen Transportuntersuchungen sind transiente Lumineszenzuntersuchungen. Für diese zeitaufgelösten Untersuchungen wird ein MCP-PMT mit entsprechender Elektronik (Zählkette) eingesetzt, so dass als Funktion der Zeit Photonenergebnisse (nach dessen Generation) aufgenommen werden können. Die verwendete Methode wird unter anderem ausführlich beschrieben von [BER99].

Anders als bei den oben besprochenen orts aufgelösten Untersuchungen erfolgt die Anregung/ Ladungsträgergeneration jedoch gepulst. Das heißt, dass eine sogenannte „Beam-Blanking-Einheit“ (dem Prinzip Kondensatorplatten folgend) in den Elektronenstrahlengang direkt hinter der Kathode gebracht wird. An diese werden von einem Pulsgenerator Spannungspulse angelegt. Dies geschieht derart, dass der Elektronenstrahl für relativ lange Zeit dunkelgetastet ist und für kurze Zeit ungestört auf die Probe gelangt. Das bedeutet, dass ein langanhaltender Spannungspuls an der Beam-Blanking-Einheit den Elektronenstrahl aus dem Strahlengang zur Probe auslenkt, wohingegen eine kurze Dauer nicht angelegter Spannung den Elektronenstrahl ungehindert zur Probe durchdringen lässt.

Eine hohe Zeitauflösung wird unter anderem durch die schnelle Schaltbarkeit der Beam-Blanking-Einheit sowie steile Flanken der Spannungspulse vom Pulsgenerator garantiert, so dass der Elektronenstrahl instantan hell-/ dunkelgetastet werden kann. Die mit dem vorhandenen System erzielbare zeitliche Auflösung beträgt ca. 35 ps und wird limitiert durch die Schnelligkeit der Beam-Blanking-Einheit. Der verwendete Pulsgenerator (Firma AV-Tech) stellt Ein- und Ausschaltzeiten von ca. 16 ps zur Verfügung, die Wiederholrate kann von 250 MHz bis 1 GHz variiert werden. Gerade die geringen Wiederholraten garantieren eine ausreichende Dauer in welcher der Elektronenstrahl dunkelgetastet ist, damit die Probe vollständig in ihr thermodynamisches Gleichgewicht zurückkehren kann. Dies verhindert eine Akkumulation von noch nicht vollständig abgeklungenen Rekombinationsprozessen über mehrere Anregungszyklen hinweg, welche sich über die eigentlich zu beobachtenden Prozesse legen würden.

Die Abbildung 3.2 zeigt, wie sich das Lumineszenzsignal in Abhängigkeit von der Zeit über einen solchen Messzyklus entwickelt. In diesem Beispiel wird vom Pulsgenerator 12 ns lang keine Spannung an die Beam-Blanking-Einheit angelegt. Der Elektronenstrahl des Mikroskops kann ungehindert auf die Probe gelangen und dort Überschussladungsträger generieren. Innerhalb dieser Zeitspanne steigt die Lumineszenzintensität an und es wird ein Quasigleichgewicht erreicht, also eine gleichgroße Generations- und Rekombinationsrate, wie an dem Plateau der KL-Intensität in diesem Zeitraum erkennbar ist (vgl. auch die Diskussion zur Rekombinationskinetik Abschnitt 2.5). Nach Ablauf der 12 ns wird der Elektronenstrahl instantan dunkelgetastet, so dass keine weiteren Ladungsträgerpaare mehr durch Elektronenbeschuss generiert werden können. Die betrachtete Probe bzw. die Überschussladungsträgerkonzentration strebt wieder in ihr thermodynamisches Gleichgewicht, die Lumineszenzintensität nimmt ab.

Anders als bei der Verwendung des Retikons bei dem orts- und spektralaufgelösten Messverfahren ist mit dem MCP-PMT eine zeitgleiche Aufnahme der spektralen Information nicht möglich, da keine Unterscheidung des Ereignisortes auf der Detektorfläche bei Erfassung eines Photonenergebnisses erfolgt. Das heißt, dass im Rahmen der spektralen Auflösung des Monochromators ein Wellenlängenbereich $\lambda \pm d\lambda$ der Lumineszenz der Probe auf den Eintrittsspalt

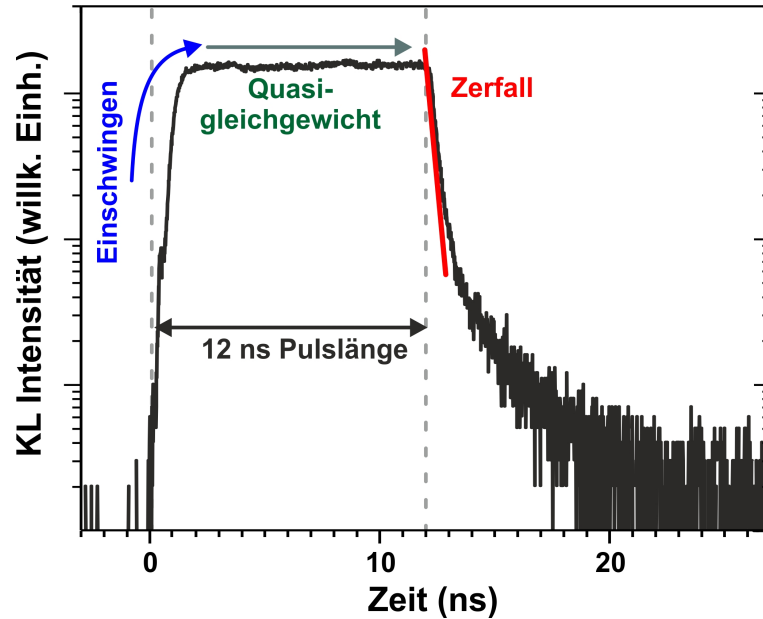


Abbildung 3.2: Beispiel einer KL-Transiente. Bei $t = 0 \text{ ns}$: Einschalten des Elektronenstrahls. Innerhalb $\Delta t = 12 \text{ ns}$: Erreichen eines Quasigleichgewichts von e-h-Paar Generation und Rekombination. Bei $t = 12 \text{ ns}$ Abschalten des Elektronenstrahls und Abnahme der Lumineszenzintensität infolge der e-h-Paar Rekombination.

des MCP abgebildet wird. Soll der Zerfall der Lumineszenz unterschiedlicher Wellenlängen beobachtet werden, muss für jede Wellenlänge gesondert eine Transiente aufgenommen werden und dazu das eingesetzte Gitter im Monochromator entsprechend seiner Dispersion nachgeführt werden.

Die Funktionsweise der zeitaufgelösten Kathodolumineszenzuntersuchungen ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Der vom Pulsgenerator erzeugte Spannungspuls wird zum einen an die Beam Blanking Einheit gelegt und „schaltet“ somit den Elektronenstrahl ein und aus, zum anderen ist er gleichzeitig ein Triggerpuls (über einen Leading Edge Timing Discriminator pulshöhen- normter Puls), der über einen 1:10 Spannungsteiler abgegriffen wird. Durch das Abgreifen vom selben Puls ist dieser Triggerpuls zeitlich identisch mit dem Schalten des Elektronenstrahls im Mikroskop. Der Triggerpuls wird über ein Verzögerungsglied an den Zeit-Pulshöhen-Konverter (TAC) weitergegeben und liefert dort das Stopp-Signal. Das Start-Signal für den TAC liefert das Photonendetektionssystem bestehend aus MCP-PMT, Verstärker und einem Constant-Fraction-Discriminator (CFD), welcher so eingestellt ist, dass er maximal viele Ereignisse erfasst, irrelevante, seltene Ereignisse jedoch unterdrückt. Der von ihm weitergereichte Puls spiegelt den Zeitpunkt eines eintreffenden Photons wider. Der Puls, geformt vom CFD, liefert also nur dann ein Start-Signal an den TAC, wenn tatsächlich ein Photonenereignis eingetreten ist.

Der TAC erzeugt so für jedes detektierte Photon einen Puls dessen Höhe ein Maß für die Zeit zwischen Stopp- und Start-Signal darstellt. Mit einem nachgeschalteten Multi Channel Buffer (MCB) wird jeder Pulshöhe eine definierte Zeit ab Start zugeordnet (z.B. in 1024 Kanäle geteilt). Durch eine Vielzahl dieser Durchläufe wird statistisch erfasst, zu welcher Zeit wieviele Ereignisse stattgefunden haben, also wie hoch die Intensität der detektierten Lumineszenz zu jedem

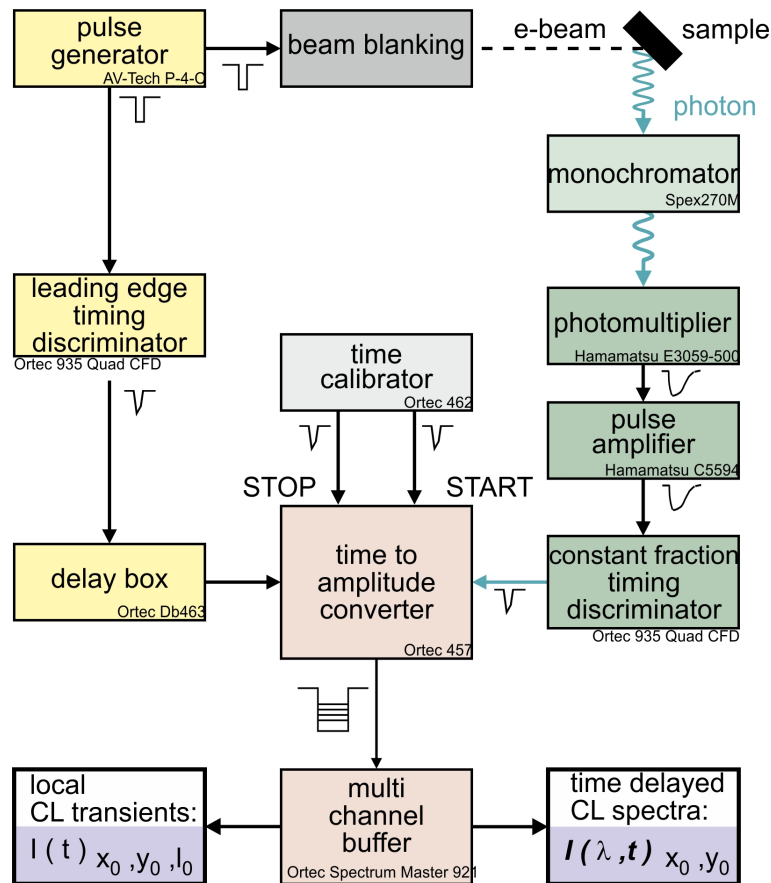


Abbildung 3.3: Blockdiagramm zur Funktion der verwendeten Zählkette für zeitaufgelöste Untersuchungen mit dem oben beschriebenen Kathodolumineszenzmessplatz nach [BER06].

betrachteten Zeitpunkt des beobachteten Zeitfensters ist. Mit dem MCB wird diese statistische Verteilung der Pulshöhen in die vorgegebene Zahl von Zeitfenstern erfasst. Das Ergebnis dieser Verteilung wird in einer Transiente, wie sie in Abbildung 3.2 dargestellt ist, visualisiert.

Die Zeitachse erhält man aus einer Kalibrierung. Mit einem „Time Calibrator“ (TC) wird in definierten zeitlichen Abständen ein Puls ausgegeben. Durch die Verzögerung des Pulses und des Originalpulses dieses Gerätes wird sowohl der Start- als auch Stoppeingang des TAC versorgt und die Pulshöhenverteilung wieder über das MCB erfasst. Die verwendeten Einstellungen und Geräte sind dieselben, wie bei der Messung. Durch die Kenntnis der Pulsabstände durch den TC kann so über den Abstand (Anzahl Kanäle) der detektierten Ereignisse (Pulse vom TC) auf die dazwischenliegende Dauer geschlossen werden.

3.3 Prozessierung der verwendeten Titan-Maskierungen

Auf Grund der Tatsache, dass mit dem verwendeten Messaufbau die Lumineszenz einer Probe nicht lokal, sondern von der gesamten Probenoberfläche detektiert wird, dafür die Anregung jedoch stark lokalisiert stattfindet, sind für die Transportuntersuchungen besondere Strukturierungen bzw. Maskierungen erforderlich. In diesem Abschnitt wird erläutert, wie die entsprechende Präparation der Proben erfolgt. Die vorgestellten Varianten der Maskierung werden im Methodik-Kapitel 4 detailliert in Bezug auf ihre Verwendung besprochen.

Wie noch zu sehen sein wird, eignet sich Titan hervorragend für die Verwendung als Maskierungsmaterial. Die für die Untersuchung nötigen Titanschichten wurden mittels Elektronenstrahlverdampfung oder thermischer Verdampfung aufgebracht. Im ersten Verfahren wird hierzu in einem Tiegel befindliches Titan mittels Elektronenstrahl erhitzt/verdampft und so in einer Vakuumkammer die in einem großen Abstand (>30 cm) befindliche Probe beschichtet. Der große Abstand von Tiegeltiegel zum zu bedampfenden Material stellt sicher, dass die Titanatome möglichst zueinander parallel und senkrecht zur Oberfläche des Probenmaterials auftreffen. Auf diese Weise erhält man einen bestmöglichen Schattenwurf von auf der Probenoberfläche aufgetragenen Schattenmasken und homogene Schichtdicken. Das zuletzt genannte Verfahren unterscheidet sich lediglich in der Art der Verdampfung des Titans. Anstelle eines Elektronenstrahls, welcher in den Schmelztiegel gerichtet wird, wird der Tiegel selbst mit einem Heizdraht erhitzt und so das darin befindliche Titan verdampft. Unter Umständen enthalten die verdampfenden Titanatome hier eine geringere kinetische Energie, so dass eine geringere Anhaftung an der Probenoberfläche auftreten kann. Dieser Umstand jedoch konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht beobachtet werden und wurde daher nicht weiter betrachtet.

Wie bereits angedeutet, wurden mehrere Varianten der Maskierung für die Transportuntersuchungen verwendet. Dabei handelt es sich um zwei Arten, die im Folgenden vorgestellt werden sollen.

Rechteckige Titanmaskierungen

Die rechteckigen Titanmaskierungen mit einer definierten Schichtdicke von 160 nm wurden im sogenannten Lift-Off Prozess hergestellt. Die Schichtdicke erweist sich als bester Kompromiss zur Erfüllung zweier Forderungen an die Eigenschaften der Masken. Diese sind die Elektronentransparenz, bei gleichzeitiger Intransparenz für die entstehende Lumineszenz (Details dazu finden sich im Methodik-Kapitel 4). Der grundsätzliche Ablauf dieses Präparationsprozesses ist in der Abbildung 3.4 dargestellt. Im ersten von vier Teilschritten wird die gesamte Probenoberfläche gleichmäßig mit einem - in diesem Fall - Negativlack überzogen. Im zweiten Schritt wird auf diesen Lack eine Schattenmaske gepresst, welche die Form der späteren, rechteckigen Masken enthält. Die Kantenlängen sind dabei entweder $520 \mu\text{m} \times 460 \mu\text{m}$ oder $500 \mu\text{m} \times 507 \mu\text{m}$. Die unterschiedlichen Dimensionen liegen darin begründet, dass diese Prozessierungen zum einen an der TU-Berlin durchgeführt wurden, zum anderen am Ferdinand-Braun-Institut, Leibniz-Institut für Höchstfrequenztechnik und hier keine identischen Schattenmasken zur Verfügung standen.² Trotz unterschiedlicher Abmaße wurden die Abstände untereinander mit $260 \mu\text{m}$ und $160 \mu\text{m}$ identisch ausgeführt.

²Die Lift-Off Prozessierungen wurden an der TU-Berlin (Arbeitsgruppe Prof. D. Bimberg) und dem Ferdinand-

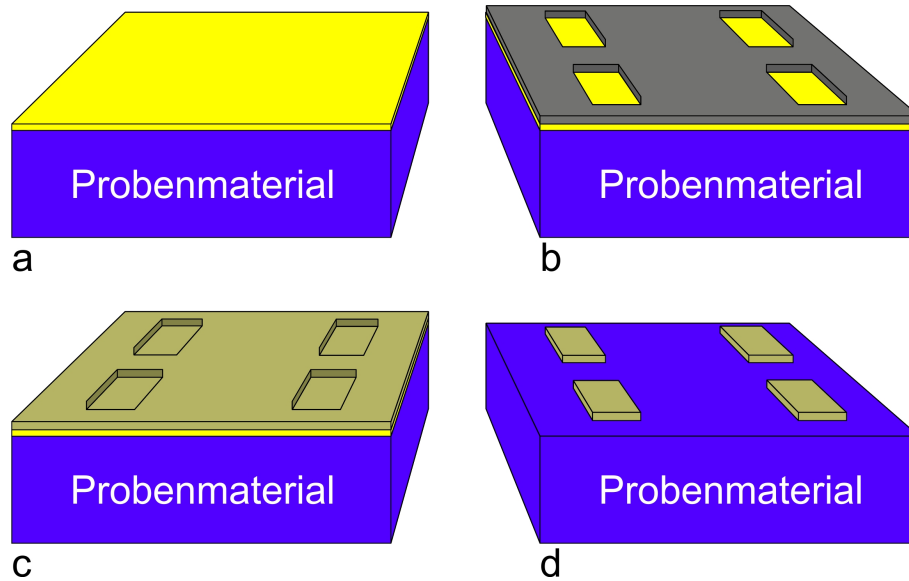


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung des Lift-Off-Prozesses zur Erzeugung der verwendeten quadratischen Titanmasken. a) Beschichtung der Probenoberfläche mit Negativlack, b) Aufpressen einer Schattenmaske auf die Probenoberfläche entsprechend den gewünschten rechteckigen Maskierungen, c) Belichtung des Negativlacks und Entfernen der Schattenmaske mit anschließender Entwicklung des Lacks, d) Beschichtung der Oberfläche mit Titan und Ablösen der Lackschicht.

Nach dem Aufpressen der Belichtungsmaske wird der darunter liegende Lack mit UV-Licht belichtet und anschließend, nach Entfernen der aufgetragenen Schattenmaske, der Lack entwickelt. Dabei sind für die später erreichte Qualität der Maskenkanten sowohl der verwendete Lack, die Lackdicke und die gewählten Temperaturen entscheidend. Ein wichtiges Kriterium für den Lift-Off-Prozess sind negative Lackkanten (undercut), die zusammenhängende Metallschichten durch ihren Schattenwurf bei dem Bedampfungsprozess verhindern.

Die bis hierhin durchgeführten Prozessschritte beschreiben die Photolithographie. Sind diese Schritte durchgeführt folgt die Bedampfung der Probenoberfläche mit Titan, sowie die Ablösung der ungewünschten Teilflächen (der Lift-Off).

Zirkulare Aperturen in einer Titanschicht

Diese Variante der Maskierung wurde durch kommerziell erhältliche Polyester-Kugeln unterschiedlichen Durchmessers von ca. 500 nm und 1 μm realisiert. Die vorliegenden Kugeln wurden zur Steuerung des Bedeckungsgrades der Probenoberfläche in Isopropanol zu unterschiedlichen Verdünnungsverhältnissen angesetzt und durch Aufnahmen durch eine Pipette auf das Probenmaterial aufgebracht. Das Isopropanol mit den Kugeln benetzt die Probenoberfläche ausreichend gut, um eine ausreichend homogene Verteilung der Kugeln auf der Oberfläche sicherzustellen. Die Verdünnungsverhältnisse wurden dabei für unterschiedliche Kugeldurchmesser individuell und experimentell in Versuchsreihen bestimmt. Um unterschiedliche Aperturdurchmesser in der späteren Titanschicht zu realisieren wurden Kugeln unterschiedlichen Durchmessers - das heißt die unterschiedlichen Suspensionen - nacheinander auf die Probenfläche aufgebracht. Wichtig ist hierbei, dass das Isopropanol zwischen den Benetzungen mit unterschiedlichen Suspensionen

nicht vollständig verdampft. Versuche haben gezeigt, dass andernfalls die zuerst (bzw. vorangehend) aufgebrachtene Kugeln durch die zweite Benetzung an den Probenrand gedrängt werden. Ziel ist es jedoch, eine möglichst gute Vermengung bzw. homogene Verteilung aller gewünschten Kugelgrößen zu erreichen, um mehrere Alternativen zur Untersuchung des exzitonen Transportes an in etwa identischen Probenorten vorzuhalten. Dies dient insbesondere der Vergleichbarkeit, sollten mehrere vergleichende Untersuchungen durchgeführt werden müssen.

Nach Auftragen der Polystyren-Kugeln kann direkt mit dem Bedampfungsprozess begonnen werden. Hierbei entstehen durch die die Probenoberfläche bedeckenden Kugeln kreisrunde Schattenwürfe, welche zirkuläre Flächen unbeschichteter Gebiete erzeugen. Mittels Ultraschallbehandlung in einem Ethylacetatbad bei Raumtemperatur (Dauer ca. 20 min) und anschließender, kürzerer Ultraschallbehandlung in Aceton (ca. 5 min) können diese Kugeln mit der darauf befindlichen Titankappe entfernt werden. Die Abbildung 3.5 zeigt schematisch den durchgeführten Prozess. Auch dieser Prozessschritt wurde aus diversen Versuchsreihen als Optimum ermittelt.

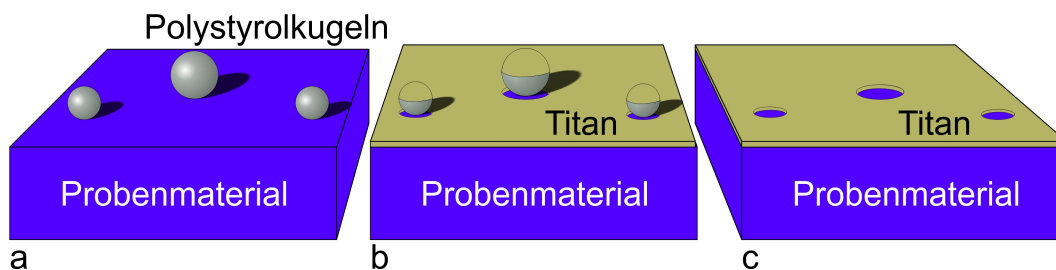


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung des Prozesses zur Erzeugung der verwendeten Lochmasken. a) Aufbringen von Polystyren-Kugeln aus einer Isopropanol-Suspension auf die Probenoberfläche, b) Bedampfen der Probenoberfläche mit Titan, c) Ablösen der Polystyren-Kugeln mit darauf befindlicher Titankappe durch Ultraschallbehandlung.

In mehreren Versuchsreihen wurde ermittelt, welche Methode die steilsten Kraterwände (Lochwände) erzeugt, dabei jedoch die Ablösbarkeit der Kugeln nicht zu stark behindert. Hierzu wurden die Proben mit den darauf befindlichen Kugeln vor der Bedampfung in einem Ofen unterschiedlichen Temperaturen für unterschiedliche Dauern ausgesetzt. Das Ergebnis dieser Untersuchungen zeigt jedoch, dass der Prozess nicht ausreichend exakt zu handhaben ist. Trotz vermeintlich identischer Bedingungen sind die Polystyrenkugeln in einem Fall angeschmolzen, im anderen Fall haben sie ihre Form nicht verändert. Erschwerend kommt hinzu, dass bei einer Verformung der Kugeln, also einem Einsinken ihrer Standfläche, die Ablösung der Titandeckschicht und der Kugeln größtenteils nicht mehr möglich ist. Wie im Ergebnisteil noch zu sehen sein wird, werden jedoch durch nicht weiter behandelte Kugeln Ränder ausreichend kleiner Ausdehnung und hoher Qualität erreicht.

4 Methodik der optischen Untersuchung exzitonischen Transports

Der Exzitonentransport kann mit der verfügbaren Technik nicht direkt beobachtet werden. Aus diesem Grund müssen den Transport charakterisierende zugängliche Größen ermittelt werden, aus denen sich die Bewegung dieser Teilchen ableiten lässt. Wie bereits im Abschnitt 2.7 gezeigt, sind hierfür z.B. die Lebensdauer oder die Diffusionslänge sowie die Diffusionskonstante geeignete Größen. Jedoch sind auch hier Einschränkungen aufgrund der verwendeten Messmethode gegeben. Mit geeigneten Geometrien bzw. Maskierungen lassen sich diese Einschränkungen jedoch umgehen und durch geeignete Modelle aus den dann erhaltenen Messdaten die Transportparameter ableiten. Die dahinter stehenden Methoden, wie sie in dieser Arbeit verwendet wurden, sowie die theoretischen Modelle werden im Folgenden vorgestellt und abgeleitet.

Zwei Methoden wurden zur Ermittlung des exzitonischen Transports verwendet. Das erste eingesetzte Verfahren setzt sich dabei aus orts aufgelösten und zeitaufgelösten Messungen zusammen. Aus den Ergebnissen beider Untersuchungen werden die Transportparameter D und μ abgeleitet. Die Grundlagen bzw. die Umsetzbarkeit dieses Verfahrens ist dabei verknüpft an die Eigenschaften des verwendeten Maskenmaterials. Diese Eigenschaften werden ebenfalls betrachtet. Das zweite Verfahren setzt ausschließlich auf die zeitaufgelöste Kathodolumineszenzmessung. Aufgrund der geometrischen Einschränkungen durch die aufgebrachte Maskierung, wie sie bereits im vorangegangenen Kapitel im Abschnitt 3.3 gezeigt wurde, handelt es sich indirekt dennoch um eine orts aufgelöste Untersuchung. Aus diesem Grund wird in diesem Zusammenhang von „orts-zeitaufgelösten“ Messungen gesprochen. Im Anschluss an diese Vorstellung wird das zweite Verfahren jener Methode gegenübergestellt, die in [HIL89] Anwendung fand. Sie unterscheidet sich durch den Einsatz von Photolumineszenz anstelle von Kathodolumineszenz und damit nicht nur durch die Art der Anregung, sondern auch im Hinblick auf das Anregungsvolumen bzw. die Anregungsweite und ihrer erzielbaren Auflösung.

Sind die experimentellen Grundlagen, sowie die zu beachtenden Eigenschaften des Maskenmaterials beleuchtet, findet in den letzten beiden Abschnitten dieses Kapitels die Ableitung der nötigen theoretischen Modelle statt, die beide im Rahmen dieser Arbeit, speziell für die hier verwendeten Methoden hergeleitet wurden.

4.1 Methode der cw-Linescans

Wie aus den vorigen Kapiteln und Abschnitten bereits deutlich wurde, soll der exzitonische Transport untersucht werden. Aus diesem Grund sind optische Untersuchungsmethoden das Mittel der Wahl. Konkret wurde die Kathodolumineszenzmikroskopie in orts-, zeit- und spektralaufgelöster Ausführung gewählt. Ebenso wurde bereits deutlich, dass die den Transport beschreibenden Kenngrößen sowohl die Diffusionslänge λ , als auch die (anfängliche) Lebensdauer τ sind. In Konsequenz daraus ergibt sich damit die Diffusionskonstante D und die Beweglichkeit μ der Exzitonen (siehe Gleichungen (2.39) und (2.38)). Alle physikalischen Größen müssen dabei als Funktion von der Proben temperatur aufgenommen werden, um letztendlich über den charakteristischen Verlauf der Beweglichkeit auf die zugrundeliegenden Streumechanismen schließen zu können (siehe Abschnitt 2.8).

Um die Diffusionslänge λ von Exzitonen zu bestimmen sind mehrere Vorgehensweisen denkbar. Das bekannteste Experiment hierzu dürfte wohl der Ladungsträgertransport an einem pn-Übergang in einem Transistor, dem Haynes-Shockley Experiment sein [SHO49]. Es kann aber auch beispielsweise an einem festen Ort x_0 eine Generation von z.B. Exzitonen durch Elektronenbeschuss stattfinden und die der Konzentration der Exzitonen proportionale Lumineszenzintensität in Abhängigkeit von der Distanz x zum Ort x_0 bestimmt werden, ohne, dass dafür wie in dem genannten Experiment ein pn-Übergang präsent sein muss.

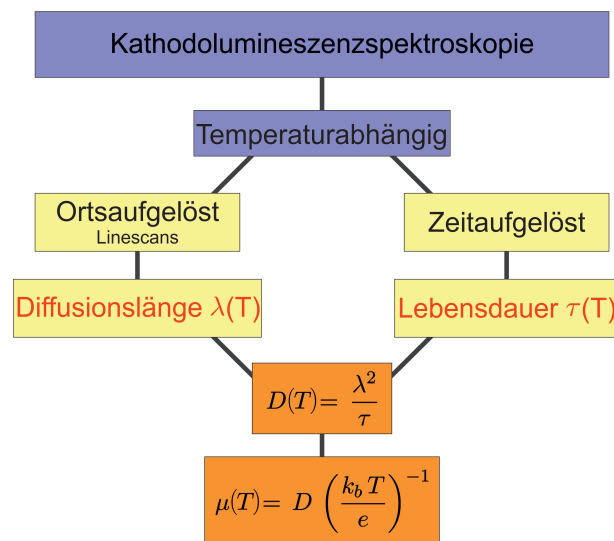


Abbildung 4.1: Blockdiagramm der Vorgehensweise zur Bestimmung der Transportkenngrößen *Diffusionskonstante* D und *Beweglichkeit* μ . Die Grundlage bildet die Kathodolumineszenzmikroskopie. Mit ihr werden temperaturabhängig aus zeit- und ortsaufgelösten Untersuchungen die Lebensdauer τ und Diffusionslänge λ bestimmt. Aus diesen Werten erfolgt anschließend die Berechnung der Diffusionskonstante und Beweglichkeit.

Der verwendete Messaufbau jedoch erlaubt eine solche Vorgehensweise nicht direkt, da die entstehende Lumineszenz der Exzitonen von der gesamten Probe und nicht lokal eingesammelt wird. Daher wird dieses Verfahren quasi invertiert und statt der Detektion die Anregung örtlich variiert.

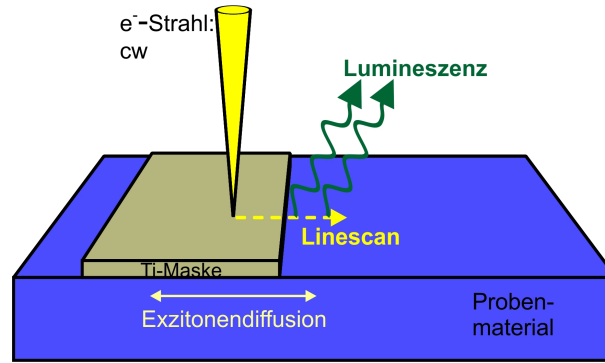


Abbildung 4.2: Mit einem Elektronenstrahl (gelb) wird senkrecht entlang einer Linie über die Kante der Ti-Maske und die Probenoberfläche gescannt (Linescan) und das entstehende Lumineszenzsignal zu jedem Anregungsort auf dieser Linie detektiert.

Es werden die bereits in Abschnitt 3.3 diskutierten Schattenmasken verwendet, zu dessen Kante senkrecht ein Linescan der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen aufgenommen wird. Diese muss derart gestaltet sein, dass sie die Lumineszenz, welche unter ihr in der Probe entsteht, absorbiert. Gleichzeitig muss sie jedoch für die Primärelektronen möglichst uneingeschränkt transparent sein, damit unter der Maskierung weiter Ladungsträger generiert und damit Exzitonen formiert werden können.

Werden Exzitonen unterhalb der Maske erzeugt, so erreicht bis zu einem gewissen Abstand ein Teil der erzeugten Exzitonen innerhalb ihrer Lebensdauer den unmaskierten Bereich und trägt so zur detektierbaren Lumineszenzintensität bei. Je näher die Generation der Exzitonen an der Kante der Maske geschieht, desto größer ist der Anteil der Exzitonen, die den unbedeckten Bereich erreichen. Am größten ist dieser Anteil demnach, wenn die Generation weit genug von der Maske entfernt im unbedeckten Gebiet stattfindet, so dass die Rekombination aller generierten Exzitonen im unbedeckten Bereich stattfindet. Über das so entstehende Intensitätsprofil in Abhängigkeit vom Ort der Generation (unter der Maske, im Bereich der Kante, im unbedeckten Gebiet) lässt sich die Diffusionslänge mit der Gleichung (4.26) (siehe Abschnitt 4.3.1) bestimmen. Die Abbildung 4.2 illustriert diese Methode der Diffusionslängenmessung. Es ist direkt einzusehen, dass bei sehr großen Diffusionslängen der zu erwartende Anstieg der Lumineszenzintensität vom Bereich der Maske, hin zum unbedeckten Gebiet nur sehr allmählich und bereits weit entfernt von der Maskenkante geschieht. Dagegen wird bei sehr kleiner Diffusionslänge der Anstieg entsprechend steiler ausfallen und sich im unmittelbaren Bereich der Maskenkante abspielen.

Gerade letzter Umstand lässt die Bedeutung einer möglichst stufenförmigen Maskenkante deutlich werden. Sollte sie in ihrer Ausdehnung nicht perfekt stufenförmig sein, so darf sie die Diffusionslänge zumindest nicht überschreiten. Andernfalls ließe sich nicht mehr unterscheiden, aus welchem Grund die Lumineszenzintensität in genau diesem Bereich eine Änderung bei Fortschreiten in eine der beiden Richtungen (Richtung unbedecktes Gebiet oder Richtung Maske) erfährt. Genauer gesagt muss die Maskenkante sogar deutlich kleiner sein als die zu erwartende Diffusionslänge der freien Exzitonen. Dies stellt die Prozessierung vor große Herausforderungen,

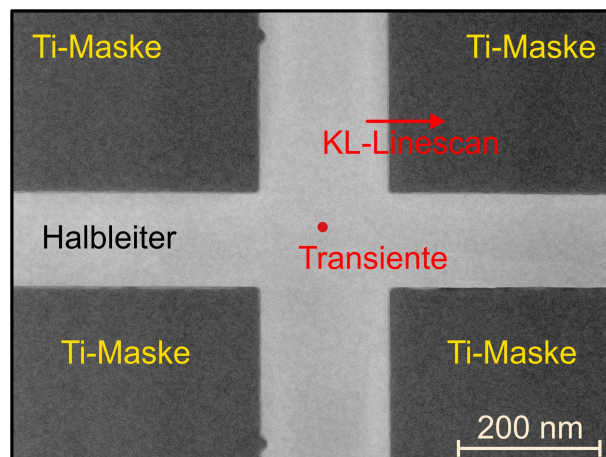


Abbildung 4.3: SE-Bild der Ti-Masken. Entlang des roten Pfeils: Aufnahme der KL-Linescans, roter Punkt: Aufnahme der KL-Transienten.

da ggf. Diffusionslängen von lediglich $\lambda=100$ nm oder weniger auftreten könnten.

Die noch nötige anfängliche Lebensdauer der (freien) Exzitonen wird mittels zeitaufgelösten KL-Messungen erhalten (vgl. Abschnitt 3.2). Diese Messungen werden in ausreichender Entfernung von jeder Maskierung durchgeführt (vgl. Abbildung 4.3), um eine Diffusion von Exzitonen unter diese Maskierungen zu verhindern. Die spektrale Lage der freien Exzitonen kann dabei direkt aus den Spektren der Linescans zu jeder Temperatur „entnommen“ werden, da hierbei zu jedem Punkt ein Spektrum aufgenommen wird.

4.1.1 Analyse der Elektronen- und Lichtdurchlässigkeit von Titan-Schichten

Um die Titanmaskierungen, wie sie für die oben genannte Methode der Diffusionslängenbestimmung benötigt werden, korrekt dimensionieren zu können, müssen einige Eigenschaften beleuchtet werden. So verlieren die Primärelektronen beim Durchgang durch das Ti durch Wechselwirkungen an Energie. Zudem werden einige Elektronen absorbiert. Dennoch soll eine weitgehende Elektronentransparenz garantiert sein. Gleichzeitig soll keine Lumineszenz durch die Schicht dringen können.

Die Undurchlässigkeit der Ti-Schicht für die Lumineszenz des darunter liegenden Halbleiters ist essentiell und wurde für eine 160 nm dicke Ti-Schicht durch Transmissionsmessungen in einem Spektrometer geprüft. Die Auswertung ergibt eine Abschwächung von rund 4 Zehnerpotenzen bei Wellenlängen um 360 nm. Damit ist die Undurchlässigkeit der Lumineszenz für diese Schichtdicken offenbar gesichert.

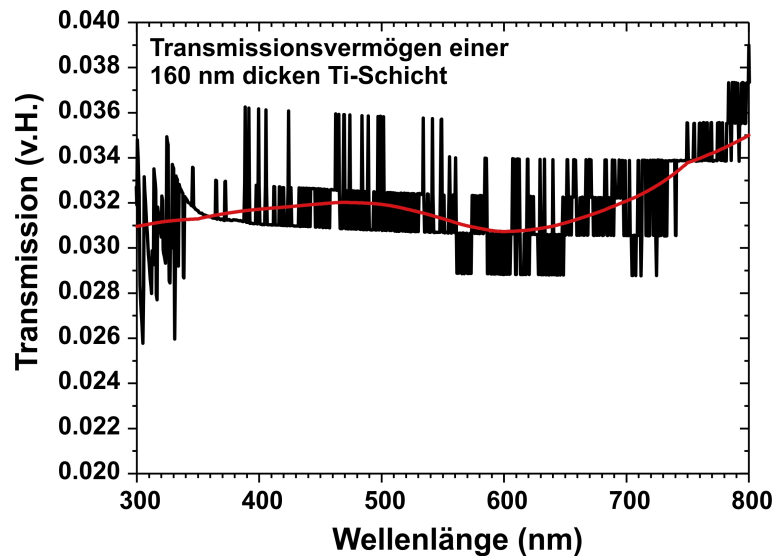


Abbildung 4.4: Das Transmissionsvermögen der 160 nm dicken Ti-Schicht beträgt über den dargestellten Wellenlängenbereich von 300-800 nm rund 0,03 %. Die schwarze Linie zeigt die mit dem Spektrometer erhaltenen Messwerte unter Berücksichtigung des verwendeten Trägerglases, die rote Kurve ist eine Glättung der ermittelten Transmittivität.

Neben den optischen Eigenschaften muss auch der Einfluss auf die Primärelektronen beleuchtet werden. Hier sind mehrere Details zu berücksichtigen. Die Elektronentransparenz muss bestmöglich gegeben sein, um auch unterhalb der Ti-Maske Ladungsträger generieren zu können. Aufgrund der unvermeidbaren Absorption bestehen für Orte die von der Ti-Schicht bedeckt sind und Flächen, die freistehen, unterschiedliche Anregungsbedingungen. Diese Unterschiede finden bei der Interpretation der Messergebnisse, wie sie im Kapitel 5 besprochen werden, Anwendung.

Die Abbildung 4.5 zeigt, wie sich die Wechselwirkungen von Primärelektronen und Festkörper darstellen lassen. So wird durch Wechselwirkungen ein Teil der Elektronen zurückgestreut, in das Material weiter eindringende Elektronen geben ihre kinetische Energie an das Material ab und diffundieren bis zur maximalen Reichweite R .

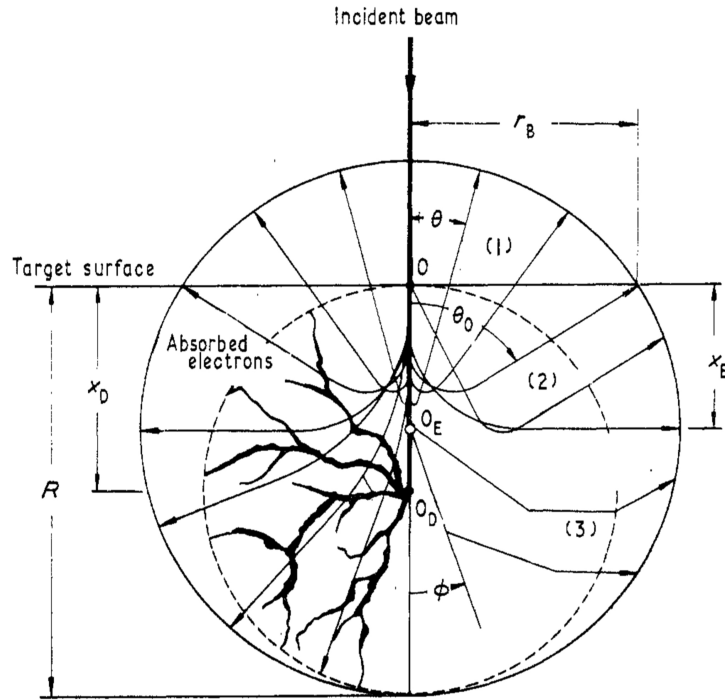


Abbildung 4.5: Wechselwirkungsmodell für Elektronenbeschuss von Festkörpern. R ist die maximale Reichweite, x_D die Diffusionsweite der eindringenden Primärelektronen, x_E die Tiefe maximaler Energiedissipation, r_B der Bereich der Elektronenrückstreuung, $\tan(\Theta_0) = \frac{r_B}{x_E}$. Die Ziffern (1), (2) und (3) geben die Anzahl der Richtungsänderungen an. [KAN72]

Nach [YAC86] erhält man die maximale Eindringtiefe inklusive ihrer Diffusion mit:

$$R_e = \left(\frac{0,0276A}{\rho Z^{\frac{8}{9}}} \right) E_b^{\frac{5}{3}}. \quad (4.1)$$

Die Eindringtiefe wird mit R_e in [μm] angegeben, A ist die Molare Masse des Materials in [g/mol], ρ ist die Dichte in [g/cm^3], Z die Kernladungszahl und E_b die Energie der Primärelektronen in [eV].

Wie der Abbildung 4.6 zu entnehmen ist, erreichen Primärelektronen mit einer Energie ab ca. $E_b=4 \text{ keV}$ die Unterseite einer 160 nm Ti-Schicht. Bei $E_b=7 \text{ keV}$ erreicht mit Sicherheit ein großer Teil der Primärelektronen ein unter einer solchen Titanschicht befindliches Material. Somit ist die Elektronentransparenz für Ti-Schichtdicken von 160 nm in gefordertem Maße gegeben. Dennoch ist dies allein nicht ausreichend, um die Verwendbarkeit einer solchen Ti-Schicht für die oben beschriebene Methode abschließend zu klären.

So können die Primärelektronen beim Durchgang durch die Ti-Schicht derart viel Energie verloren haben, dass keine Generation von Ladungsträgern in dem darunter befindlichen Halbleiter mehr möglich ist. Es gilt also zu klären, wieviel Energie die Primärelektronen beim Durchlaufen der Ti-Schicht verlieren.

[KAN72] erhält nach Berechnungen für den Streuquerschnitt von Elektronen als semiempirischen Ausdruck für die Abnahme der Energie der Primärelektronen mit zunehmender

Eindringtiefe in ein Material die Gleichung (4.3).

$$\frac{dE}{dx} = 0,1823 \cdot 2^{\frac{5}{3}} \pi a^{\frac{1}{3}} e^{\frac{10}{3}} \cdot N \cdot Z \cdot E^{-\frac{2}{3}} \quad (4.2)$$

$$E(x) = (1-y)^{\frac{3}{5}} E_b \quad (4.3)$$

y ist dabei die reduzierte Eindringtiefe $y = \frac{x}{R_e}$ und beinhaltet so die maximale Elektronenreichweite nach Gleichung (4.1).

Hiermit zeigt sich, dass bei einer anfänglichen kinetischen Energie der Primärelektronen von $E_b=7\text{ keV}$ nach Durchgang durch eine Ti-Schicht von 160 nm diesen eine „Restenergie“ von $E_b^*=5,5\text{ keV}$ verbleibt (bei $E_b=5\text{ keV}$ sind es $E_b^* = 2,9\text{ keV}$). Das zeigt bereits, dass die Anregungsdichte aufgrund der reduzierten Energie der Primärelektronen im Gebiet unterhalb der Ti-Maskierung geringer ausfällt, als im unbedeckten Bereich eines mittels KL untersuchten Materials.

Auf Grund der Reduzierung der Primärelektronenenergie bei ihrem Weg durch die Ti-Schicht wird die Tiefe maximaler Ladungsträgergeneration von der im unbedeckten Bereich verschieden sein. Dieses muss unter Umständen, je nach Probenaufbau, berücksichtigt werden. Diese tiefenabhängige Verteilung der Ladungsträgergeneration kann nach [KAN72] mittels normierter relativer Änderung der dissipierten Energie je Einheitsmassentiefe bestimmt werden:

$$\rho R \frac{d\left(\frac{E_A}{E_0}\right)}{d(\rho x)} = \frac{1}{(1-y)^{\frac{2}{5}}} e^{-\frac{\gamma y}{1-y}} \left(\frac{\gamma y}{1-y} + \frac{5}{3} \right) + \frac{E_{Back}}{E_0} \frac{57}{25} \frac{\gamma}{(1-y)^2} e^{-\frac{1,9\gamma y}{1-y}} \left(\frac{1}{2^{\frac{5}{6}}} - (1-y)^{\frac{5}{6}} \right) \quad (4.4)$$

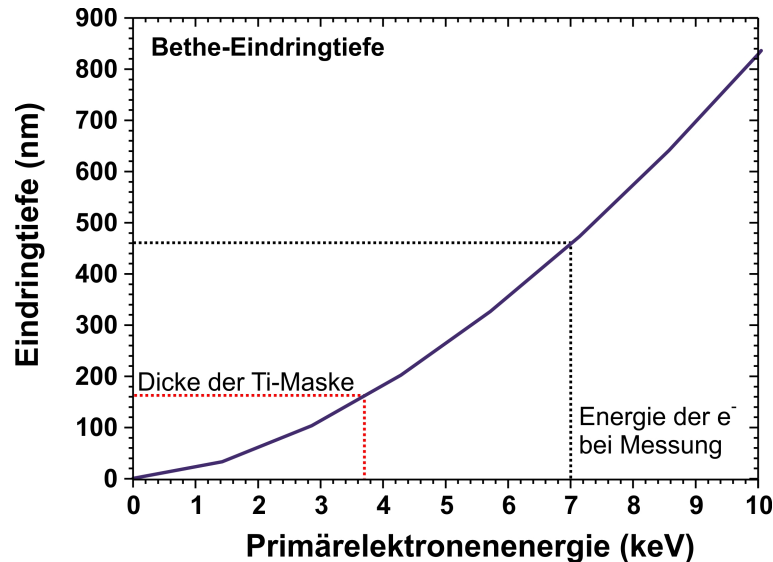


Abbildung 4.6: Dargestellt ist die Eindringtiefe der Primärelektronen in Titan in Abhängigkeit von ihrer kinetischen Energie nach Gleichung (4.1). Für eine Beschleunigungsspannung von $V_{Acc}=7\text{ kV}$ beträgt die Eindringtiefe 370 nm. Die Ti-Schicht wurde für die Experimente zu einer Dicke von rund 160 nm, wie eingezeichnet, gewählt, so dass bei einer kinetischen Energie von $E_b=7\text{ keV}$ der Primärelektronen sicher ein Großteil die darunter liegende Halbleiterschicht erreichen.

E_A gibt die dissipierte Energie an, E_{Back} jene Energie, die durch rückgestreute Elektronen dem System nicht für weitere Wechselwirkungsprozesse zur Verfügung steht. Der Quotient $\frac{E_{Back}}{E_0}$, abhängig von der Kernladungszahl des betrachteten Materials, kann aus [KAN72] entnommen werden.

Neben der durch Streuungen entstandenen Abnahme der Energie der Primärelektronen muss noch der Anteil der rückgestreuten und absorbierten Elektronen betrachtet werden, um die tatsächliche Anregungsdichte unterhalb der Ti-Schicht abschätzen zu können. Ebenfalls nach [KAN72] ergibt sich für den relativen Anteil transmittierter Elektronen:

$$\eta_T = e^{-\frac{\gamma y}{1-y}} \quad (4.5)$$

Die in Gleichung (4.5) neu eingeführte Größe γ ist eine Materialkonstante die lediglich von der Kernladungszahl Z abhängt.

$$\gamma = 0,187 \cdot Z^{\frac{2}{3}} \quad (4.6)$$

Ein deutlicher Unterschied besteht demnach bereits bei einer Änderung der anfänglichen kinetischen Energie der Primärelektronen von $E_b=5$ keV zu $E_b=7$ keV. So erreichen bei einer vorliegenden Ti-Schichtdicke von 160 nm lediglich 12 % beziehungsweise 47 % den darunter liegenden Halbleiter. Daraus folgt, dass die Generationsrate im Halbleitermaterial unterhalb der Ti-Maske auf Grund des effektiven Strahlstroms gegenüber dem Probenbereich ohne Ti-Schicht um rund 50 % beziehungsweise rund 90 % reduziert sein wird. Eine weitere Reduktion ergibt sich durch die geringere kinetische Energie der Elektronen unterhalb der Ti-Maske, wie bereits gezeigt wurde.

Konsequenzen für die Ladungsträgergeneration

Für die Generationsrate ist zu berücksichtigen, dass, wie gesehen, sowohl die kinetische Energie der eindringenden Elektronen als auch die effektive Strahlstromstärke im Material unterhalb der Ti-Schicht deutlich reduziert sind.

Nach [GRE02] kann die Generationsrate von e-h-Paaren bestimmt werden über:

$$G = \frac{E_b I_b (1 - \nu)}{e E_i} \quad (4.7)$$

G in Einheiten von [Ladungsträgerpaar \cdot s $^{-1}$] ist die Generationsrate der e-h-Paare, I_b die Primärelektronenstrahlstromstärke, e ist die Elementarladung, ν gibt den Elektronenrückstreu- koeffizienten an und E_i ist die Mindestenergie, um ein e-h-Paar zu generieren. E_i ist dabei gegeben durch (4.8) [FIT94].

$$E_i = 2,75 E_g + 1 \text{ (eV)} \quad (4.8)$$

Der in Gleichung (4.7) enthaltene Rückstreu- koeffizient ν kann nach [KAN72] mittels Gleichung (4.9) bestimmt werden.

$$\nu = \frac{1}{4\pi} \int_0^{\theta_0} 2\pi \sin(\theta) d\theta = \frac{1}{2} (1 - \cos \theta_0) \quad (4.9)$$

$$\text{mit } \theta_0 = \arctan \left(\frac{4\gamma(1+\gamma)}{1+2\gamma-0,21\gamma^2} \right).$$

Die mit dieser Gleichung ermittelten und zueinander relativen Generationsraten für die hier untersuchten Materialien Galliumnitrid und Zinkoxid sind unten in der Tabelle 4.1 zusammen mit den wichtigsten Ergebnissen dieses Kapitels angegeben.

Zusammenfassung

Mit den oben erarbeiteten Ergebnissen ist einzusehen, dass die Titanmaske auf dem Halbleitermaterial bedeutende Auswirkungen auf die Generation von Exzitonen hat. Insbesondere vor dem Hintergrund, dass über einen Messzyklus weder die Primärelektronenenergie, noch der Strahlstrom variiert werden ist eine entsprechende Berücksichtigung bei der Auswertung der erhaltenen Verläufe der Lumineszenzintensität bei den durchgeführten Linescans senkrecht zu den Maskenkanten unabdingbar. Jedoch zeigen diese Zusammenhänge bereits den entscheidenden Nachteil dieser Methode auf. Es werden im Bereich der Maskierung und außerhalb der Maskierung unterschiedliche Tiefen der Anregung und zudem auch unterschiedliche Anregungsdichten erreicht. Dies kann im Zusammenhang mit dem in Abschnitt 2.6 erläuterten QCSE zu erheblichen Verschiebungen der effektiven Bandlücke führen und das Überlappintegral entsprechend in den beiden Bereichen des Linescans deutlich unterschiedlich ausfallen.

Die Bestimmung der Generationsraten/-tiefen in der Halbleiterschicht unterhalb der Ti-Maske können nach dem *cut and paste* Prinzip vorgenommen werden. Das heißt, dass zunächst sowohl der Energieverlust und die Transmission der Primärelektronen bis zu einer Tiefe, die der Ti-Schichtdicke entspricht, berechnet werden und mit diesen *neuen Startparametern* die Berechnungen für darunterliegende Schichten ausgeführt werden. [DUN97] simulierte die Ladungsträgergeneration durch Elektronenbeschuss eines Mehrschichtsystems in Abhängigkeit der Eindringtiefe unter durchlaufen der unterschiedlichen Schichten mittels Monte-Carlo-Simulation und vergleicht diese mit den oben angeführten analytischen Ausdrücken (4.3) und (4.4). Als Ergebnis wird festgehalten, dass die angewandte Methode nur für Strukturen funktioniert, bei denen die oberste Schicht mindestens eine Dicke von $0,2 R_e$ aufweist. Mit einer Schichtdicke von rund 160 nm des Titans ist diese Forderung bei Beschleunigungsspannungen von $>1,5 \text{ kV}$ (Vergleich Abbildung 4.6) erfüllt.

Tabelle 4.1: Übersicht der Auswirkungen einer Ti-Bedeckung von 160 nm auf ZnO in Abhängigkeit von der Primärelektronenenergie. Größen mit Index * kennzeichnen die „Eigenschaft“ nach Durchlaufen der Ti-Schicht, G^* ist die relative Anregungsdichte (bezogen auf unbedecktes Gebiet, welches von den Primärelektronen ungestört erreicht wird).

Auswirkungen der Wechselwirkung von Primärelektronen mit Titan - Überblick						
E_b [keV]	R_{Bethe}^{Ti} [nm]	E_b^* [keV]	R_{Bethe}^{ZnO} [nm]	R_{Bethe}^{*ZnO} [nm]	I_b^* [%]	G^* [%]
10	863	9	1356	1138	72	63
7	476	5,5	748	501	47	37
5	272	3	427	182	12	7

E_b ist die anfängliche Primärelektronenenergie, R_{Bethe}^{Ti} ist die maximale Eindringtiefe dieser Elektronen in Titan, E_b^* entspricht der verbleibenden Primärelektronenenergie nach Durchdringung einer 160 nm dicken Ti-Schicht. Die Größen R_{Bethe}^{ZnO} und das Pendant mit Index * kennzeichnen die maximale Reichweite von Elektronen zum einen bei einer Primärenergie von E_b , zum anderen von E_b^* . Man erkennt sehr deutlich, dass die Eindringtiefe von Elektronen in ZnO im unbedeckten Gebiet insbesondere bei geringen Primärelektronenenergien im Vergleich zum bedeckten Gebiet wesentlich größer ist. Für Schichtsysteme kann dies bereits bedeuten, dass das Verfahren nicht oder zumindest nur sehr eingeschränkt verwendet werden kann.

I_b^* beschreibt die relative Reduzierung des Strahlstroms nach Durchdringung dieser 160 nm Titanschicht. Die Größe G^* beschreibt die relative Anregungsdichte im Material unter einer 160 nm dicken Ti-Schicht im Vergleich zum ungestörten Fall.

Dies bedeutet, dass bei einer Primärelektronenenergie von $E_b=5$ keV unterhalb einer 160 nm dicken Ti-Schicht in z.B. GaN oder ZnO nur noch 7 % der Generationsrate von jener im selben Material ohne Maskierung erreicht werden. Dieser Umstand ist bei der Durchführung der Experimente und bei der Interpretation der Intensitätsverläufe zu berücksichtigen. Dieser wird beim Übergang vom unbedeckten zum bedeckten Bereich schon aufgrund der sich unterscheidenden Anregungsbedingungen einen Sprung erfahren bzw. von der konkreten Form der Maskenkante definiert werden. Es zeigt auch, dass verhältnismäßig geringe Einflüsse der Ti-Schicht nur für sehr hohe Beschleunigungsspannungen für die Primärelektronen zu erwarten sind. Dies jedoch verringert wiederum die maximal erreichbare laterale Auflösung, da das Anregungsvolumen (ebenfalls R_{bethe}) drastisch zunimmt. Kleine Diffusionslängen könnten damit nicht mehr detektiert werden können.

4.2 Methode der transparenten Kreisflächen

Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt dargelegt, erweist sich die Methode der cw-Linescans aufgrund der Eigenschaften der Ti-Maskierung in Wechselwirkung mit den anregenden Primärelektronen als wenig praktikabel, in manchen Fällen sogar als weitestgehend ungeeignet. Auch die Prozessierung der notwendigen Maskierungen stellt große Herausforderungen dar und konnte oftmals den Anforderungen nicht vollends gerecht werden. Somit war es nötig, eine Alternative zu dieser Methode zu finden. Diese Alternative besteht in einer Methode transparenter Kreisflächen, die im Folgenden erläutert wird.

Anders als bei der soeben vorgestellten Methode, bei der sowohl orts- als auch zeitaufgelöste Messungen durchgeführt werden müssen, erlaubt es die hier vorgestellte Methode die Transporteigenschaften aus ausschließlich zeitaufgelösten Untersuchungen abzuleiten. Zudem ist keine Durchdringung des Maskenmaterials notwendig, womit eine entsprechende Änderung der Anregungsdichte bei Überstreichen des bedeckten und unbedeckten Gebiets entfällt. Die Bestimmung der anfänglichen Lebensdauer τ findet wieder ohne Bedeckung der Probenoberfläche statt. Es bietet sich an, diese Messung vor der Ti-Beschichtung durchzuführen und eine möglichst identische Probenstelle mit der zugehörigen Maskierung im Anschluss daran herzustellen. Identisch mit der ersten Methode jedoch ist die Tatsache, dass diese Untersuchungen ebenfalls wieder in Abhängigkeit von der Probentemperatur durchgeführt werden müssen, um die beteiligten Streumechanismen beim Transport der Exzitonen bestimmen zu können. Ebenso ist neben der Bestimmung der anfänglichen Lebensdauer auch hier eine weitere Messung nötig, um alle notwendigen Informationen zu erhalten, mit denen sich der Transport der Exzitonen ableiten lässt.

Das Schema dieser Orts-Zeit-Aufgelösten Methode ist in der Abbildung 4.7 skizziert. Auch hier wird also wieder die Kathodolumineszenzmikroskopie verwendet und aus den zeit- und ortszeitaufgelösten Messungen die Diffusionskonstante D als Funktion der Temperatur abgeleitet, woraus dann über die Einsteinbeziehung (2.38) die Beweglichkeit μ zur Ableitung der beteiligten Streumechanismen berechnet wird.

Die in diesem Fall zu verwendende Maskierung besteht, wie bereits im Abschnitt 3.3 zu sehen war, aus kreisförmigen Löchern innerhalb der Titanschicht, um die entsprechende Ortsauflösung für die Transportuntersuchungen herstellen zu können. Die Lochradien liegen dabei im Bereich der erwarteten Exzitonendiffusionslänge λ . Wird nun im Zentrum eines solchen Loches mittels gepulstem Elektronenstrahl (vgl. Abbildung 4.8) ein Gleichgewicht aus Generation und Rekombination geschaffen und anschließend die Generation abgeschaltet, dann überlagern sich zwei Prozesse. Zum einen nimmt die Anzahl der Exzitonen über deren Zerfallsprozesse ab. Diese Abnahme ist definiert durch die Lebensdauer der Exzitonen und wurde bereits entsprechend bestimmt. Zum anderen diffundieren die Exzitonen vom Ort der Generation weg unter die lichtundurchlässige Maskierung. Diese Diffusion heraus aus dem Zentrum bzw. dem Gebiet des Lochs unter die (auch in diesem Fall wieder lichtundurchlässige) Titanschicht bewirkt eine Differenz zwischen den abfallenden Ästen der dabei aufgenommenen Transienten aus dem unbedeckten Gebiet und der Apertur.

Es ist zu erwarten, dass die Lumineszenzintensität aus dem Loch mit Fortschreiten der Zeit steiler abfällt als im ungestörten Fall, da zu dem eigentlichen Zerfallsprozess noch jene Exzitonen „herausfallen“, welche innerhalb ihrer Lebensdauer unter die Titanschicht diffundieren können.

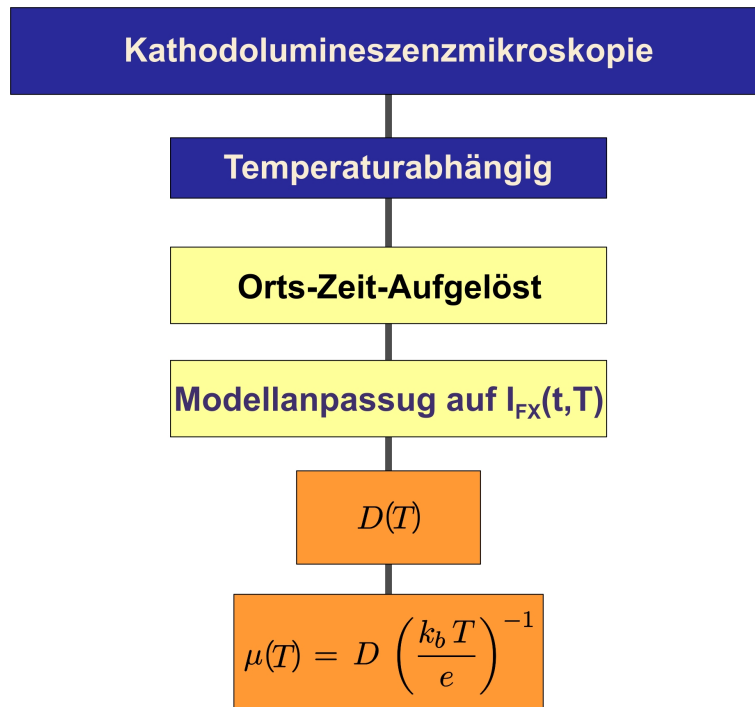


Abbildung 4.7: Blockdiagramm zur Vorgehensweise für die Methode der transparenten Kreisfläche.

Die Lumineszenz dieser Exzitonen würde im ungestörten Fall noch detektiert werden und so die Lumineszenzintensität direkt nach Ende der Generation auf einem erhöhten Niveau „halten“. Sie sind jetzt jedoch aufgrund der intransparenten Ti-Schicht nicht mehr sichtbar. Ihre detektierbare Population nimmt also zum einen ab über ihre Lebensdauer τ , zum anderen, weil sie gleichzeitig unter die Maske diffundieren und nicht mehr detektiert werden können.

Es lässt sich hieraus also ableiten, dass je größer die Diffusivität der Exzitonen ausfällt, um so steiler fällt die Lumineszenzintensität in der aufgenommenen Transiente mit der Zeit ab. Dies bedeutet im Umkehrschluss, dass bei einer Diffusionskonstante von $D=0 \text{ cm}^2/\text{s}$ der Abfall nur noch durch die Lebensdauer der Exzitonen bestimmt wird und somit identisch mit dem des ungestörten Falls ausfallen sollte. Zusätzlich lässt sich jedoch auch ableiten, dass mit zunehmendem Lochdurchmesser bei ansonsten konstanter Diffusionskonstante, dieser Intensitätsabfall zunehmend flacher verläuft, bis er bei ausreichend großem Lochdurchmesser ebenfalls dem ungestörten Fall entspricht und somit ausschließlich durch die Lebensdauer definiert wird - oder anders ausgedrückt, die Diffusionslänge der Exzitonen gleich oder kleiner dem Lochradius ist und keine Exzitonen mehr unter die Ti-Maske gelangen können.

Mit einem geeigneten Modell kann also die Diffusion der Exzitonen aus der Differenz der Zerfallszeiten und der Lebensdauer bestimmt werden. Genauer gesagt, wird daraus die Diffusionskonstante ermittelt. Das dahinter stehende Modell wird im Abschnitt 4.3.2 abgeleitet.

Im Verlauf dieser Arbeit werden die beiden Zeitkonstanten begrifflich getrennt, um eine eindeutige Zuordnung zu schaffen. Die aus dem unbedeckten Gebiet erhaltene Zeitkonstante für den anfänglichen Abfall der Lumineszenzintensität wird weiterhin mit „Lebensdauer“ oder „anfänglicher Lebensdauer“ benannt. Jene, die für den Abfall der Lumineszenzintensität aus dem Loch erhalten wird, wird mit „Zerfallszeit“ oder „anfänglicher Zerfallszeit“ benannt.

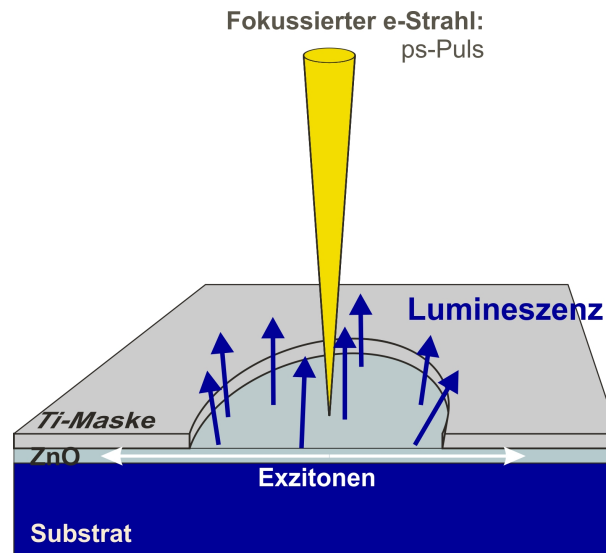


Abbildung 4.8: Mit einem fokussierten und gepulsten Elektronenstrahl werden im Zentrum einer kreisrunden Apertur in der Titanschicht Exzitonen generiert. Diese können zum einen innerhalb dieses Loches rekombinieren, wobei ihre Lumineszenz zeitaufgelöst durch ein Detektionssystem aufgenommen werden kann, zum anderen können sie aber auch aus dem Zentrum heraus unter die Maske diffundieren und damit ihre Lumineszenz nicht mehr detektiert werden.

4.2.1 Vergleich Kathodolumineszenz / Photolumineszenz

Neben dem Einsatz eines fokussierten Elektronenstrahls, lassen sich die beschriebenen Transportuntersuchungen an den Masken mit kreisförmigen Öffnungen auch mittels Photolumineszenz durchführen.

In [HIL89] findet sich eine ausführliche Beschreibung dieses Verfahrens. Anstelle von langanhaltenden Anregungspulsen, um ein Gleichgewicht aus Generation und Rekombination zu erreichen, wird hier ein kurzer Laser-Puls auf die Probe geleitet und vom Maximum der erreichten Lumineszenz der entsprechende Intensitätsabfall verfolgt. Zudem wurde der Laser-Strahl aufgeweitet und somit die gesamte Fläche der Apertur in der verwendeten Maskierung homogen ausgeleuchtet. Die Anregungsregion wird also in diesem Experiment durch die Größe der Löcher bestimmt - anders als in dem Verfahren, welches im Zuge dieser Arbeit entwickelt wurde, bei dem im Zentrum eines Loches auf einem möglichst beschränkten Gebiet durch die Fokussierung eines Elektronenstrahls die Exzitonengeneration erfolgt.

Auch die Betrachtung der theoretischen Beschreibung der Transportkenngrößen, der Diffusionskonstante D , aus den Lumineszenzintensitätsabfällen ist in beiden Fällen voneinander verschieden. Wie noch zu sehen sein wird, wird in dieser Arbeit ein vollkommen analytischer Ausdruck für die Transportgleichung abgeleitet 4.3.2, wohingegen in [HIL89] ein numerisches Verfahren zur Näherung der Transportgleichung an die Messdaten verwendet wurde.

Die grundlegenden Aussagen in [HIL89] zur Funktionsweise dieser Methode jedoch bleiben davon unberührt und gelten hier wie dort. So werden die erhaltenen Profile der Lumineszenzintensität aus dem Kreisgebiet heraus in gleichem Maße von der Diffusion der betrachteten Exzitonen beeinflusst. Z.B. gilt, dass je größer die Diffusivität, desto steiler der Abfall der Lumineszenzin-

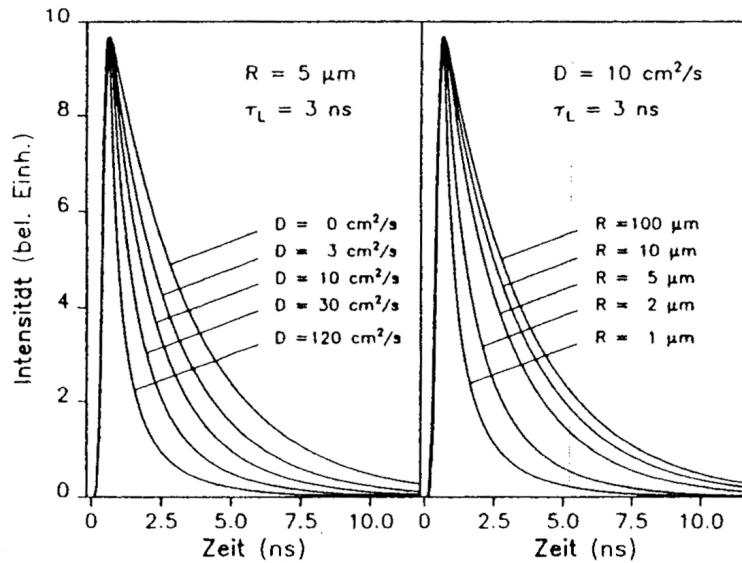


Abbildung 4.9: Theoretischer Verlauf der Lumineszenzintensität für einen festen Lochradius, jedoch unterschiedliche Diffusionskonstanten (links) und feste Diffusionskonstante, jedoch unterschiedliche Lochradien (rechts). [HIL89]

tensität mit der Zeit. Es treffen also die gleichen Aussagen zu, wie im Abschnitt 4.2 bereits getroffen.

Die Abbildung 4.9 zeigt das Intensitätsprofil der Lumineszenz für die von [HIL89] verwendete Methode für unterschiedliche Diffusionskonstanten bzw. unterschiedliche Lochradien. Die hier gezeigten Verläufe stützen die oben getroffenen Aussagen für die zu erwartenden Zerfallszeiten.

Wie im Abschnitt 4.3.2 noch gezeigt werden wird (siehe Abbildung 4.14a), hat die in [HIL89] verwendete Methode der ganzflächigen Ausleuchtung der Aperturen jedoch auch Nachteile gegenüber der in dieser Arbeit verwendeten Methode. Wie dort zu sehen ist, wird für zunehmend größere Anregungsweiten (gekennzeichnet mit s) der Abfall der Lumineszenzintensität flacher. Er gleicht sich zunehmend dem ungestörten und nur durch die Lebensdauer der Exzitonen bestimmten Zerfall an. Dies limitiert die Auflösungsgrenze für die detektierbare Diffusivität der Teilchen. Fällt diese sehr klein aus, so ist die Differenz zwischen der Lebensdauer und der Zerfallszeit sehr gering und kann somit ggf. nicht mehr unterschieden werden. Wird aber im selben Fall eine sehr kleine Anregungsfläche gewählt, so ist der Einfluss der Diffusion auf die Entwicklung der Lumineszenzintensität mit der Zeit sehr viel größer, die erhaltenen Differenzen deutlicher und somit die Sensitivität für die Diffusion verbessert. Die Verwendung eines REM mit hoher Ortsauflösung für eine akkurate Positionierung des Elektronenstrahls in das Zentrum eines Kreisgebietes und die hervorragende Fokussierbarkeit des Elektronenstrahls bietet also eine im Vergleich verbesserte Sensitivität insbesondere für Teilchen mit geringer Diffusivität.

4.3 Ableitung der Transportgleichungen

Wie bereits in den vorangegangenen Abschnitten immer wieder angeklungen ist, muss für jede der beiden vorgestellten Methoden die Transportgleichung gesondert abgeleitet werden. Diese Ableitungen werden im Folgenden dargestellt. Das theoretische Modell für die Methode der transparenten Kreisflächen (Abschnitt 4.3.2) wurde in enger Zusammenarbeit und maßgeblich von Hrn. Andrey Polyakov im Rahmen seines Aufenthaltes am Institut für Festkörperphysik an der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg erarbeitet. Für die Methode der cw-Linescans wurde das Modell bereits von mir in meiner Diplomarbeit abgeleitet, im weiteren Verlauf jedoch optimiert und erweitert um die Berücksichtigung der in Abschnitt 4.1.1 behandelten Besonderheiten und einer ggf. auftretenden Rest-Transparenz der Maskierung insbesondere im Bereich deren Kante.

4.3.1 Ableitung der Transportgleichung für cw-Linescans

Die Kontinuitätsgleichung bildet den Ausgangspunkt der hier behandelten Modellbildung und lautet allgemein in kartesischen Koordinaten:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{1}{e} \operatorname{div} \vec{j} + G(\vec{r}, t) - R(\vec{r}, t) \quad (4.10)$$

Die linke Seite gibt die Änderung der Teilchenkonzentration ∂n mit der Zeit ∂t an. Der erste Term der rechten Seite, der Divergenzterm, enthält die Stromdichte \vec{j} mit der Teilchen in den Ort \vec{r} hinein oder aus ihm hinaus gelangen. Der Faktor $\frac{1}{e}$ des Divergenztermes wird zur Erfüllung der Normierungsbedingung benötigt. $G(\vec{r}, t)$ beschreibt die Generations- und $R(\vec{r}, t)$ die Rekombinations- oder Vernichtungsrate der Teilchen am Ort \vec{r} zur Zeit t .

Die Stromdichte \vec{j} im Divergenzterm wird in zwei Anteile zerlegt, einen Diffusions- und einen Driftterm (siehe auch Abschnitt 2.7). Also einen konzentrations- und einen feldgetriebenen Anteil. Hiermit wird die Kontinuitätsgleichung zu Gleichung (4.11).

$$\frac{\partial n}{\partial t} = G(\vec{r}, t) - R(\vec{r}, t) + \operatorname{div}(\mu n \vec{E}) + D \Delta n \quad (4.11)$$

Wie im Kapitel 4.1 erläutert, erfolgt der behandelte Prozess unter kontinuierlicher Anregung im Gleichgewicht. Das heißt die Rate der Generation entspricht der Rate der Rekombination. Somit wird jede zeitliche Ableitung zu Null. Eine Abhängigkeit vom Ort $x - x_0$ hingegen bleibt bestehen.

Eine weitere Vereinfachung ergibt sich dadurch, dass der Driftanteil zu Null wird, da die betrachteten Teilchen, Exzitonen, elektrisch neutral sind. Sie werden entlang makroskopischer Felder nicht beschleunigt.

Für die Rekombinationsrate lässt sich der Relaxationszeit-Ansatz verwenden (vgl. Abschnitt 2.5). Die Rekombinationsrate lässt sich also darstellen als Anzahl von Überschussteilchen, die in dem Zeitintervall τ rekombinieren.

Unter Berücksichtigung von Gleichung (4.12)

$$\lambda^2 = D \tau \quad (4.12)$$

ergibt sich somit aus Gleichung (4.11) die zu lösende Differentialgleichung (4.13).

$$-G(x) \frac{\tau}{\lambda^2} = \frac{\partial^2}{\partial x^2} n_{Ex} - \frac{n_{Ex}}{\lambda^2} \quad (4.13)$$

mit $n_{Ex} = n(x) - n_0$.

Die Lösung von Gleichung (4.13) erhält man über die Lösung des homogenen und inhomogenen Teils der Differentialgleichung. Für letztere lässt sich eine Green'sche Funktion aufstellen und das Ergebnis somit einfach finden.

Unter Berücksichtigung physikalisch sinnvoller Bedingungen erhält man für den homogenen Teil der Differentialgleichung die allgemeine Lösung (4.14).

$$n_{Ex} = C_2 e^{-\frac{|x|}{\lambda}} \quad (4.14)$$

Da (4.14) eine Fundamentallösung des homogenen Teils der Differentialgleichung darstellt, lässt sich die vollständige Lösung der inhomogenen Differentialgleichung (4.13), welche offensichtlich der Form (4.15) (einer Green-Funktion) entspricht durch die Faltung (4.16) finden.

$$L n_{Ex}(x) = f(x) \quad (4.15)$$

$$n_{Ex}(x) = (\Upsilon * f)(x) = \int_Q \Upsilon(x-y) f(y) dy \quad (4.16)$$

L ist hierbei ein linearer Operator und Q der gemeinsame Definitionsbereich der Funktionen Υ und f .

Bevor eine vollständige Lösung der Diffusionsgleichung angegeben werden kann, wird noch die Generationsfunktion $G(x)$ definiert. Die Anregung im Material soll ideal punktförmig geschehen. Diese Forderung bedingt einen deltafunktionsartigen Verlauf der Teilchengeneration (4.17).

$$G(x) = G_0 \delta(x - x_0) \quad (4.17)$$

Gibt man die Randbedingung (4.18) für $x = x_0 = 0$ vor und ist die Überschussteilchenkonzentration durch die Einhaltung der Gleichgewichtsbedingung gegeben durch $G_0 \tau$, so erhält man als Lösung die Gleichung (4.19) mit (4.15), (4.16) und (4.17) nach Ausführung der oben genannten Faltung.

$$n_{Ex}(x_0) = G_0 \tau \quad (4.18)$$

Die vollständige gesuchte Lösung lautet somit:

$$\boxed{n_{Ex}(x) = G_0 \tau e^{-\frac{|x|}{\lambda}}} \quad (4.19)$$

Die nachstehende Abbildung 4.10 illustriert die gefundene Lösung. Es werden Teilchen in einem Punkt x_0 des Halbleiters generiert. Von hieraus diffundieren diese durch den Konzentrationsgradienten in der Umgebung auseinander. Die Teilchendichte wird dabei nach Gleichung (4.19) bestimmt vom Abstand des Generationsortes $x - x_0$ und durchläuft ein Maximum von $G_0 \tau$ bei x_0 .

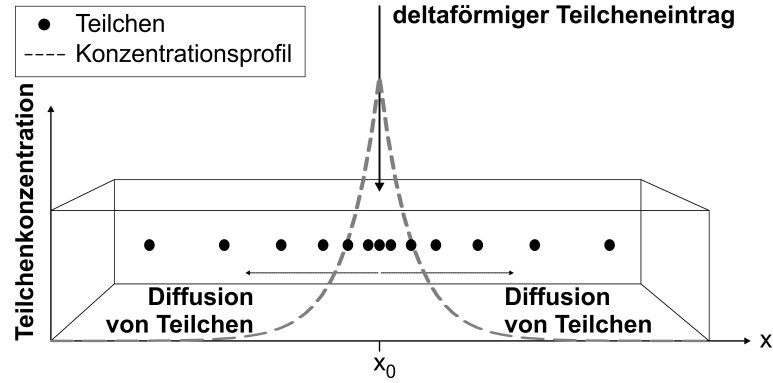


Abbildung 4.10: Schematische Darstellung des Ergebnisses nach Gleichung (4.19). Mit einer Rate von G_0 werden bei $x_0 = 0$ Teilchen punktförmig im Halbleiter generiert. Diese Teilchen diffundieren, getrieben durch einen Konzentrationsgradienten, von dem Ort ihrer Generation weg. Als Konzentrationsprofil ergibt sich ein Verlauf, welcher durch (4.19) gegeben ist (gestrichelte Linie).

Da im realen Messaufbau die Generation der zu untersuchenden Exzitonen jedoch nicht punktförmig, sondern örtlich ausgedehnt stattfindet, wird zur näherungsweisen Beschreibung dieses Umstands die punktförmige durch eine gaussverteilte Generation ersetzt. Hierzu wird die Lösung (4.19) mit einer Gaussverteilung gefaltet (siehe Gleichung (4.20)). Es ist zu beachten, dass von dieser Stelle an, entgegen der oben angeführten Notation, n_{Ex} ersetzt wird durch $n(x)$. Dennoch werden damit selbstverständlich weiterhin ausschließlich Überschussteilchenkonzentrationen beschrieben.

$$n(x) = G_0 \cdot \tau \cdot \int_S e^{-\frac{|x_0|}{\lambda}} \cdot e^{-\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma^2}} dx_0 \quad (4.20)$$

S ist der Definitionsbereich und erstreckt sich dabei von $-\infty$ bis ∞ . Mit nachfolgender Definition wird die Lösung (4.22) formuliert.

$$\gamma := \sigma \sqrt{\frac{\pi}{2}} e^{\frac{1}{2} \frac{\sigma^2}{\lambda^2}} \quad (4.21)$$

σ beschreibt die Standardabweichung in der lateralen Ausdehnung der Anregung.

$$n(x) = G_0 \tau \gamma \left\{ e^{\frac{x}{\lambda}} \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{x}{\sigma} + \frac{\sigma}{\lambda} \right) \right) \right] + e^{-\frac{x}{\lambda}} \left[1 + \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{x}{\sigma} - \frac{\sigma}{\lambda} \right) \right) \right] \right\} \quad (4.22)$$

Die nachstehende Abbildung zeigt die Änderung gegenüber dem oben erhaltenen Verlauf der Überschussteilchenkonzentration (vgl. Abbildung 4.10). Die gestrichelte Kurve verläuft nunmehr insbesondere um x_0 durch die gaussverteilte Generation verbreitert.

Bei der im Rahmen dieser Arbeit benutzten Kathodolumineszenzapparatur gibt die Betherichweite (Gleichung (4.1)) die hier genutzte Standardabweichung vor. Diese wird in Abschnitt 4.1.1 diskutiert.

Es sei an dieser Stelle nochmals in Erinnerung gerufen, dass diese Lösungen für alle Arten von Teilchen gilt, die ausschließlich aufgrund eines Konzentrationsgradienten diffundieren. Somit

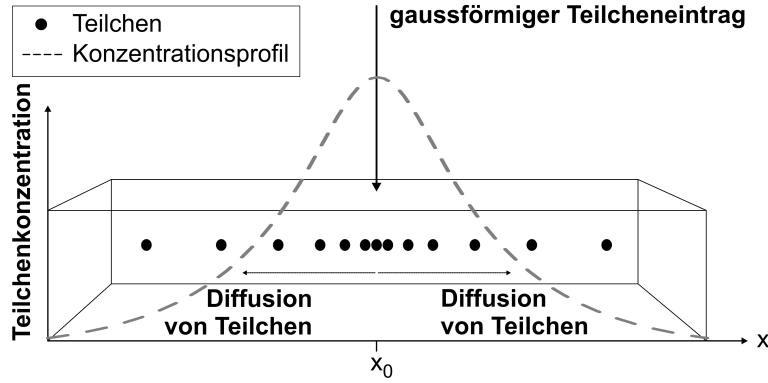


Abbildung 4.11: Schematische Veranschaulichung der Resultate zur Diffusion von Exzitonen unter gaussverteilter Anregung nach Gleichung (4.22). Die Teilchen diffundieren, getrieben durch einen Konzentrationsgradienten, von dem Ort ihrer Generation weg. Als Konzentrationsprofil ergibt sich ein Verlauf, welcher durch (4.22) gegeben ist (gestrichelte Linie).

also beispielsweise auch für die elektrisch neutralen Exzitonen.

Wie aus der Abbildung 4.11 bereits deutlich wird, findet sich in dem bisher entwickelten Modell keine Maskierung, wie sie in den vorangegangenen Abschnitten diskutiert wurde. Um diese geometrische Bedingung zu berücksichtigen, wird die gefundene Beschreibung des Diffusionsprofils entsprechend angepasst.

Aus Sicht der Gleichung (4.22) bedeutet dies, dass die erzeugten Teilchen im gesamten Halbraum von z.B. $0 \leq x_0 < \infty$ erzeugt werden, nicht jedoch im Bereich $-\infty < x_0 < 0$.

Eine genauere Betrachtung der Gleichung (4.22) zeigt, dass diese in zwei „Äste“ für jeweils $x_0 < 0$ und $x_0 > 0$ zerlegt werden kann:

$$n_-(x) = G_0\tau\gamma \left\{ e^{\frac{x}{\lambda}} \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{x}{\sigma} + \frac{\sigma}{\lambda} \right) \right) \right] \right\} \quad \text{für } x_0 < 0 \quad (4.23)$$

$$n_+(x) = G_0\tau\gamma \left\{ e^{-\frac{x}{\lambda}} \left[1 + \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{x}{\sigma} - \frac{\sigma}{\lambda} \right) \right) \right] \right\} \quad \text{für } x_0 > 0 \quad (4.24)$$

Für den Fall der Teilchengeneration im positiven Halbraum (also $x_0 > 0$) findet demnach Gleichung (4.24) Verwendung. Das zu berechnende Integral über x_0 (für die Teilchengeneration von $0 \leq x_0 < \infty$) lässt sich mittels partieller Integration lösen. Dieses liefert mit $G_0\tau\gamma = I_0$:

$$\tilde{n}_+(x) = \int_0^{\infty} I_0 \left\{ e^{\frac{x-x_0}{\lambda}} \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{x-x_0}{\sigma} + \frac{\sigma}{\lambda} \right) \right) \right] \right\} dx_0 \quad (4.25)$$

Die Lösung lautet:

$$\tilde{n}_+(x) = I_0 \left\{ \lambda e^{\frac{x}{\lambda}} \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{x}{\sigma} + \frac{\sigma}{\lambda} \right) \right) \right] + \lambda e^{\frac{1}{2} \frac{\sigma^2}{\lambda^2}} \left[1 + \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \frac{x}{\sigma} \right) \right] \right\} \quad (4.26)$$

Im Grenzfall für punktförmige Teilchengeneration muss diese Funktion wieder einen exponentiellen Verlauf annehmen. So ist $\sigma \rightarrow 0$ zu setzen und man erhält in der Tat einen reinen

exponentiellen Verlauf für $-\infty \leq x \leq 0$. Dieses wird sofort einsichtig, wenn man für $x < 0$ die Standardabweichung $\sigma \rightarrow 0$ laufen lässt. Der rechte Summand in (4.26) wird Null, der erste proportional zu $e^{\frac{x}{\lambda}}$.

Die Abbildung 4.12 zeigt für drei unterschiedliche Parameterpaarungen den zu erwartenden Verlauf anhand der Gleichung (4.26). Wird die Anregungsweite σ konstant gehalten, so erhält man für unterschiedliche Diffusionslängen λ unterschiedlich steile Verläufe der Teilchenkonzentration in Abhängigkeit vom Ort. Setzt man die Diffusionslänge λ fest, und variiert die Anregungsweite σ , so zeigt sich im Vergleich zudem eine Änderung der Krümmung im Bereich des Übergangs von Ansteigender Teilchenkonzentration zum Gleichgewichtsniveau (bei $x > 0$).

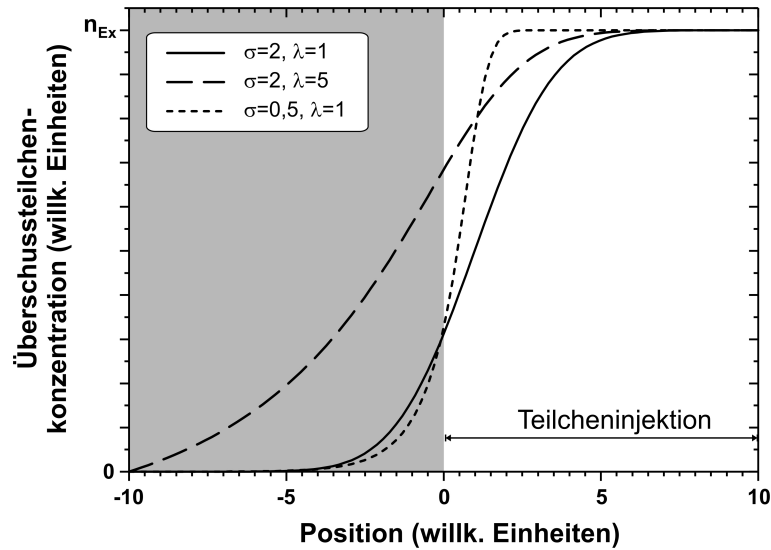


Abbildung 4.12: Simulation des erwarteten Lumineszenzintensitätsprofils im Verlauf über eine perfekte Maske/Maskenkante nach Gleichung (4.26) mit drei unterschiedlichen Parameterpaaren σ und λ .

Die Gleichung (4.26) gilt in dieser Form jedoch lediglich für ideale Maskenkanten. Das heißt, sie besitzen eine perfekte Stufenform und keinerlei Ausdehnung senkrecht zu ihrem Verlauf. Hinzu kommt, dass, wie in Abschnitt 4.1.1 diskutiert wurde, die Generationsrate unterhalb des Titans gegenüber der im unbedeckten Probenbereich reduziert ist. Auch dieser Umstand ist in der Gleichung (4.26) noch nicht berücksichtigt.

In der konkreten Umsetzung der Prozessierung der Masken werden hauptsächlich Kanten erhalten, die von der perfekten Stufenform abweichen und dafür einen zumeist nahezu linearen Anstieg haben. Um sowohl der nicht-idealen Maskenkante, als auch einer reduzierten Generationsrate unterhalb der Maskierung Rechnung zu tragen, wurde bei der Auswertung der erhaltenen Messdaten ein Korrekturterm (4.27) zu dieser Gleichung (4.26) hinzugefügt, der diesen Umstand berücksichtigt. Dieser Korrekturterm enthält sowohl die Änderung der Transmittivität für die entstehende Lumineszenz unterhalb der Maskierung in Abhängigkeit von der aktuellen Schichtdicke des Maskenmaterials, als auch die entsprechende Transparenz für die Primärelektronen (vgl. Abschnitt 4.1.1), welche auch unterhalb der Maskierung Exzitonen generieren. Zudem wurde für das Gebiet der vollständig ausgebildeten Schichtdicke des Titan der entsprechende, maximale und konstante Wert der Schichtdicke in die Betrachtung übernommen.

$$\left[h \frac{(1-Q)}{x_2 - x_1} (x_2 - x) + hQ \right] + h_1 Q \quad (4.27)$$

Die Faktoren h und h_1 dienen zum „Ein-“ und „Ausschalten“ der Funktion. Für $x_1 - x > 0$ wird $h = 1$ gesetzt, sonst $h = 0$. Für $x_2 - x > 0$ wird hingegen $h_1 = 1$ gesetzt, sonst $h_1 = 0$. Auf diese Weise ist der Korrekturterm lediglich im Bereich der Maskenkante bzw. (letzter Term in Gleichung (4.27)) im Bereich der voll ausgebildeten Maskenschicht wirksam. Der Parameter Q steht dabei für einen kombinierten Faktor für die effektive Generationsrate von Exzitonen und Transparenz für die entstehende Lumineszenz. Hier gehen also die Betrachtungen aus Abschnitt 4.1.1 ein. Entsprechende Anwendung findet diese „Optimierung“ in 5.2.1 und 5.3.1.

4.3.2 Ableitung der Transportgleichung für transparente Kreisflächen

Eine weitere Methode zur Bestimmung der Transportparameter auf optischem Weg ist die gepulste Anregung in einem festen Ort und Einschränkung des Gebietes der Auskopplung der entstehenden Lumineszenz auf eine Kreisfläche. Diese Methode wurde in Abschnitt 4.2 ausführlich beschrieben. Für diese soll nun ebenfalls die entsprechende Transportgleichung abgeleitet werden. In Zusammenarbeit, jedoch maßgeblich, wurde der hier vorgestellte Lösungsweg, sowie die Lösung der Transportgleichung von Hrn. Andrey Polyakov erarbeitet. [POL121], [POL122] Seine Lösung und sein Lösungsweg sind im folgenden dargestellt. Auch wurde später ein von Hrn. Polyakov geschriebenes Tool zur Auswertung der in dieser Arbeit präsentierten Ergebnisse verwendet.

Wie bereits im vorangegangenen Kapitel aufgegriffen, wird auch hier wieder genutzt, dass die Lumineszenzintensität $I(t)$ als Funktion der Zeit direkt proportional zur Anzahl bzw. zur Konzentration der freien Exzitonen im betrachteten, kreisförmigen Gebiet ist.

Die KL-Intensität kann also dargestellt werden als (4.28).

$$I(t) \propto \int_H c(x, y, t) ds \quad (4.28)$$

Aufgrund der geometrischen Symmetrie des Kreises, lässt sich diese Beziehung auch in Polarkoordinaten darstellen und man erhält Gleichung (4.29). Sämtliche Größen sind aufgrund der Symmetrie der erwarteten Bewegung vom Ort der Höchsten Konzentration ausgehend ausschließlich vom Abstand des Kreismittelpunktes, nicht jedoch vom eingeschlossenen Winkel abhängig.

$$I(t) \propto 2\pi \int_0^R c(r, t) r dr \quad (4.29)$$

Die Funktion $c(r, t)$ ist die Exzitonenkonzentration, wie sie im Abschnitt 3.2 für zeitaufgelöste Kathodolumineszenzmessungen definiert wurde. H ist die Kreisfläche in der verwendeten Maske, R der Lochkreisradius und r entsprechend die Radiusvariable.

In dem Moment, in dem der Elektronenstrahl dunkelgetastet wird, also keine Generation von Überschussladungsträgern bzw. Exzitonen mehr stattfindet, wird der stationäre Zustand des Gleichgewichtes aus Generation und Rekombination verlassen. Somit wird der Diffusionsprozess ebenfalls instationär und durch die entsprechende, nichtstationäre Diffusionsgleichung (4.30) beschrieben.

$$c_t = D\Delta c - \frac{c}{\tau} \quad (4.30)$$

Wobei für die Anfangsbedingung bei $t = 0$ Gleichung (4.31) gilt.

$$c(x, y, 0) = n(x, y) \quad (4.31)$$

Der Operator Δ ist definiert über $\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$. D ist die Diffusionskonstante und τ die anfängliche Lebensdauer der betrachteten freien Exzitonen. $n(x, y)$ ist entsprechend die anfängliche Exzitonenkonzentration und damit identisch zur Gleichgewichtsexzitonenkonzentration im Anregungsfall („on-pulse“ / Quasigleichgewicht).

Die Kontinuitätsgleichung in zwei Dimensionen zeigt Gleichung (4.32) und beschreibt die

Generation der Exzitonen im betrachteten Halbleitermaterial zusammen mit dem Zerfall und der Diffusion der Exzitonen. Dieser Gleichungstyp wird auch als Helmholtzgleichung bezeichnet.

$$\Delta n - \frac{n}{\lambda^2} = -G(x, y) \quad (4.32)$$

Die Funktion $n(x, y)$ beschreibt die Konzentration der Exzitonen am Ort $M(x, y)$, $\lambda = \sqrt{D\tau}$ ist die Diffusionslänge der Exzitonen und $G(x, y)$ ist die Generationsfunktion. Aufgrund des entstehenden Wechselwirkungsvolumens bzw. der Betherange wird diese Aufweitung wieder als Gauss verteilt angenommen. Dies führt zur Generationsfunktion (4.33).

$$G(x, y) = \frac{G_0 \tau \phi(x, y)}{\lambda^2} \quad (4.33)$$

Der Faktor G_0 ist die Gleichgewichtsgenerationsrate und $\phi(x, y)$ die Dichte der zweidimensionalen Normalverteilung.

Um die Lumineszenzintensität in Abhängigkeit von der Zeit nach Gleichung (4.29) zu bestimmen, müssen somit erst die Gleichungen (4.30), (4.31) und (4.32) gelöst werden.

Die Lösung der Helmholtzgleichung (4.32) in Polarkoordinaten bzw. unter Berücksichtigung der radialen Symmetrie liefert die Gleichungen (4.34) [TIK90].

$$\begin{aligned} n(r_0, \phi_0) &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^R G(\xi) K_0\left(\frac{\rho}{\lambda}\right) \xi d\xi d\eta \\ \rho &= \sqrt{r_0^2 + \xi^2 - r_0 \cos \phi_0 - \eta} \end{aligned} \quad (4.34)$$

r_0 und ϕ_0 sind der Radius der betrachteten Kreisfläche und der entsprechende Winkel zum beobachteten Ort. K_0 ist eine modifizierte Besselfunktion zweiter Gattung.

Nutzt man Gegenbauer-Polynome [BAT53] zur Beschreibung dieser Besselfunktion $K_0(\frac{\rho}{\lambda})$, so erhält man hierfür die zwei Ausdrücke (4.35).

$$K_0\left(\frac{\rho}{\lambda}\right) = \begin{cases} I_0\left(\frac{\xi}{\lambda}\right) K_0\left(\frac{r_0}{\lambda}\right) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} I_n\left(\frac{\xi}{\lambda}\right) K_n\left(\frac{r_0}{\lambda}\right) \cos[n(\phi_0 - \eta)], & r_0 < \xi \\ I_0\left(\frac{r_0}{\lambda}\right) K_0\left(\frac{\xi}{\lambda}\right) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} I_n\left(\frac{r_0}{\lambda}\right) K_n\left(\frac{\xi}{\lambda}\right) \cos[n(\phi_0 - \eta)], & \xi < r_0 \end{cases} \quad (4.35)$$

Die Funktion $I_0(x)$ ist ebenfalls eine modifizierte Besselfunktion. Diese jedoch ist von erster Gattung.

Die analytische Integration der Gleichungen (4.34) mit (4.35) ist eine Lösung der Differentialgleichung (4.32) und liefert folgende Form (siehe Gleichung (4.36)).

$$n(r_0) = I_0\left(\frac{r_0}{\lambda}\right) \int_0^{r_0} \Phi(\xi) K_0\left(\frac{\xi}{\lambda}\right) \xi d\xi + K_0\left(\frac{r_0}{\lambda}\right) \int_{r_0}^{\infty} \Phi(\xi) I_0\left(\frac{\xi}{\lambda}\right) \xi d\xi \quad (4.36)$$

Somit ist die erste Lösung gefunden.

Die Gleichung (4.30) entspricht der Wärmeleitungsgleichung mit Abklingterm bzw. Zerfallsterm. Um diese zu lösen wird die Substitution (4.38) verwendet und damit ein Cauchy-Problem für die Diffusionsgleichung (in Form der Wärmeleitungsgleichung) in zwei Dimensionen erhalten.

$$c(x, y, t) = u(x, y, t) \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right) \quad (4.37)$$

$$u_t = D(u_{rr} + U_r r^{-1}) \quad (4.38)$$

$$u|_{t=0} = n(r) \quad (4.39)$$

Diese kann in die Form (4.40) gebracht werden, also nach den Variablen aufgeteilt werden. Wird diese Form erhalten, so kann dieses als Sturm-Liouville Problem behandelt werden, zu dem bereits entsprechende Lösungen bekannt sind [TOL76].

$$u = R(r)T(t) \quad (4.40)$$

Die Funktion $R(r)$ hängt ausschließlich vom Radius r ab, die Funktion $T(t)$ ausschließlich von der Zeit t . Dies liefert somit Gleichung (4.41).

$$R'' + R'r^{-1} + \eta^2 R = 0T' + D\eta^2 T = 0 \quad (4.41)$$

Die Gleichungen (4.41) haben als partielle Lösung (4.42).

$$u_p = B(\eta)J_0(\eta r)\exp(-D\eta^2 t) \quad (4.42)$$

Die Funktion $J_0(x)$ ist wieder eine Besselfunktion erster Gattung, η entspricht den Eigenwerten der Gleichungen (4.42) und $B(\eta)$ ist eine zunächst unbestimmte Funktion, abhängig von η , also den Eigenwerten [TOL76].

Eine allgemeine Lösung der Gleichung (4.38) kann durch die Summation aller Eigenwerte von (4.41) erhalten werden. Sie ist demnach (4.43).

$$u(r, t) = \int_0^\infty B(\eta)J_0(\eta r)\exp(-D\eta^2 t)d\eta \quad (4.43)$$

Die Anfangsbedingung (4.39) für die Gleichung (4.43) führt zu der konkreten Lösung (4.44).

$$n(r) = \int_0^\infty B(\eta)J_0(\eta r)d\eta \quad (4.44)$$

Die noch unbestimmte Funktion $B(\eta)$ kann nun durch eine Hankel-Transformation definiert werden (Gleichung (4.45)). [WOL12]

$$B(\eta) = \eta \int_0^\infty n(\Upsilon)J_0(\Upsilon\eta)\Upsilon d\Upsilon \quad (4.45)$$

Die Größe Υ ist die Laufvariable für den Radius des betrachteten Lochkreises in der Ti-Maskierung. Die Integration von (4.44) und (4.45) liefert somit die finale Lösung für die gesuchte Exzitonenkonzentration $c(r, t)$ (siehe Gleichung (4.46)). Sie beschreibt die Konzentration der beobachteten Exzitonen bzw. die durch sie hervorgebrachte Lumineszenzintensität in Abhängigkeit von der Zeit und dem Durchmesser der Kreisfläche aus der diese erhalten wird.

$$c(r, t) = \frac{\exp\left(\frac{-t}{\tau}\right)}{2Dt} \int_0^\infty \exp\left(-\frac{\Upsilon^2 + r^2}{4Dt}\right) I_0\left(\frac{\Upsilon r}{2Dt}\right) n(\Upsilon) d\Upsilon \quad (4.46)$$

Um das Verhalten der Gleichung (4.46) zu prüfen, wurden einige „Simulationen“ durchgeführt, welche in den Abbildungen 4.13 und 4.14 dargestellt sind.

Entsprechend den Erwartungen ist aufgrund der Diffusion von Exzitonen unter die verwendete Schattenmaske der Abfall der Exzitonenkonzentration in dem Lochkreis um so steiler, je kleiner der Lochdurchmesser d bei fester Diffusionskonstante D und Lebensdauer τ ist (siehe Abbildung 4.13b). Wie in der Abbildung zu erkennen ist, wird für eine gewählte Diffusionskonstante von $D=0,15 \text{ cm}^2/\text{s}$ bei einem Lochdurchmesser von $d=10 \mu\text{m}$ bereits eine annähernd gerade Linie in der gewählten logarithmischen Darstellung erreicht - und damit also ein monoexponentieller Abfall. Der Verlauf nähert sich also für $d \rightarrow \infty$ dem der ungestörten Transiente an, welche durch die Lebensdauer definiert ist. Für kleinere Lochkreisdurchmesser fallen die Kurven hingegen zunächst steil ab und nähern sich bzgl. ihrer Steigungen erst im weiteren zeitlichen Verlauf bzgl. ihres Gefälles einander an. So kann durch die Wahl geeignet kleiner Lochkreisdurchmesser die Sensitivität der zu messenden Diffusivität gesteigert bzw. angepasst werden.

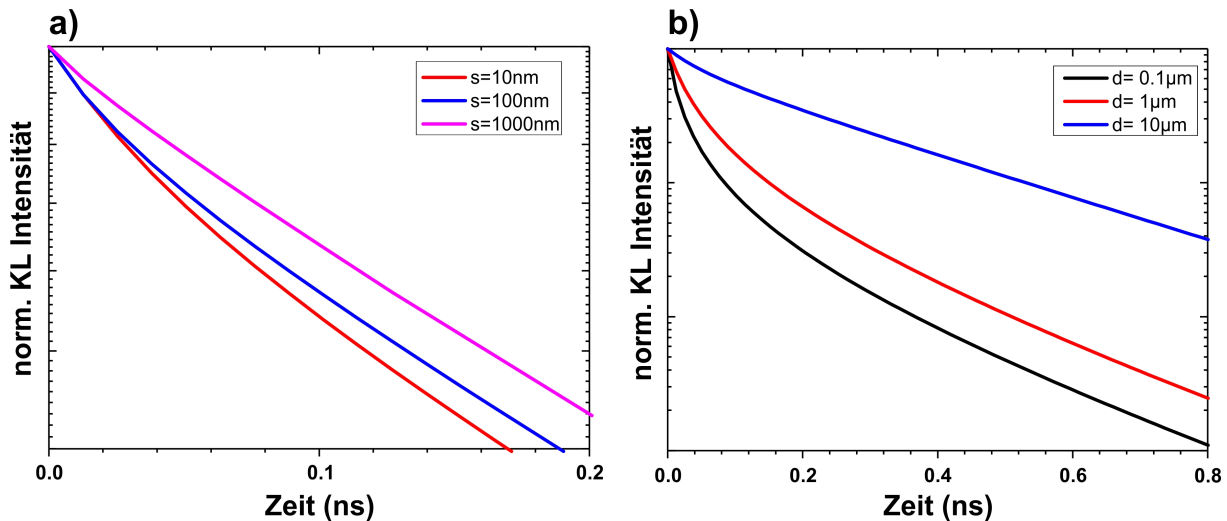


Abbildung 4.13: Simulation der Exzitonenkonzentration nach Gleichung 4.46 im zeitlichen Verlauf für a) verschiedene Anregungsweiten s und b) unterschiedliche Lochkreisdurchmesser. Die zugrundeliegenden weiteren Parameter neben denen in der Abbildung genannten sind: a) $D=1,5 \text{ cm}^2/\text{s}$, $\tau=300 \text{ ps}$, $d=1 \mu\text{m}$ und abweichend in b) $D=0,15 \text{ cm}^2/\text{s}$, $s=60 \text{ nm}$. Aus Abbildung a) wird ersichtlich, dass mit steigender Anregungsweite ein zunehmend flacherer Verlauf der Intensität erhalten wird. Er nähert sich dem ungestörten Fall an. Daraus ist abzuleiten, dass die in Bezug auf die Diffusion erreichbare Auflösung dieser Methode mit Verringerung des Anregungsvolumens verbessert wird.

Wie bereits in Abschnitt 4.2.1 diskutiert wurde, ist ein Vorteil der hier betrachteten Methode gegenüber der in [HIL89] genutzten Anregung mit einem aufgeweiteten Laser, dass mit der Fokussierung der Anregung in das Lochzentrum eine höhere Sensitivität insbesondere für geringe Diffusionskonstanten erreicht werden kann. Diese Aussage wird durch die Simulation für verschiedene Anregungsweiten gestützt. In der Abbildung 4.13a sind für verschiedene Anregungsweiten die resultierenden Abfälle der Lumineszenzintensität für feste Diffusionskonstanten D und Lochradien d , sowie Lebensdauern τ dargestellt.

Wie in der Abbildung 4.13a) zu erkennen ist, ergibt sich auch hier ein direkter Zusammenhang zwischen wachsendem Anregungsvolumen und der Krümmung bzw. der Steilheit der Zerfalls-

kurve. Je kleiner das Anregungsvolumen ist, desto steiler fällt die Kurve ab, je größer das Anregungsvolumen, desto flacher verläuft die Kurve und nähert sich dem monoexponentiellen Verlauf des „ungestörten“ Zerfalls an.

Der gleiche Zusammenhang gilt für einen festen Lochkreisdurchmesser und variierten Diffusivitäten (siehe Abbildung 4.14a). Je größer die Diffusionskonstante, also je schneller sich die Teilchen bewegen können, desto steiler ist der Abfall der Intensität mit der Zeit und je geringer die Diffusionskonstante, desto stärker nähert sich der Verlauf auch hier dem ungestörten Fall an. Dies ist damit zu begründen, dass bei einer geringen Diffusionskonstanten (z.B. $D \rightarrow 0 \text{ cm}^2/\text{s}$) alle Teilchen innerhalb des betrachteten Lochkreises rekombinieren. Es besteht dann bzgl. dem detektierbaren Licht kein Unterschied mehr zur völlig unbedeckten Probenoberfläche. Es zeigt sich also: je größer der Lochdurchmesser, desto näher liegt der Abfall der Lumineszenzintensität am ungestörten Fall und je größer die Diffusionskonstante, desto weiter entfernt sich der Abfall der Lumineszenzintensität vom ungestörten Fall. Dies entspricht 1:1 den Erwartungen und ist identisch mit dem in Abbildung 4.9 gezeigten Verläufen von [HIL89].

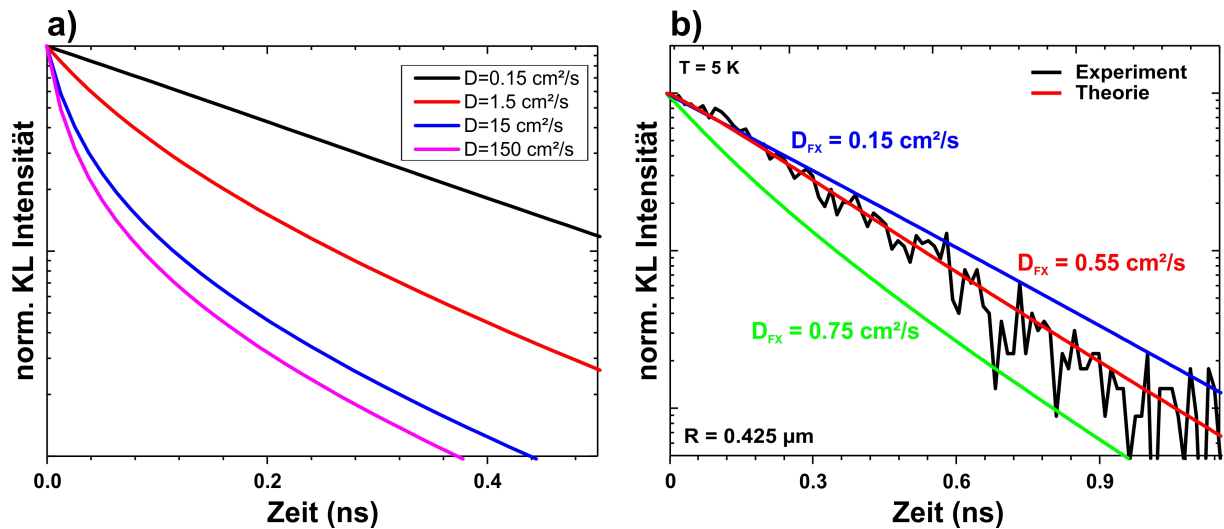


Abbildung 4.14: a) Simulation der Exzitonenkonzentration nach Gleichung (4.46) im zeitlichen Verlauf für verschiedene Diffusionskonstanten. b) zeigt die Anpassung dieser Gleichung an eine konkrete Messung. Für $D=0,55 \text{ cm}^2/\text{s}$ wird der experimentell gefundene Verlauf hervorragend reproduziert, für $D=0,15 \text{ cm}^2/\text{s}$ verläuft die Kurve leicht zu flach, für $D=0,75 \text{ cm}^2/\text{s}$ deutlich zu steil. Die zugrundeliegenden weiteren Parameter sind: a) $\tau=300 \text{ ps}$, $d=1 \text{ µm}$, $s=60 \text{ nm}$ und b) $d=0,85 \text{ µm}$, $\tau=325 \text{ ps}$, $s=200 \text{ nm}$

Die Abbildung 4.14b zeigt die Eigenschaften direkt angewandt auf eine konkrete Messung. Dargestellt ist der anfängliche Lumineszenzintensitätsabfall einer Transiente, die aus einem Lochkreis mit einem Radius von $R=0,425 \text{ µm}$ bei $T=5 \text{ K}$ erhalten wurde. Die rote Kurve wurde durch eine Anpassung der Gleichung (4.46) erhalten und folgt den experimentellen Daten sehr genau. Sie liefert $D=0,55 \text{ cm}^2/\text{s}$. Ersetzt man in dieser Gleichung unter denselben Parametern die Diffusionskonstante mit $D=0,15 \text{ cm}^2/\text{s}$, so zeigt sich ein flacherer Verlauf dieser Kurve (blau). Bei $D=0,75 \text{ cm}^2/\text{s}$ jedoch ist trotz geringem Unterschied in der Diffusionskonstante bereits ein wesentlich steilerer Verlauf erhalten worden (grün). Die entstehenden Fehler in der Auswertung werden daher zu ca. $+5 \%$ und -15% abgeschätzt.

5 Ergebnisse

5.1 Vorbetrachtungen zur Methode des cw-Linescans

5.1.1 Anregungsweite, Maskierung, Prozessierung

Im Abschnitt 4.1.1 wurde die Interaktion von Primärelektronen und Materie beleuchtet und unter anderem die Anregungsweite bzw. das Wechselwirkungsvolumen betrachtet. Diese wurde im Modell für die orts aufgelösten Untersuchungen zur exzitonischen Diffusionslänge entsprechend mit einer gausschen Aufweitung berücksichtigt (siehe 4.3.1). In diesem Abschnitt wird experimentell auf die Notwendigkeit dieser Aufweitung eingegangen und weitere Details bzgl. der orts aufgelösten Untersuchungsmethode aufgezeigt werden. Teile dieser Voruntersuchung finden sich ebenfalls bereits in meiner Diplomarbeit, wurden dort jedoch nur rudimentär bearbeitet.

Bei der untersuchten Probe handelt es sich um eine GaN-HEMT-Struktur, die epitaktisch (mittels MOVPE)¹ hergestellt wurde. Der Probenaufbau ist in der Abbildung 5.1a dargestellt. Sie besteht aus einem $\text{Al}_{0,27}\text{Ga}_{0,73}\text{N}$ Top-Layer mit einer Schichtdicke von $d_1=20$ nm, darunter wurde eine $d_2<1$ nm dicke Aluminiumnitridschicht (AlN) integriert, gefolgt von einer $d_3=1,55$ μm dicken GaN-Schicht. Zwischen dieser und dem verwendeten Saphir-Substrat wurde eine Nukleations- und Pufferschicht AlN abgeschieden. Die Dicke dieser Schicht ist nicht bekannt, dürfte jedoch, wie die obere AlN-Schicht, weniger als 1 nm betragen und wird unter anderem zur Reduktion von Verspannungen eingesetzt, die sich aus den unterschiedlichen Gitterkonstanten des Substrats und des darauf aufgewachsenen GaN ergeben.

Die hier interessierende Schicht ist das $d_3=1,55$ μm dicke Galliumnitrid, dessen Lumineszenz der freien Exzitonen betrachtet wurde. In der Abbildung 5.1b findet sich zudem die FEREM-Aufnahme eines SE-Kontrastes an der Bruchkante einer auf der Probe abgeschiedenen, prozessierten Titanmaskierung. Wie deutlich zu erkennen ist, beträgt die Weite der Kante $w=130$ nm. Die Schichtdicke beträgt $d=160$ nm und entspricht damit exakt jener Schichtdicke, die im Abschnitt 4.1.1 als bester Kompromiss aus Transparenz für die Primärelektronen und Undurchlässigkeit für die entstehende Lumineszenz der Probe herausgearbeitet wurde.

Die Versuche wurden bei einer Strahlstromstärke von ca. $I=870$ pA durchgeführt. Die Proben-temperatur betrug dabei $T=80$ K, da in diesem Temperaturbereich bereits einige der gebundenen Exzitonen zu freien Exzitonen übergehen und damit deren Anzahl erhöhen. Die bei einem Linescan grundsätzlich in jedem Punkt der Linie aufgenommenen Kathodolumineszenzspektren sind in der Abbildung 5.2 für verschiedene Beschleunigungsspannungen (Primärelektronenenergien) dargestellt. Sie wurden erhalten durch die Summation aller Einzelspektren eines Linescans (mit insgesamt 300 Punkten auf einer Distanz von ca. $4,5$ μm) aus dem Bereich des nicht vom Titan bedeckten Gebiets, wobei der Linescan zu einem größeren Teil durch den Bereich des bedeck-

¹Hergestellt vom Ferdinand-Braun-Institut, Leibniz-Institut für Höchstfrequenztechnik in Berlin

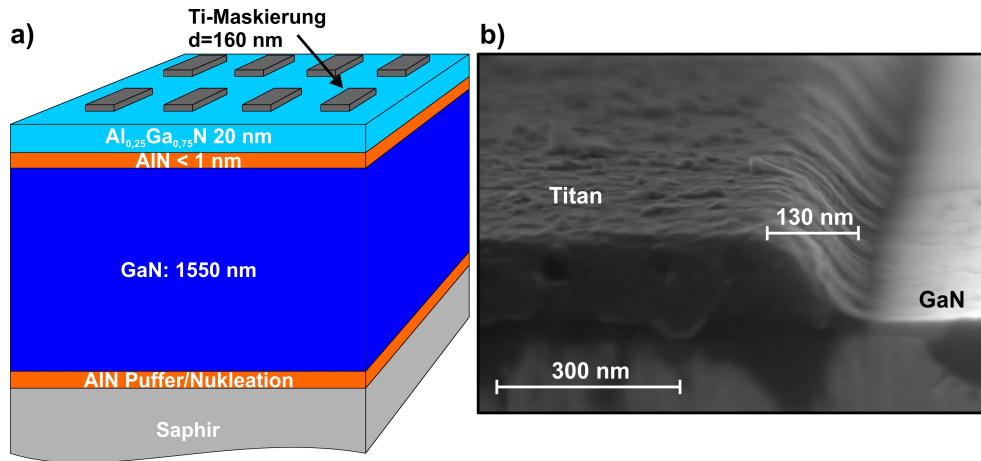


Abbildung 5.1: a) Schematische Darstellung des Probenaufbaus und b) SE-Kontrastbild einer FE-REM-Aufnahme an der Bruchkante einer Ti-Maske. Die Flanke der Maske hat eine Ausdehnung von ca. $w=130\text{ nm}$, die Schichtdicke beträgt $d=160\text{ nm}$.

ten Gebiets führte. Anhand dieser Spektren wurde die spektrale Position der freien Exzitonen des betrachteten GaN ermittelt. Die entsprechende Position wurde mittels Linie im Graphen markiert und mit FX beschriftet. Neben diesem Rekombinationskanal findet sich zudem die Lumineszenz der an neutrale Donatoren gebundenen Exzitonen (D^0X). Dieser Übergang dominiert das gezeigte Spektrum für alle gewählten Beschleunigungsspannungen deutlich.

Direkt einzusehen ist, dass für sämtliche betrachtete Primärelektronenergien die spektralen Positionen der beiden Übergänge (FX und D^0X) fest ist. Einzig das Spektrum zugehörig zur Beschleunigungsspannung $V_{Acc}=30\text{ kV}$ weicht hiervon ab und lässt sich durch eine Kombination aus Temperaturanstieg und hoher erzeugter Überschussladungsträgerkonzentration erklären, welche zu einer Bandrenormalisierung führt und damit die Übergangsenergien reduziert (Rotverschiebung der Lumineszenz).

Die Übergangsenergie der gebundenen Exzitonen liegt bei $E_{D^0X} = 3,493\text{ eV}$, die der freien Exzitonen bei $E_{FX} = 3,503\text{ eV}$, jeweils für eine Probertemperatur von $T=80\text{ K}$.

Wie bereits in Kapitel 4.1.1 deutlich wird, variiert das Wechselwirkungsvolumen, das Bethe-Volumen, mit der Energie der Primärelektronen systematisch und damit folglich auch die örtliche Auflösung. Das Anregungsvolumen wird bei zunehmender Beschleunigungsspannung (V_{Acc}) also größer, die Exzitonendifusionslänge jedoch bleibt aufgrund der dem Halbleiter innewohnenden Eigenschaften konstant. Zur Erinnerung: wird also ein Profil nach Abbildung 4.12 aufgenommen, so erhält man eine Faltung aus Anregungsvolumen und Diffusionslänge im Bereich der Maskenkante von der Art (5.1).

$$\lambda(V_{Acc}) \propto \lambda \cdot R_{Bethe}. \quad (5.1)$$

Selbstverständlich ersetzt diese Darstellung nicht die Gleichung (4.26), die den gesamten Intensitätsverlauf der Lumineszenz für den Linescan und damit den Exzitonentransport vollständig darstellt. $\lambda(V_{Acc})$ steht für die vermeintliche Diffusionslänge, die aus den Anstiegen der Linescans erhalten wird, wenn auf diese lediglich Gleichung (4.19) angewendet wird und λ für die „tatsäch-

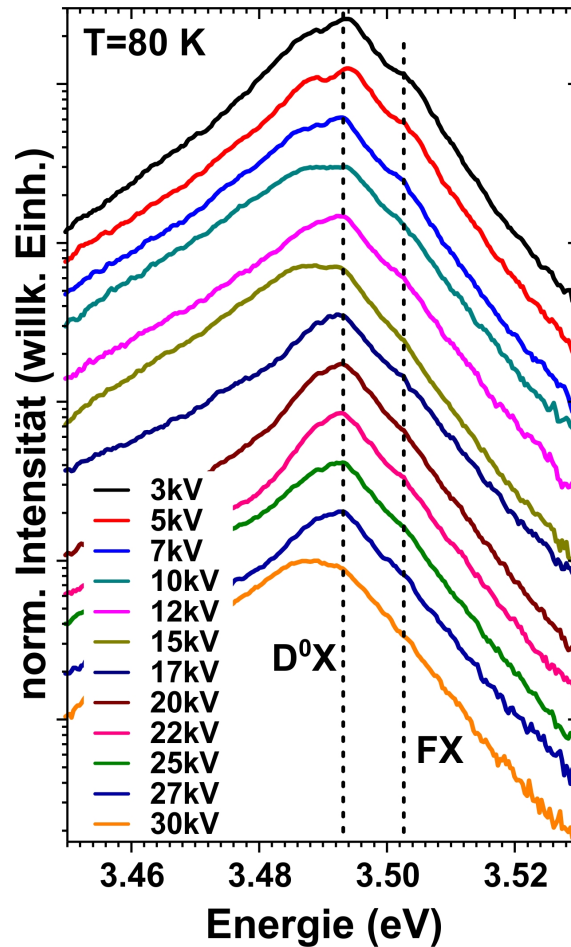


Abbildung 5.2: Wasserfalldarstellung der aus den Linescans erhaltenen KL-Spektren für unterschiedliche Beschleunigungsspannungen bei einer Proben temperatur von $T = 80 \text{ K}$. Die spektrale Position des freien Exzitons liegt bei etwa $E_{Ex} = 3,503 \text{ eV}$.

liche“ Diffusionslänge. Die Abbildung 5.3a zeigt den Verlauf der Lumineszenzintensität zu jeder betrachteten Beschleunigungsspannung der senkrecht über die Maskenkante verlaufenden Lumineszenz der freien Exzitonen. Es ist umgehend ersichtlich, dass sich ein direkter Zusammenhang zwischen dem Anstieg und der zugrundeliegenden Beschleunigungsspannung ergibt, denn außer der Beschleunigungsspannung wurde kein weiterer Parameter geändert.

Mit zunehmender Primärelektronenenergie verlaufen die Graphen zunehmend flacher, was eine höhere Diffusionslänge suggeriert, jedoch tatsächlich ausschließlich mit dem Anwachsen des Generationsvolumens zusammenhängt. Dieser Zusammenhang wird ebenfalls von der Gleichung (4.26) reproduziert bzw. vorhergesagt. Die Position der Kante der Maskierung, welche sich in dieser Gleichung wiederfindet (mit x_0 benannt), wurde aus dem SE-Kontrast des Linescans ermittelt. Dieser wird bei der Aufnahme parallel detektiert und in derselben Datei abgespeichert. Die Abbildung 5.3b zeigt einen solchen SE-Kontrast aus der Messung mit einer Beschleunigungsspannung von $V_{Acc} = 10 \text{ kV}$. Im Umfeld des Maximums des SE-Kontrastes befindet sich die Maskenkante. Dieser hohe Wert des SE-Kontrastes rührt vom Kanteneffekt her und wurde bereits in Abschnitt 3.1 erläutert.

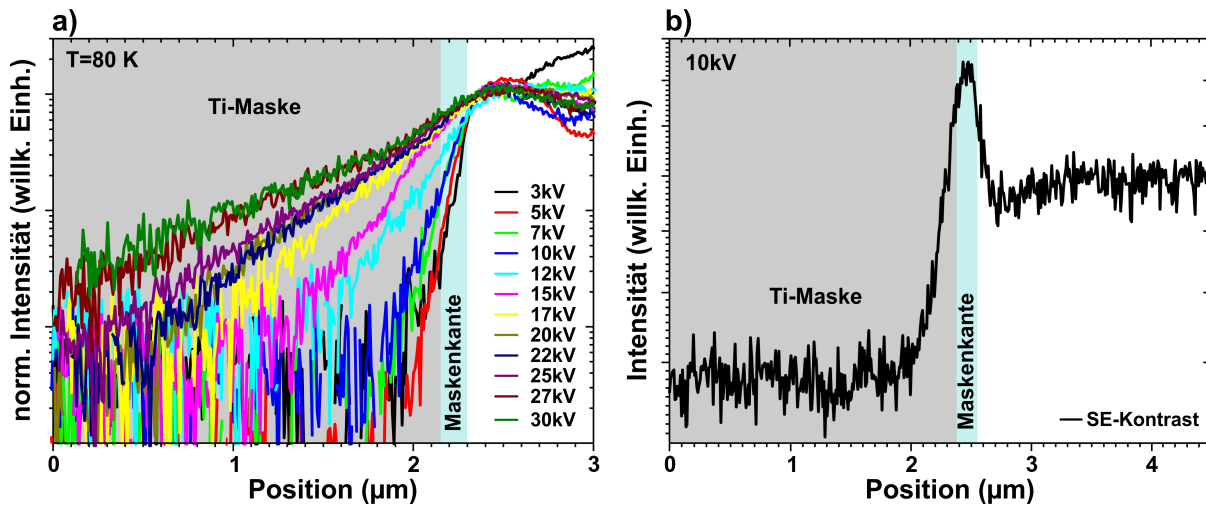


Abbildung 5.3: a) Intensität der Lumineszenz der freien Exzitonen in Abhängigkeit von der Position senkrecht zur Maskenkante bei $T=80\text{ K}$ für verschiedene Beschleunigungsspannungen. b) Darstellung der Intensität des SE-Signals in Abhängigkeit vom Ort entlang einer Senkrechten zur Maskenkante. Das Maximum im SE-Signal gibt die Position der Maskenkante an.

Ebenfalls zeigt die Abbildung 5.3a ein weiteres Ansteigen der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen im bereits nicht mehr von der Maske bedeckten Gebiet der Probe für Werte größer als $x=2,3\ \mu\text{m}$. Dieser Umstand ist der Tatsache geschuldet, dass sich die Exzitonen, welche direkt in der Umgebung der Maskenkante erzeugt wurden, selbstverständlich in sowohl positive als auch negative Richtungen der x-Achse bewegen und somit unter die Maskenkante diffundieren können. Erst mit zunehmendem Abstand von der Maske und dessen Kante erreicht keines der erzeugten Exzitonen mehr die Maskierung und es stellt sich eine weitestgehend konstante Intensität der Lumineszenz ein - die des „ungestörten“ Falls.

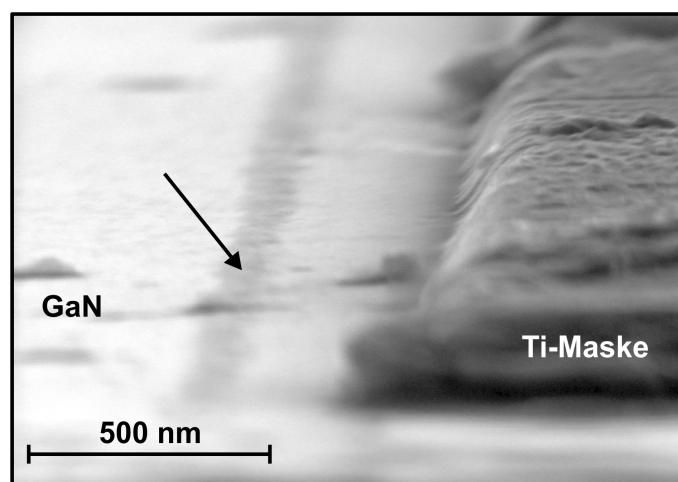


Abbildung 5.4: FE-REM-Aufnahme an einer Maskenflanke in dessen Vorhof ein deutlicher Morphologie- und Kontrastunterschied zum umliegenden Gebiet sichtbar ist (Pfeil). Vermutlich hervorgerufen durch verbliebene Fotolackreste von der Ti-Masken-Prozessierung.

Die in dieser Untersuchung auftretenden Fluktuationen der Lumineszenzintensität im Bereich

der unmaskierten Probenoberfläche (also für $x > 2,5 \mu\text{m}$) werden möglicherweise hervorgerufen durch Inhomogenitäten der lateralen Kristallqualität, den lokalen Schwankungen der Konzentration ungewollter Dotierungen und ggf. nicht exakten Positionierung des Linescans an immer ein und derselben Stelle der betrachteten Maske. Ferner können auch oberflächliche Anlagerungen (Kontamination) wie Staub oder ausfrierende Restgase im Probenraum Fluktuationen der Lumineszenzintensität verursachen. Sehr wahrscheinlich ist jedoch, dass von der Prozessierung zurückbleibende Lack- oder Titanreste die größten Auswirkungen auf die Lumineszenzintensität haben. Bereits kleinste Abweichungen können bzgl. der Intensität deutlichen Einfluss haben, wie zahlreiche Messungen gezeigt haben. In diesem Fall erreichen die Schwankungen etwa eine halbe Größenordnung. Die Ursache für die in diesem Bereich befindlichen Strukturen (möglicherweise Überreste von der Prozessierung - siehe Abbildung 5.4) konnte nicht abschließend geklärt werden. Es drängt sich jedoch der Verdacht auf, dass dies mit einer „unscharfen“ Maskierung zusammenhängt. In der Abbildung 5.1 ist bei genauerem Hinsehen erkennbar, dass die untere Kante der Ti-Schicht eine fluktuierende Weite besitzt und allmählich „ausläuft“ anstatt abrupt zu enden. Zudem verlaufen diese „Strukturen“ nicht zwangsläufig geradlinig, sondern scheinen zum Teil schräg zur Maskenkante zu verlaufen. Dies könnte ein abermaliges Absinken der Lumineszenz im Randbereich erklären und konnte auch an diversen weiteren Proben mit wesentlich zerklüfteteren und breiterem Randbereich ebenfalls beobachtet werden. Die Abbildung 5.4 zeigt einen anderen Ausschnitt der betrachteten Probe in einer etwas geringeren Vergrößerung. Hier ist ein deutlicher Vorhof erkennbar, der die Probenoberfläche zu kontaminieren scheint und offenbar durch die Prozessierung verursacht wurde. Diese Art von Vorhof konnte ebenfalls bei diversen anderen untersuchten Proben beobachtet werden. Dabei lag keine Abhängigkeit vom verwendeten Probenmaterial (GaN oder ZnO) vor. Dieser Vorhof hat üblicherweise etwa die Ausdehnung, die in der Abbildung 5.3 als Fluktuationsbreite der Lumineszenzintensität im unmaskierten Bereich auftritt. Im vorliegenden Fall also etwas weniger als $s=500 \text{ nm}$. Die Beschaffenheit dieses Vorhofes konnte leider nicht bestimmt werden, jedoch könnte es sich nach Ansicht von [ANA08] um Lackreste handeln. Erneute Reinigungsvorgänge allerdings führten nicht zu einer Reduktion oder einer sichtbaren Veränderung des Auftretens dieser Vorhöfe. Diese Vorhöfe können zudem in ihrer Ausprägung (stark/schwach) deutlich von Ort zu Ort und Probe zu Probe schwanken, so dass die hier verwendete Methode aufgrund der notwendigen Prozessierung der Proben große Schwierigkeiten bedeutet. Insbesondere, wenn die Lumineszenzintensität deshalb besonders stark fluktuiert.

Die Abbildung 5.5 zeigt den Vergleich der aus dem Anstieg der Lumineszenzintensität im Bereich der Maskenkante ermittelten Diffusionslänge (schwarze Kurve) erhalten aus der Anpassung einer Exponentialfunktion an den Verlauf der Lumineszenzintensität im Bereich der Maskenkante und den nach Gleichung (5.1) berechneten Werten der Faltung aus dem Anregungsvolumen zur jeweiligen Beschleunigungsspannung und dem Anstieg der Lumineszenzintensität (vermeintliche Diffusionslänge λ_{Acc}) bei 7 kV. Die eingangs besprochene Funktion (4.26) fand in diesem Fall keine Anwendung, da hier lediglich der systematische Zusammenhang aus Anstieg und Anregungsvolumen aufgezeigt werden sollte. Wie hier leicht zu erkennen ist, wird die Entwicklung des erhaltenen Anstiegs der Lumineszenzintensität im Bereich der Maskenkante maßgeblich durch das zugrundeliegende Anregungsvolumen bzw. dessen Radius bestimmt. Die im Grundlagenkapitel 4.3 mit in den Lösungen der Diffusionsgleichungen berücksichtigten Anregungsweiten

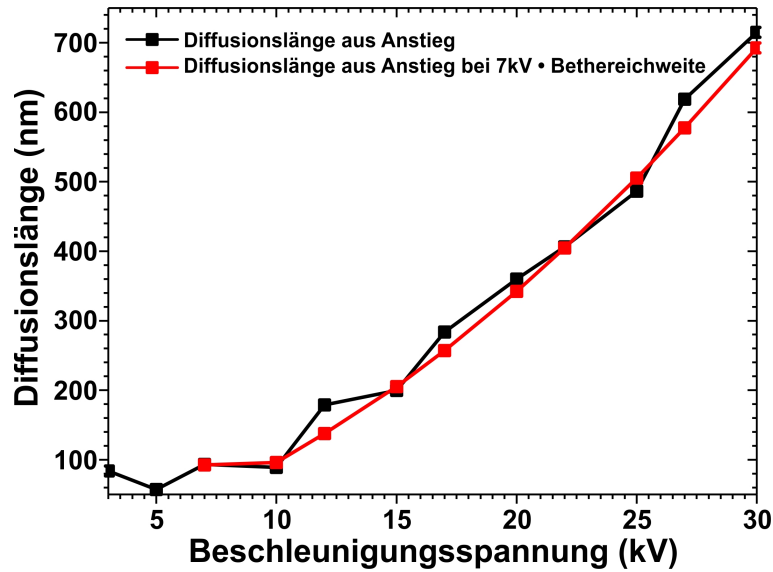


Abbildung 5.5: Darstellung der Diffusionslänge der freien Exzitonen in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung. Schwarze Punkte: erhalten aus numerischer Anpassung der Linescans mit Gleichung (4.26), rote Punkte: erhalten aus Verwendung von $\lambda(7\text{ kV})$ und Gleichung (5.1), sowie (4.1) und (4.3).

erweist sich somit als wichtige Notwendigkeit zur Bestimmung der Diffusionslänge der beobachteten Exzitonen. Unterlässt man also die Berücksichtigung des Anregungsvolumens, so ergeben sich mitunter erheblich größere Werte für die ermittelten, vermeintlichen Diffusionslängen.

Zudem zeigt die Auswertung bei kleinen Beschleunigungsspannungen eine Diffusionslänge gleich der Weite der Maskenkante. Dies zeigen auch weitere Messungen an dieser Probe, so dass hier aufgrund der Eigenschaften der Probe und der Maskenkante ohnehin keine Aussage über die Diffusionslänge λ der freien Exzitonen gemacht werden kann, außer, dass λ kleiner ist als die Systemauflösung, begrenzt durch die Maskenkante mit einer Weite von $\lambda < w = 130\text{ nm}$.

5.1.2 Abschätzung der apparativen und methodischen Auflösungsgränze

Ausgehend von einer perfekten Maskenkante (also optimal stufenförmig) gilt es zu klären, welche Diffusionslänge mit der verwendeten Kathodolumineszenzapparatur überhaupt noch erfasst werden kann. Aufgrund der wenigen Freiheitsgrade zur Anpassung des Systems an die Materialeigenschaften bei der orts aufgelösten Untersuchungsmethode ist diese Fragestellung essenziell. Ganz anders verhalten sich hingegen die Dinge bei der Methode der transparenten Kreisflächen. Hier lässt sich durch Variation der Lochdurchmesser die „Auflösung“ beeinflussen. Maskenkanten jedoch, steiler als stufenförmig, sind nicht möglich und damit dieses Verfahren vergleichsweise unflexibel einsetzbar.

Um eine Abschätzung geben zu können, welche Diffusionslänge die kürzeste ist, die mit der vorgestellten Methode und der verwendeten Apparatur detektiert werden kann, müssen sowohl die Weite der konkreten Maskenkante als auch das Anregungsvolumen betrachtet werden. Das Anregungsvolumen ist jedoch weitestgehend aufgrund der bereits mehrfach beschriebenen Mindestbeschleunigungsspannung der Primärelektronen von rund $V_{Acc}=7\text{ kV}$ vorgegeben. Kleinere Beschleunigungsspannungen sind nicht möglich, da hier keine ausreichende Transparenz der Ti-Maske für die Elektronen mehr gegeben ist. Größere Beschleunigungsspannungen hingegen reduzieren die Ortsauflösung aufgrund der größeren Betherreichweite.

Wie im vorangegangenen Abschnitt zu sehen war, liegt die Weite der Maskenkante im Bereich von etwa $w=130\text{ nm}$. Nennenswert bessere Werte wurden im Projektzeitraum nicht erreicht, so dass diese Weite eine erste untere Abschätzung für die kürzeste noch detektierbare Diffusionslänge darstellt. Dennoch soll eine Abschätzung für die Methode gegeben werden, da durchaus die Möglichkeit besteht, dass mittels verfeinerter Prozessierungsschritte, die Kantenweite noch reduziert werden kann.

Um die untere Grenze der Diffusionslänge also ausschließlich auf die Methode und die verwendete Apparatur zu beziehen wurde aus Querschnittsaufnahmen der Hell-Dunkel-Kontrast des SE-Signals ausgewertet. Stellvertretend für das optische Signal wurde also die Erzeugung von Sekundärelektronen genutzt. Dieser Hell-Dunkel-Kontrast wurde am Übergang Probenmaterial zu Titanschicht an der oben beschriebenen Probe untersucht und für verschiedene Proben Temperaturen analysiert. Die Weite des Übergangs sollte sich dabei auf wenige Atomlagen begrenzen. Aufgrund der Unabhängigkeit des SE-Kontrastes von der Proben Temperatur konnte so eine gewisse statistische Aussage über mehrere Messreihen erfolgen. Über die Ableitung des Kontrastes konnte eine Standardabweichung angegeben werden, der die kleinste Weite noch voneinander unterscheidbarer Objekte anhand ihres SE-Signals erlaubt. In der Abbildung 5.6 sind die Ergebnisse dieser Auswertung zusammengefasst. Es zeigt sich, dass bei einer Beschleunigungsspannung von $V_{Acc}=7\text{ kV}$ die untere Grenze möglicher lateraler Detektion auf $\sigma=96\text{ nm}$ beschränkt ist. Liegt also die Diffusionslänge unterhalb dieser Länge, so ist auch bei perfekten Maskenkanten mit dieser Methode und der hier verwendeten Kathodolumineszenzapparatur keine Aussage zur Diffusionslänge möglich. Eine Vielzahl von Proben, die im Rahmen der Projektarbeit untersucht wurden, zeigen jedoch ganz offensichtlich Diffusionslängen innerhalb oder unterhalb dieser Detektionsgränze. Neben dem Anspruch, die kristalline Qualität des Probenmaterials zu erhöhen oder andere Maßnahmen zu ergreifen, die die Diffusionslängen erhöhen, ist so die Motivation entstanden, eine alternative Untersuchungsmethode für die verwendete Ap-

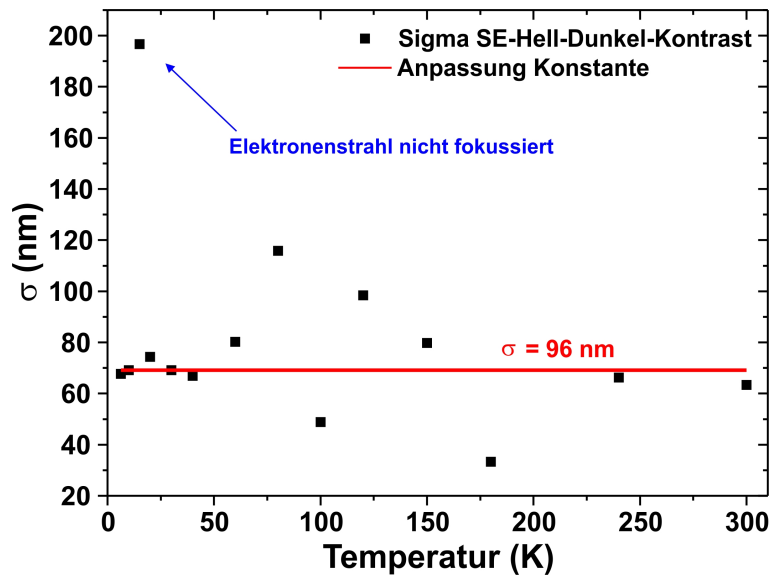


Abbildung 5.6: Darstellung der Standardabweichungen im Hell-Dunkel-Kontrast des SE-Signals am Übergang AlGaIn-Oberfläche zu Titan-Maske in Cross-Section für unterschiedliche Messdurchgänge bei verschiedenen Temperaturen. Der Mittelwert der Standardabweichung beträgt $\sigma=96$ nm. Bei einer Temperatur von $T=15$ K wurde der Elektronenstrahl nicht optimal auf die Probe fokussiert, die ermittelte Standardabweichung liegt hier bei $\sigma(T=15$ K)=196 nm

paratur zu etablieren. Diese wurde in Abschnitt 4.2 vorgestellt und findet in den nachfolgenden Abschnitten Anwendung.

Wie aus der Abbildung 5.6 entnommen werden kann, ist es ebenfalls von erheblicher Wichtigkeit, wie gut die Elektronen des Rasterelektronenmikroskops fokussiert werden (siehe Abb. 5.6: $\sigma(15$ K) ≈ 200 nm). So halbiert sich die Auflösung schnell bei einer leichten Defokussierung, welche im „Live-Bild“ des SE-Kontrastes kaum wahrnehmbar war. Insbesondere im Hinblick auf die Berücksichtigung der Anregungsweite in den Transportgleichungen kann dies einen deutlichen Einfluss auf das erzielte Ergebnis haben. Es ist also von besonderer Wichtigkeit, bei den Arbeiten mit dem REM (nicht nur im Falle der Analyse des exzitonischen Transports) der optimalen Fokussierung der Elektronen hohe Aufmerksamkeit zu schenken und äußerst sorgfältig zu arbeiten.

5.2 Transportuntersuchungen an dickem, freistehendem HVPE GaN

5.2.1 Methode 1: cw-Linescans

Die vorliegende Probe wurde mittels HVPE (Hydride Vapor Phase Epitaxy - Hydridgasphasenepitaxie) am Ferdinand-Braun-Institut, Leibniz-Institut für Höchstfrequenztechnik in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Markus Weyers hergestellt. Dabei wurde die Schichtdicke auf ca. 400 μm getrieben, so dass eine Ablösung vom Substrat erfolgte und der obere Bereich durch Ausheilen von strukturellen Defekten über die Schichtdicke nur minimal von diesen durchzogen ist. Die hohe Qualität dieser Probe bestätigen Kathodolumineszenzuntersuchungen, welche eine hohe Lumineszenzintensität bereits bei geringen Anregungsdichten, sowie eine hohe Lebensdauer der freien Exzitonen aufzeigen. Dennoch zeigt sich, dass die erhaltenen Spektren auch hier dominiert werden von der Lumineszenz an neutrale Donatoren gebundener Exzitonen (siehe Abbildung 5.8).

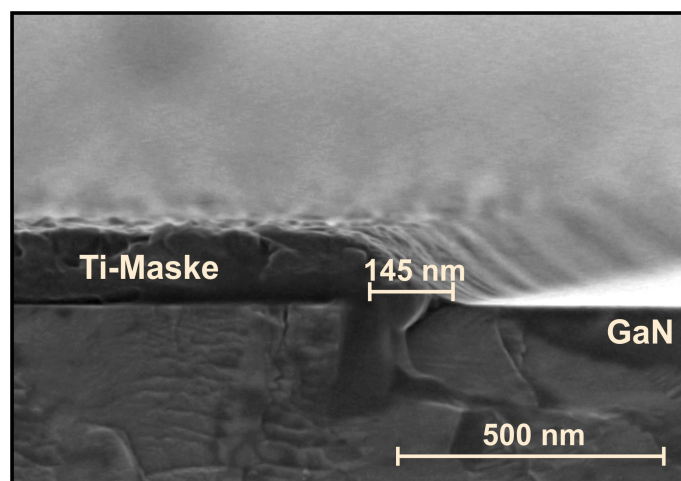


Abbildung 5.7: Cross-Section-FE-REM-Aufnahme der untersuchten HVPE-GaN-Probe an einer Ti-Maskenkante. Die Ausdehnung der Maskenflanke beträgt rund $w=145$ nm, die Dicke der Titan-Schicht rund $d=155$ nm.

Die Probenoberfläche wurde entsprechend den Ausführungen des Abschnitts 3.3 mit Titanmasken versehen, welche eine Schichtdicke von $d=155$ nm aufweisen. Die Abbildung 5.7 zeigt den SE-Kontrast an einem für diese Probe repräsentativen Querschnitt, die Kante hat eine Ausdehnung von $w=145$ nm.

Die Kathodolumineszenzuntersuchungen wurden bei einer Primärelektronenenergie von $E=7$ keV (entspricht einer Anregungsweite/-tiefe von ca. $R_e=700$ nm) und einem Strahlstrom von $I=640$ pA durchgeführt. Sämtliche Untersuchungen wurden für verschiedene Proben Temperaturen durchgeführt. Die Abbildung 5.8 zeigt die aufgenommenen Spektren aus dem unmaskierten Probenbereich für verschiedene Temperaturen zwischen $T=5$ K und $T=300$ K. Bei der tiefsten Temperatur ($T=5$ K) findet sich bei einer Energie von $E_{D^0X}=3,47$ eV der Übergang

von an neutrale Donatoren gebundene Exzitonen. Dieser Übergang dominiert das Spektrum bis zu einer Temperatur von ca. $T=120\text{ K}$ ($E_{therm}\approx 10,3\text{ meV}$). Mit weiter steigender Temperatur überwiegt hingegen die Lumineszenzintensität freier Exzitonen. Die Übergangsenergie der freien Exzitonen bei $T=5\text{ K}$ beträgt $E_{FX}=3,477\text{ eV}$. Ebenso wie die Lumineszenz der gebundenen Exzitonen, so verschiebt auch die Lumineszenz der freien Exzitonen (siehe gestrichelte Linie in Abb. 5.8) mit zunehmender Temperatur Richtung kleinerer Energien.

Energetisch unterhalb der D^0X Lumineszenz findet sich ein weiterer Peak, welcher von TES- D^0X herrührt [MOR08]. Es handelt sich also um einen Übergang donatorgebundener Exzitonen, bei denen der Donator nach der Rekombination des Exzitons in einem angeregten Zustand zurück bleibt. Die spektrale Position liegt bei $T=5\text{ K}$ bei etwa $E_{TES}=3,452\text{ eV}$.

Mit der Kenntnis der spektralen Position der freien Exzitonen wurden die Untersuchungen zu Lebensdauer und Diffusionslänge der freien Exzitonen bei dieser Wellenlänge durchgeführt. Im folgenden werden zunächst die orts aufgelösten Messungen zur Ermittlung der Diffusionslänge und anschließend die zeitaufgelösten Messungen zur Ermittlung der anfänglichen Lebensdauer aufgezeigt, um mit diesen Größen die zur jeweiligen Probertemperatur gehörige Diffusionskonstante und Beweglichkeit zu berechnen.

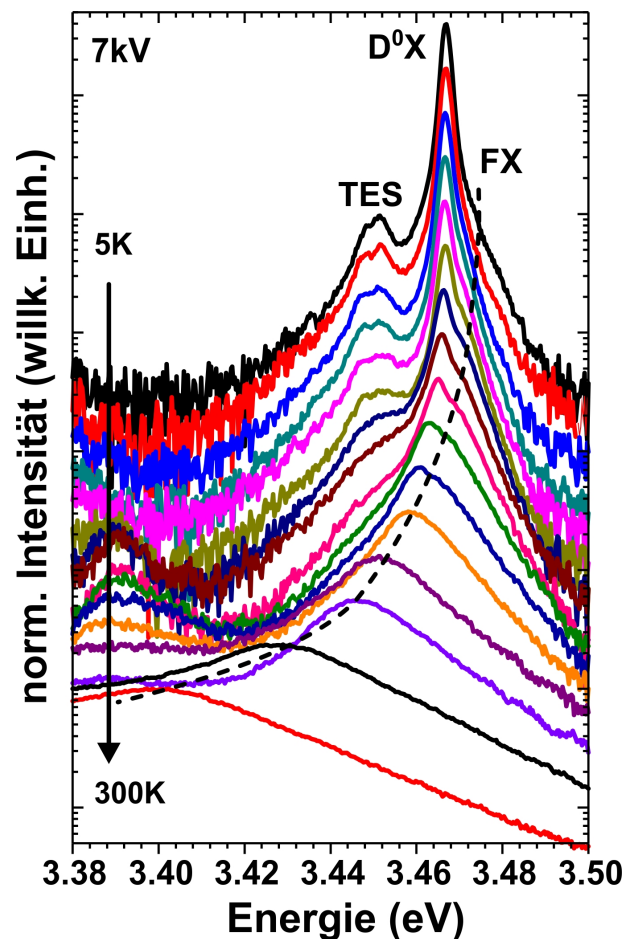


Abbildung 5.8: Integrale KL-Spektren für den betrachteten Temperaturbereich von $T=5\text{ K}$ bis $T=300\text{ K}$. Die spektrale Position des freien Exzitons schiebt mit zunehmender Temperatur zu kleineren Energien (gestrichelte Linie). Energetisch unterhalb der freien Exzitonen (FX) befindet sich die Lumineszenz von D^0X und hierunter wiederum die Lumineszenz der zugehörigen TES.

Die Abbildung 5.9a zeigt die örtliche Änderung der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen senkrecht zur betrachteten Maskenkante für drei verschiedene Temperaturen. Der Bereich der voll ausgeprägten Titanschicht ist grau, die Ausdehnung und Position der Maskenkante ist blau markiert. Die Position der Maskenkante wird dabei aus dem simultan zu dem Lumineszenzsignal aufgenommenen SE-Kontrast (Abbildung 5.9b) bestimmt.

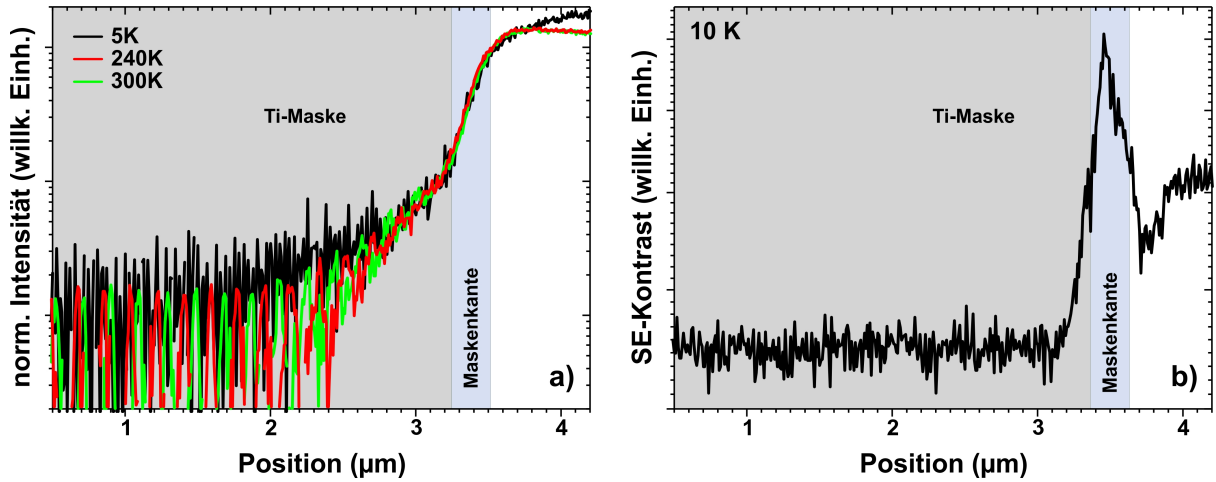


Abbildung 5.9: a) Lumineszenzintensität der freien Exzitonen aus Linescans senkrecht zur Maskenkante für Temperaturen von $T=5\text{ K}$, $T=240\text{ K}$ und $T=300\text{ K}$. b) SE-Kontrast zugehörig zum Linescan bei $T=10\text{ K}$. In beiden Abbildungen ist die Position der Maskenkante blau, der Bereich der vollständig ausgebildeten Titanschicht grau hinterlegt.

Vergleicht man die Anstiege der Lumineszenzintensität (Abb. 5.9a) in den Linescans innerhalb des Bereichs der Maskierung (graue Markierung), so erkennt man einen eindeutig mit der Temperatur variierenden Anstieg. Einen äußerst flachen Verlauf weist die Kurve des Linescans für $T=5\text{ K}$ (schwarze Kurve) auf. Dies deutet auf eine große Diffusionslänge hin. Der Anstieg der Kurve bei $T=300\text{ K}$ hingegen verläuft wesentlich steiler, die Lumineszenzintensität fällt mit zunehmender Entfernung von der Maskenkante (Richtung kleinerer Werte für x) wesentlich stärker ab. Betrachtet man die Position um $x=2,2\text{ }\mu\text{m}$ beträgt der Unterschied der Lumineszenzintensität der Kurven bei $T=300\text{ K}$ und $T=5\text{ K}$ bereits etwa eine halbe Größenordnung. Es ist somit zu erwarten, dass die Diffusionslänge mit steigender Proben temperatur abnimmt. Wie weiter unten in der Abbildung 5.12 zu sehen ist, wird diese Annahme von der Auswertung bestätigt. Die aus den Linescans durch Anpassung des erarbeiteten Modells (4.26) ermittelten Diffusionslängen sind in der Abbildung 5.12a in Abhängigkeit von der Temperatur dargestellt und werden weiter unten diskutiert.

Ein entsprechender Kurvenverlauf als Beispiel für die Anpassung des Modells an die Messdaten ist in der Abbildung 5.10 dargestellt. Hierbei handelt es sich um den Linescan zu einer Proben temperatur von $T=80\text{ K}$, dargestellt ist die Lumineszenzintensität der freien Exzitonen. Die Standardabweichung der Anregungsweite wurde zu $\sigma=510\text{ nm}$ bestimmt und entsprechend als Parameter vorgegeben. Die Position der Maskenkante wurde aus den simultan aufgenommenen SE-Daten ermittelt (siehe Abbildung 5.9b) und ebenfalls für die Anpassung des Diffusionsmodells (4.26) fest vorgegeben. Als Diffusionslänge der freien Exzitonen bei $T=80\text{ K}$ wurde nach entsprechendem Anpassen des Modells $\lambda=1,8\text{ }\mu\text{m}$ erhalten. Insgesamt reichen die gefundenen

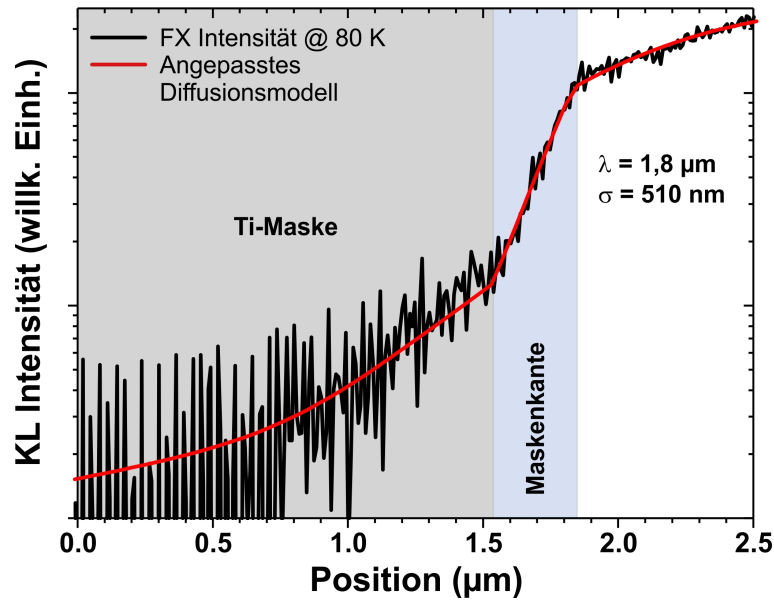


Abbildung 5.10: Lumineszenzintensität der freien Exzitonen bei einer Probertemperatur von $T=80\text{ K}$ in Abhängigkeit vom Ort entlang des aufgenommenen Linescans, senkrecht zur Maskenkante (schwarze Kurve). Die rote Kurve ist der vom Diffusionsmodell erhaltene Intensitätsverlauf für eine Anregungsweite mit $\sigma=510\text{ nm}$ und einer Diffusionslänge von $\lambda=1,8\text{ }\mu\text{m}$

Diffusionslängen von $\lambda(5\text{ K})=3\text{ }\mu\text{m}$ bis $\lambda(180\text{ K})=0,85\text{ }\mu\text{m}$.

Um die Beweglichkeit der freien Exzitonen berechnen zu können muss entsprechend Kapitel 4 deren anfängliche Lebensdauer, ebenfalls in Abhängigkeit von der Temperatur, bestimmt werden. Die Abbildung 5.11 zeigt Transienten der freien Exzitonen für vier unterschiedliche Temperaturen in halblogarithmischer Darstellung. Dargestellt sind die letzten $\Delta t \approx 2\text{ ns}$ im Gleichgewicht aus Anregung und Rekombination sowie der Abfall der Lumineszenzintensität als Funktion der Zeit. Die Punkte entsprechend den Messwerten, die durchgezogenen Linien sind die aus der Anpassung der Gleichung (2.17) gefundenen Verläufe für die anfängliche Lebensdauer. Auch diese Untersuchungen wurden zur Sicherstellung weitestgehend identischer Anregungsbedingungen für die orts- wie auch die zeitaufgelösten Untersuchungen bei einer Primärelektronenenergie von $E=7\text{ keV}$ und einem „on-pulse“ Strahlstrom von ca. $I_{cw}=640\text{ pA}$ durchgeführt.

Auch beim transienten Verhalten der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen zeigt sich ein deutliches, systematisches Variieren mit der Probertemperatur. Während die zeitliche Abnahme der Lumineszenzintensität bei hohen Temperaturen vergleichsweise flach verläuft, fällt sie bei tiefen Probertemperaturen sehr schnell ab. Die Lebensdauer erhöht sich also mit steigender Temperatur und spricht für einen bei tiefen Temperaturen dominierenden Einfangprozess freier Exzitonen. Dieses Verhalten deckt sich mit den erhaltenen Spektren, in denen bei tiefen Temperaturen die Lumineszenz donatorgebundener Exzitonen den intensivsten Übergang darstellt. Mit zunehmender Temperatur jedoch verliert die Lumineszenzintensität der gebundenen Exzitonen gegenüber der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen. Die aus den Transienten ermittelten, anfänglichen Lebensdauern der freien Exzitonen steigen mit der Probertemperatur

monoton an und reichen dabei von $\tau(5\text{ K})=0,3\text{ ns}$ bis $\tau(300\text{ K})=1,35\text{ ns}$ (siehe Abb. 5.12b).

Die beiden nötigen Parameter Lebensdauer τ und Diffusionslänge λ sind somit bestimmt. Die Abbildung 5.12 a) enthält die erhaltenen Ergebnisse bezüglich der ermittelten Diffusionslängen in doppeltlogarithmischer Darstellung und b) die anfänglichen Lebensdauern als Funktion der Probertemperatur. Ebenso sind die daraus berechneten Diffusionskonstanten c) und Beweglichkeiten d) jeweils in Abhängigkeit von der Temperatur dargestellt.

Wie in der Abbildung 5.12a zu erkennen ist, nimmt die Diffusionslänge mit steigender Temperatur monoton ab, wobei sie bis ca. $T=50\text{ K}$ auf einem Niveau knapp unter $\lambda=3\text{ }\mu\text{m}$ verweilt. Erst mit weiter ansteigender Temperatur fällt sie auf einen Wert um $\lambda=1\text{ }\mu\text{m}$. Sie verringert sich also im betrachteten Temperaturintervall von $T=5\text{ K}$ bis $T=300\text{ K}$ um den Faktor $f=3$. Ferner wurde der Anstieg der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen direkt im Bereich der Maskenkante ausgewertet. Das Ergebnis ist in derselben Darstellung als rote Punkt-Linie dargestellt. Der Anstieg ändert sich über das gesamte Temperaturfenster praktisch nicht. Dies zeigt ganz deutlich, dass eine Auswertung des Anstiegs in diesem Bereich des Linescans die Eigenschaften der Maskierung, nicht jedoch der Diffusion ergibt. Sich also allein auf diesen Bereich zu beschränken führt zu gänzlich falschen Ergebnissen und macht deutlich, wie wichtig eine entsprechende Berücksichtigung auch der Eigenschaften der Maskierung (insb. der Maskenkante) im verwendeten Modell ist. Mit ca. $w=130\text{ nm}$ liegt die so ermittelte Weite der Maskenkante sehr dicht bei der aus der FEREM-Aufnahme ermittelten Weite von $w=145\text{ nm}$.

In der Darstellung c) der Abbildung 5.12 ist die aus der Diffusionslänge und anfänglichen Lebensdauer der freien Exzitonen berechnete Diffusionskonstante für alle betrachteten Temperaturen in doppeltlogarithmischer Darstellung aufgetragen. Auch sie fällt vergleichbar mit der Diffusionslänge monoton mit steigender Temperatur von ca. $D(5\text{ K})=250\text{ cm}^2/\text{s}$ auf

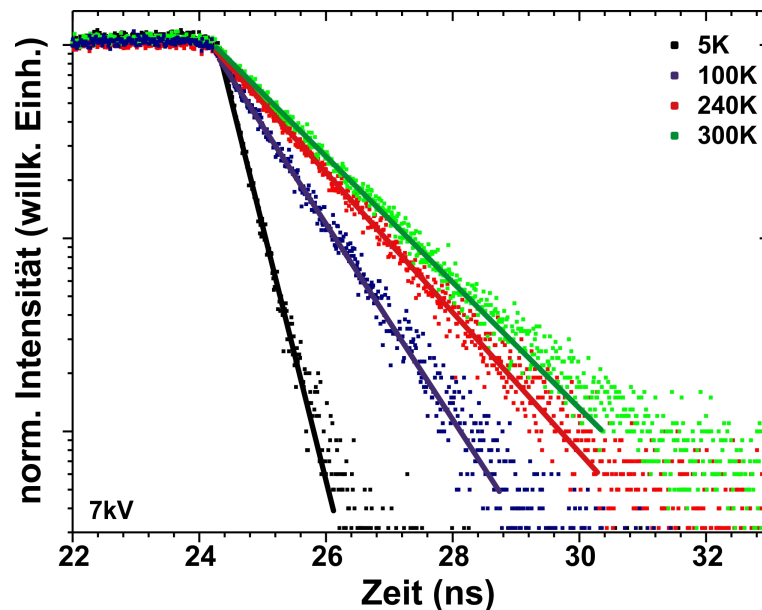


Abbildung 5.11: Transienten der Lumineszenz der freien Exzitonen bei $T=5\text{ K}$, $T=100\text{ K}$, $T=240\text{ K}$ und $T=300\text{ K}$. Dargestellt ist der letzte Moment der stationären Anregung mittels des Elektronenstrahls und der anschließende Abfall der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen.

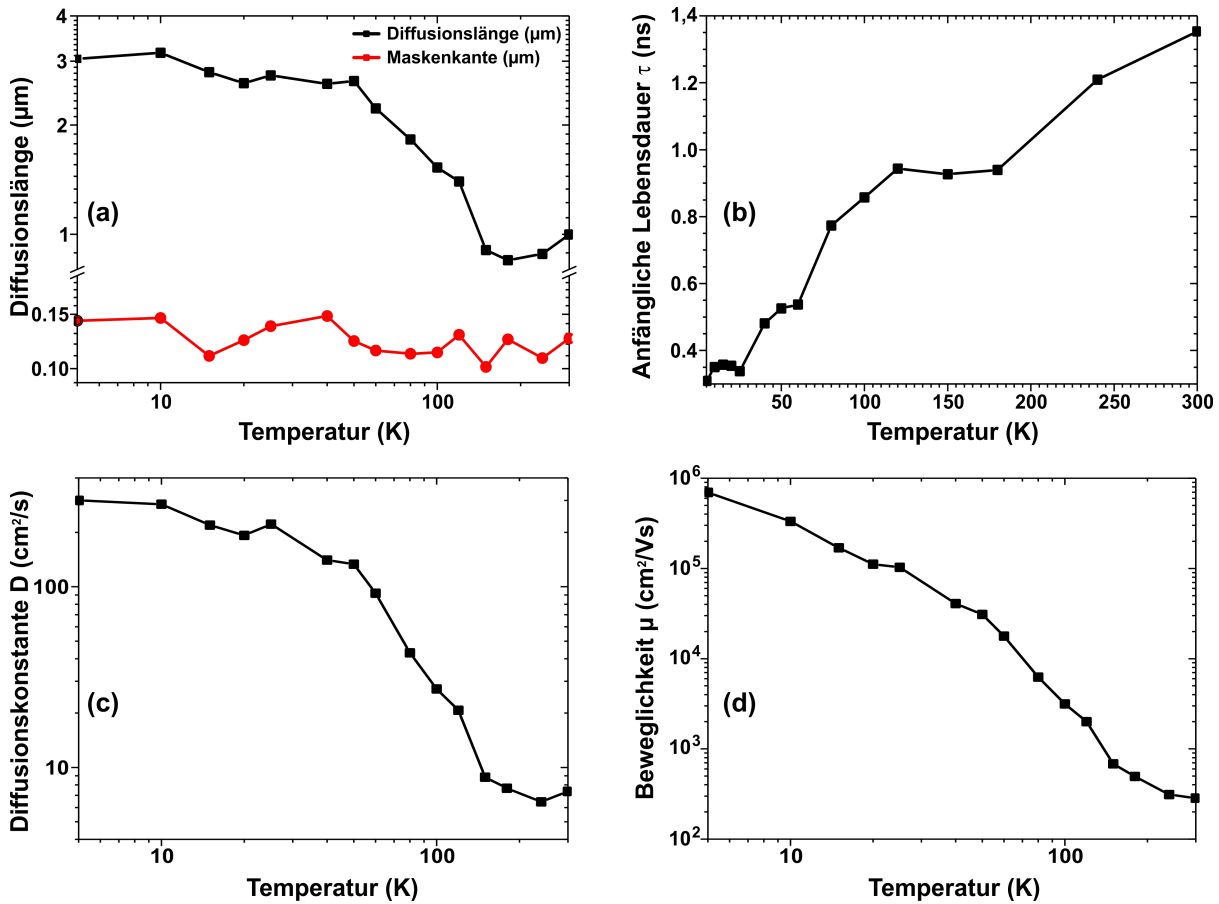


Abbildung 5.12: a) aus den Linescans erhaltene Diffusionslängen (rot: Modell ohne Berücksichtigung des Maskeneinflusses angepasst ausschließlich auf den Bereich der Maskenkante, schwarz: erarbeitetes vollständiges Modell angepasst auf gesamten Intensitätsverlauf der aufgenommenen Linescans), b) aus den Transienten ermittelte anfängliche Lebensdauer, c) aus Diffusionslänge λ und anfänglicher Lebensdauer τ berechnete Diffusionskonstante D und d) Beweglichkeit μ der freien Exzitonen in Abhängigkeit von der Temperatur, berechnet über die Einsteinbeziehung.

$D(300\text{ K}) = 7\text{ cm}^2/\text{s}$, wobei der stärkste Gradient im Bereich von $T=50\text{ K}$ bis $T=120\text{ K}$ zu finden ist.

Die über die Einsteinrelation (2.38) errechnete Beweglichkeit ist in der Abbildung 5.12d ebenfalls in doppeltlogarithmischer Darstellung in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen. Sie fällt monoton mit steigender Temperatur von ca. $\mu(5\text{ K})=700.000\text{ cm}^2/\text{Vs}$ auf etwa $\mu(300\text{ K})=300\text{ cm}^2/\text{Vs}$ deutlich ab.

Die Motivation zur Untersuchung der exzitonischen Beweglichkeit bei diesem HVPE gewachsenen GaN ist neben der Klärung zur Anwendbarkeit der Methode die Bestimmung der beteiligten Streumechanismen beim Transport freier Exzitonen. Hierzu wurde der Verlauf der Beweglichkeit in Abhängigkeit von der Temperatur ausgewertet. Berücksichtigung fanden alle im Kapitel 2.8 behandelten Streumechanismen. Die Abbildung 5.13 zeigt sowohl die Beweglichkeit der freien Exzitonen als Funktion der Proben temperatur als auch das Ergebnis der Auswertung des Verlaufs der Beweglichkeit. Die rote Kurve wurde erhalten durch das Zugrundelegen von drei unterschiedlichen Streumechanismen. Diese sind die bei hohen Temperaturen dominierende Fröhlich Wechselwirkung, das heißt also die Streuung an longitudinal optischen Phononen im piezzo-

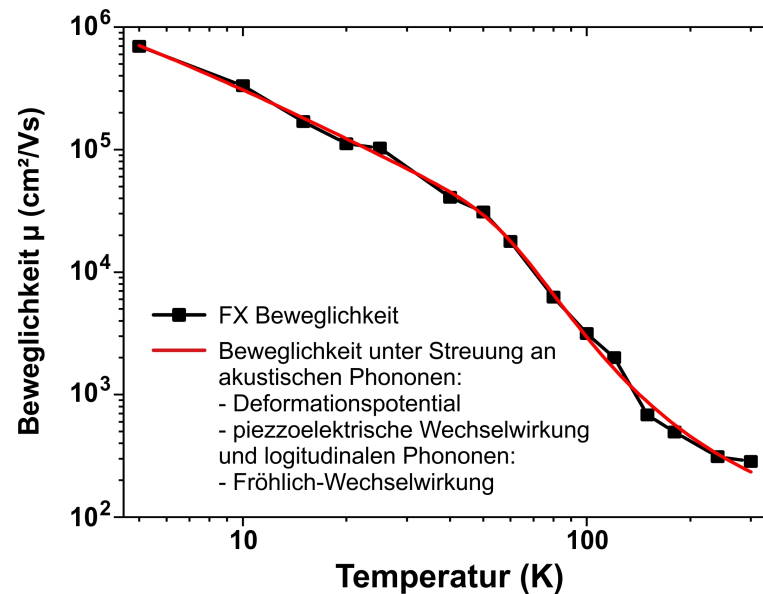


Abbildung 5.13: Doppeltlogarithmische Darstellung der experimentell und mittels Einsteinrelation definierten Beweglichkeit der freien Exzitonen in Abhängigkeit von der Temperatur (schwarze Linie) und theoretischer Verlauf der Beweglichkeit der freien Exzitonen unter Beteiligung von Streuung am Deformationspotential, hervorgerufen durch akustische Phononen, Streuung unter piezoelektrischer Wechselwirkung, ebenfalls hervorgerufen durch akustische Phononen und bei höheren Temperaturen dominierend der Fröhlichwechselwirkung, das heißt Streuung an longitudinal optischen Phononen.

elektrischen Kristall mit $\mu \propto e^{\frac{1}{T}}$, sowie bei tieferen Temperaturen die beiden durch akustische Phononen verursachten Streuungen unter Beteiligung des Deformationspotentials mit $\mu \propto T^{-\frac{3}{2}}$ und der piezoelektrischen Wechselwirkung mit $\mu \propto T^{-\frac{1}{2}}$. Wie zu sehen ist, reproduziert die für diese Streumechanismen erhaltene Kurve die Messergebnisse hervorragend und beschreibt ganz offensichtlich den Transport im gesamten untersuchten Temperaturintervall.

Die Streuart, die für Ladungsträger insbesondere bei tiefen Temperaturen limitierend auf die Beweglichkeit wirkt - die ionisierte Störstellenstreuung - konnte für die Exzitonen offenbar nicht gefunden werden und entspricht somit voll und ganz den Erwartungen.

Ambipolarer Transport im GaN

Die verwendete Methode erlaubt es durch die Aufnahme eines Spektrums ausgedehnten Wellenlängenbereichs neben der Konzentration auf die freien Exzitonen auch die Auswertung des „ambipolaren“ Transports in dem Sinne, dass neben den freien auch die gebundenen Exzitonen sowie alle weiteren im detektierten Spektralbereich stattfindenden Rekombinationen (bzw. deren Komplexe) hinsichtlich ihrer Diffusion untersucht werden können. In dem vorliegenden Fall umfasst dies also die freien und donatorgebundenen Exzitonen, sowie die TES.

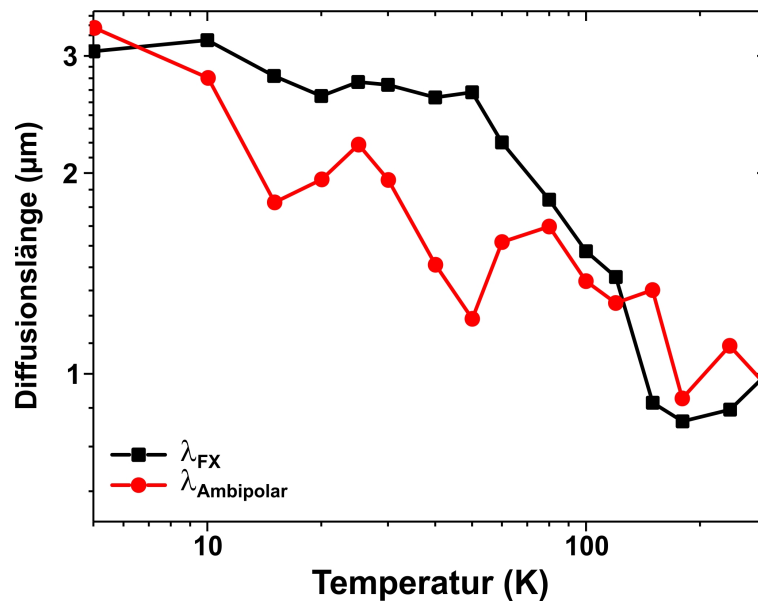


Abbildung 5.14: Vergleich der ambipolaren Diffusionslänge (rot) ermittelt über den Verlauf der Lumineszenzintensität im gesamten betrachteten Spektralbereich mit der Diffusionslänge der freien Exzitonen (schwarz).

Die Abbildung 5.14 zeigt den Vergleich der ermittelten Diffusionslänge der freien Exzitonen mit der ermittelten ambipolaren Diffusionslänge nach oben genannter Definition. Auch hier wurde wieder für beide Arten dasselbe Modell (4.26) zur Ermittlung der Diffusionslänge verwendet. Mit Ausnahme der Probertemperatur von $T=5$ K liegt die ambipolare Diffusionslänge bis ca. $T=180$ K etwa $\Delta\lambda=1$ µm unterhalb der für die freien Exzitonen ermittelten Diffusionslänge. In Einklang mit den aufgenommenen Spektren, welche in diesem Temperaturbereich durch die Lumineszenz donatorgebundener Exzitonen dominiert werden (vgl. Abb. 5.8) sind hier also große Anteile des diffusionslängenreduzierenden Einflusses auf einen möglichen Einfangprozess zurückzuführen. Aufgrund des Einfangs der diffundierenden, freien Exzitonen durch die Donatoren wird deren Diffusionslänge verringert. Erst, wenn ihre thermische bzw. kinetische Energie die Bindungsenergie überschreitet, werden sie nicht mehr an den Donatoren gebunden. Somit steigt die ambipolare Diffusionslänge, welche auch den Transport der freien Exzitonen beinhaltet und nähert sich weitestgehend der der freien Exzitonen an, deren strahlende Übergänge die aufgenommenen Spektren oberhalb von $T=180$ K dominieren. Das Übersteigen der Diffusionslänge der freien Exzitonen oberhalb von etwa $T=120$ K kann damit erklärt werden, dass der betrachtete spektrale Bereich für den ambipolaren Fall noch etwas größer ausgefallen ist (bein-

haltet also noch höhere Übergangsenergien), als bei der Auswertung des Transports der freien Exzitonen. So ist es möglich, dass zusätzlich freie Exzitonen höherer thermischer Energie und höherer Reichweite mit in die Betrachtung eingeflossen sind, als dies zuvor der Fall gewesen ist. Bei den hohen Temperaturen kann zudem die Exzitonbindungsenergie, die in GaN in etwa der thermischen Energie von $T=300\text{ K}$ entspricht, bereits für einige Exzitonen überschritten sein und so der Anteil bereits dissoziierter Exzitonen - also Elektron-Loch-Paare - die Transporteigenschaften bestimmen. Es ist denkbar, dass über eine entsprechend hohe Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare deren Diffusionslänge größer ausfällt als die der freien Exzitonen. Die hier ermittelte Abweichung der Diffusionslängen der freien Exzitonen und dem ambipolaren Fall beträgt bei $T=300\text{ K}$ etwa 12 %.

5.2.2 Methode 2: transparente Kreisflächen

Für die Transportuntersuchungen mittels der Methode der transparenten Kreisflächen, konnte ein weiteres Stück der im Abschnitt 5.2.1 besprochenen Probe verwendet werden. Es handelt sich also auch hier wieder um eine etwa 400 μm dicke, freistehende GaN-Schicht. Jedoch stammt das hier vorliegende Probenstück aus dem äußersten Randbereich des Wafers und zeigt diverse Verfärbungen und Einschlüsse, die bereits mit bloßem Auge erkennbar sind. Zudem ist auch mit bloßem Auge bereits eine deutlich profilierte Oberfläche zu erkennen (vergleichbar mit dem Stoff eines zerknitterten Hemds).

Die Untersuchungen haben sämtlich bei einer Beschleunigungsspannung von $V_{Acc}=5$ kV und einem Strahlstrom von ca. $I=440$ pA stattgefunden. Somit ergibt sich nach den Gleichungen in Abschnitt 4.1.1 eine Betherreichweite von ca. $R_e=400$ nm.

Die verwendete Titanmaske hat eine Dicke von $z=160$ nm und wird durch kreisförmige Aperturen von $K=500$ nm und $K=1$ μm unterbrochen. Aufgebracht wurde die Titanschicht nach aufbringen von diesen Durchmessern entsprechenden Polystyrenkugeln mittels thermischer Verdampfung. Durchgeführt wurde die Bedampfung von apl. Prof. Dr.rer.nat. Armin Dadgar, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg an der Technischen Universität Berlin.

In der Abbildung 5.15 sind für eine Reihe von Probertemperaturen die erhaltenen Kathodolumineszenzspektren aus einem unbedeckten Gebiet der Probe dargestellt. Das Spektrum deckt eine Bandbreite von $E=3,39$ eV bis $E=3,48$ eV ab. Dominiert werden auch diese Spektren bei tiefen Temperaturen von der D^0X Lumineszenz um $E_{D^0X}=3,464$ eV, also den Übergängen von an Donatoren gebundenen Exzitonen. Auf der höherenergetischen Seite finden sich die Übergänge der freien Exzitonen, gekennzeichnet durch eine gestrichelte Linie, welche die spektrale Position zu jeder Temperatur markiert. Bei einer Probertemperatur von $T=5$ K findet sich dieser Übergang bei $E_{FX}=3,47$ eV. Ebenfalls findet sich auch bei diesem Teil der Probe in den Spektren niedrigerer Temperaturen energetisch unterhalb der D^0X Lumineszenz ein weiterer, intensiver und dezidierter Peak, welcher von TES- D^0X herrührt. Die spektrale Position liegt bei $T=5$ K bei etwa $E_{TES}=3,448$ eV.

Wie auch für die Methode der cw-Linescans, müssen auch für diese Methode die anfänglichen Lebensdauern der freien Exzitonen bekannt sein. Hierzu wurden die Messungen wieder an der spektralen Position der freien Exzitonen, wie sie aus den Spektren ablesbar sind, durchgeführt. Die anfänglichen Lebensdauern der freien Exzitonen wurden für dieselben Probertemperaturen bestimmt, bei denen auch die Spektren aufgenommen wurden. Das heißt, in einem Temperaturfenster von $T=5$ K bis $T=300$ K. Die Abbildung 5.16 zeigt sowohl die aufgenommenen Transienten aus den zeitaufgelösten Kathodolumineszenzmessungen a), als auch die aus den Anpassungen einer monoexponentiellen Funktion an den Anfänglichen Abfall der Lumineszenzintensität erhaltene anfängliche Lebensdauer der freien Exzitonen b). Zur Sicherstellung identischer Anregungsbedingungen wurden für alle durchgeführten Untersuchungen (Untersuchung der anfänglichen Lebensdauer, Untersuchung der Zerfallszeit für die Lumineszenz aus dem Loch in der Maskierung und die Aufnahme der Spektren) das Rasterelektronenmikroskop im sogenannten „Spotmode“ genutzt. Das heißt die Rastereinheit wurde während den Messungen

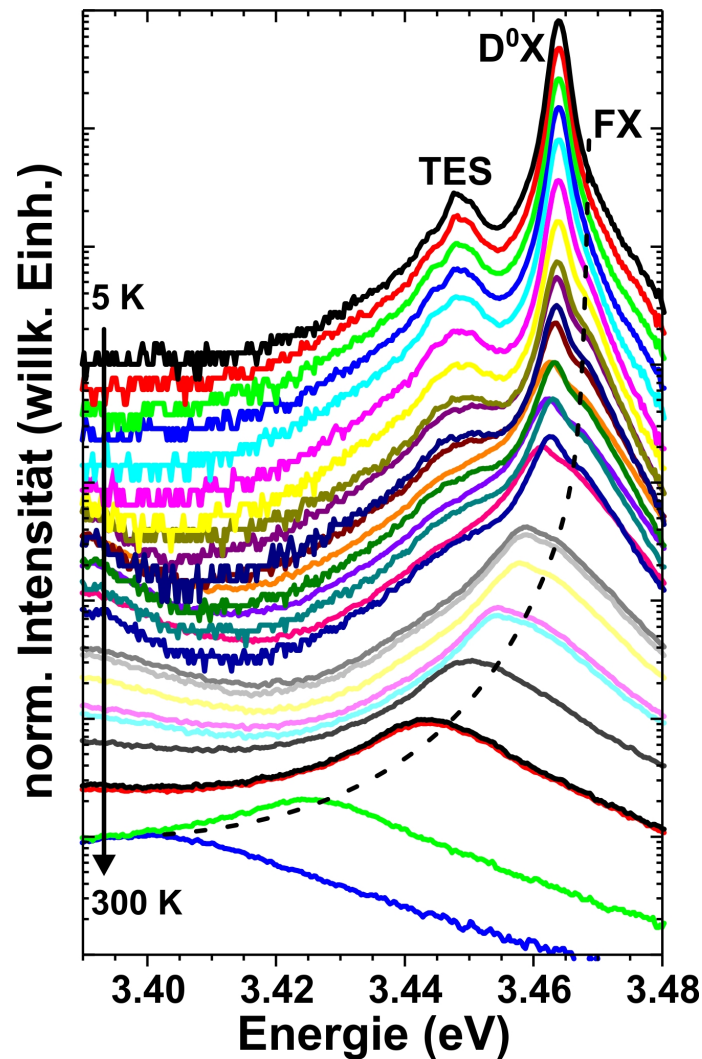


Abbildung 5.15: KL-Spektren zu unterschiedlichen Probestemperaturen ($T=5\text{ K}$ bis $T=300\text{ K}$). Die gestrichelte Linie markiert die jeweilige spektrale Position der Lumineszenz freier Exzitonen. Neben der energetisch tiefer liegenden Lumineszenz gebundener Exzitonen (D^0X) findet sich ferner ein Lumineszenzpeak des TES dieser donatorgebundenen Exzitonen.

nicht verwendet.

Wie aus den Abbildungen 5.16 a) und b) ersichtlich steigt die anfängliche Lebensdauer der freien Exzitonen weitestgehend monoton mit zunehmender Temperatur um den Faktor 3 an. Bei einer Probestemperatur von $T=5\text{ K}$ beträgt diese $\tau=325\text{ ps}$. Steigt die Probestemperatur auf $T=300\text{ K}$, so beträgt die anfängliche Lebensdauer der freien Exzitonen bereits $\tau=925\text{ ps}$.

Vergleicht man die hier erhaltenen anfänglichen Lebensdauern der freien Exzitonen mit jenen des Probenstücks, welches aus der Mitte des Wafers stammt (siehe 5.2.1), so zeigen sich bei hohen Temperaturen Abweichungen von ca. 40% ($\tau(T=300\text{ K})=1,4\text{ ns}$). Dies spricht für eine nominell verringerte kristalline Qualität des hier vorliegenden Waferstücks und deckt sich mit den üblichen Beobachtungen, dass die Kristallqualität zum Rand eines Wafers tendenziell abnimmt.

Die Abbildung 5.17 zeigt zwei FEREM-Aufnahmen eines SE-Kontrastes an zwei erzeugten Aperturen in der aufgedampften Titanmaskierung. Der Durchmesser der beiden hier gezeigten

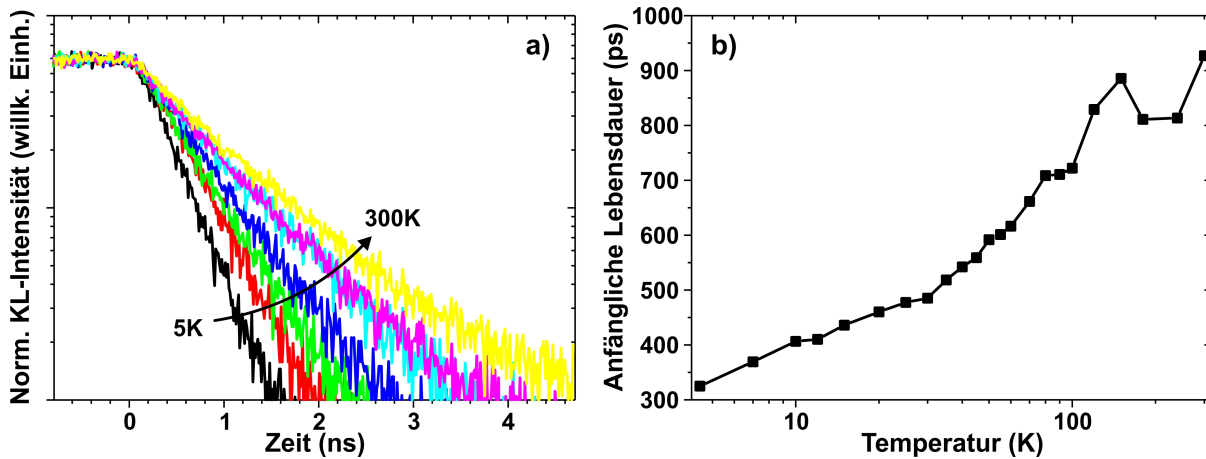


Abbildung 5.16: a) Transienten der FX-Lumineszenz für Temperaturen von $T=5$ K bis $T=300$ K (Pfeil), dargestellt für den letzten Moment der Anregung und dem sich anschließenden Abfall der Lumineszenzintensität. b) Anfängliche Lebensdauer τ der freien Exzitonen, ermittelt aus dem anfänglichen Abfall der Transienten.

Löcher beträgt jeweils $K=1 \mu\text{m}$. Die „Schatten“ an den äußeren Lochrändern (im Bild unterer Rand der Löcher) sind entstanden durch einen zweistufigen Bedampfungsprozess aufgrund einer zu geringen Materialmenge im Schmelztigel. Dieser musste zwischendurch ausgetauscht bzw. wieder befüllt werden, um die geforderte Schichtdicke des Titans von ca. $d=160$ nm zu erhalten. Offenbar wurde dabei die Position des Titans relativ zur Probenposition minimal verschoben, so dass ein neuer Schattenwurf von den aufgebrachtene Kugeln resultierte. Entsprechend finden sich auch innerhalb des Bodens der Aperturen Säume mit dünner Titanschicht. Da deren Dicke jedoch lediglich ca. 10 nm beträgt führen die Erkenntnisse aus Abschnitt 4.1.1 zur Überzeugung, dass diese Bedeckung, die zudem lediglich in einem kleinen Randbereich auftritt, die Messungen vernachlässigbar beeinflussen sollte.

Im Zentrum der Aperturen wurden zeitaufgelöste Untersuchungen im Spotmode bei denselben

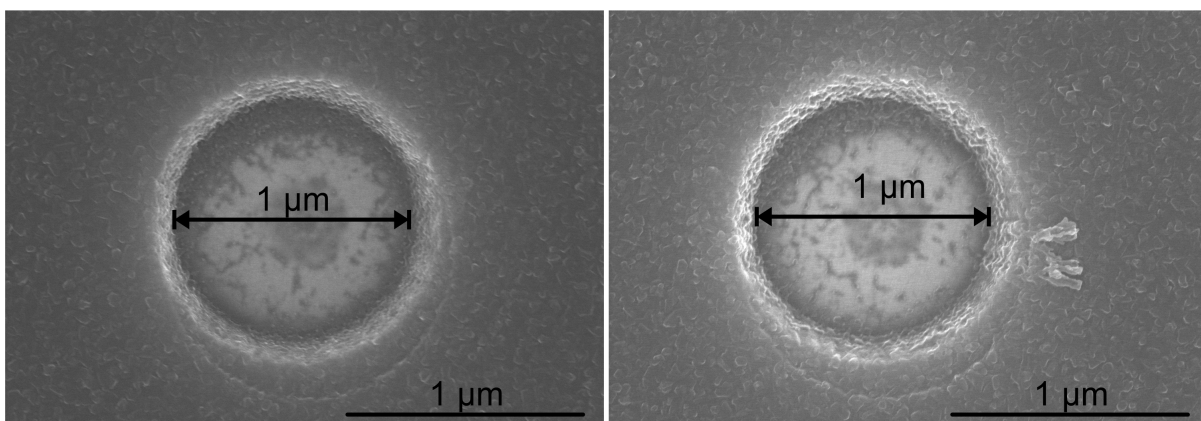


Abbildung 5.17: SE-Kontrastbilder, aufgenommen mit einem FEREM. Die entstandenen Löcher besitzen Durchmesser von $K=1 \mu\text{m}$. Der am unteren Rand der beiden abgebildeten Löcher erkennbare „Schatten“ rührt von einem zweistufigen Bedampfungsprozess her, wobei die Titanquelle gegenüber dem ersten Bedampfungsschritt offenbar zumindest lateral verschoben wurde. Beide Löcher erfüllen die radiale Symmetrie und haben äußerst steile Flanken.

Probentemperaturen durchgeführt, wie sie auch bei der Aufnahme der Kathodolumineszenzspektren und der Bestimmung der anfänglichen Lebensdauern der freien Exzitonen Verwendung fanden. Ferner wurden dieselben spektralen Positionen - die der freien Exzitonen - betrachtet, wie bereits bei der Bestimmung der anfänglichen Lebensdauern τ . Die Auswertung des jeweiligen anfänglichen Abfalls der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen, direkt nach Beendigung der gepulsten Anregung, mittels Anpassung einer monoexponentiellen Funktion zeigt lediglich eine sehr geringe Variation über das gesamte Temperaturintervall von $T=5$ K bis $T=300$ K (siehe dazu Abbildungen 5.18 und 5.19).

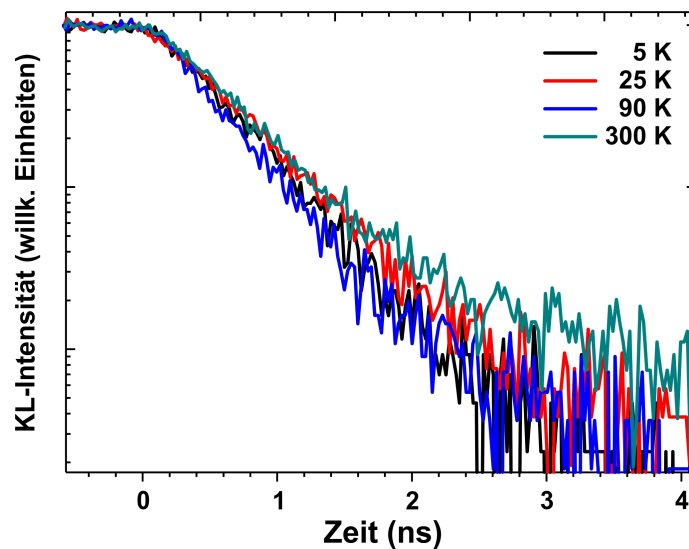


Abbildung 5.18: Transienten der FX-Lumineszenz für Temperaturen von $T=5$ K bis $T=300$ K, dargestellt für den letzten Moment der Anregung und dem sich anschließenden Abfall der Lumineszenzintensität, erhalten aus dem Gebiet eines Loches mit $d=1$ μm Durchmesser.

Da jedoch nicht die Zeitkonstante für den anfänglichen Zerfall der Lumineszenz der freien Exzitonen betrachtet werden soll, sondern der Transport der freien Exzitonen, wird an eben diese Ausschnitte der Transienten die Gleichung (4.46) angepasst. Der einzig freie Parameter ist dabei die Diffusionskonstante. Die Parameter anfängliche Lebensdauer τ (aus den oben dargestellten Ergebnissen zu jeder Probentemperatur bekannt), der Durchmesser der betrachteten Apertur und die Anregungsweite sind ebenfalls bekannt und werden entsprechend in dieser Gleichung vorgegeben. Eine Zusammenfassung der hieraus erhaltenen Ergebnisse zeigen die Abbildungen 5.19.

Die anfängliche Lebensdauer τ der freien Exzitonen steigt, wie bereits diskutiert, monoton mit der Probentemperatur von $\tau(5\text{ K})=325$ ps bis $\tau(300\text{ K})=925$ ps an. Die anfängliche Zerfallszeit der Lumineszenz freier Exzitonen aus dem Gebiet des Lochs hingegen bleibt weitestgehend konstant und variiert um $\tau_{hole}=250$ ps mit ± 40 ps (siehe Abbildung 5.19a). Das heißt, mit zunehmender Probentemperatur erhöht sich die Differenz zwischen τ und τ_{hole} , was eine Erhöhung der Diffusionskonstante mit steigender Probentemperatur erwarten lässt. Bei steigender Lebensdauer τ müssen die freien Exzitonen das Gebiet der Apertur zunehmend schneller verlassen, um

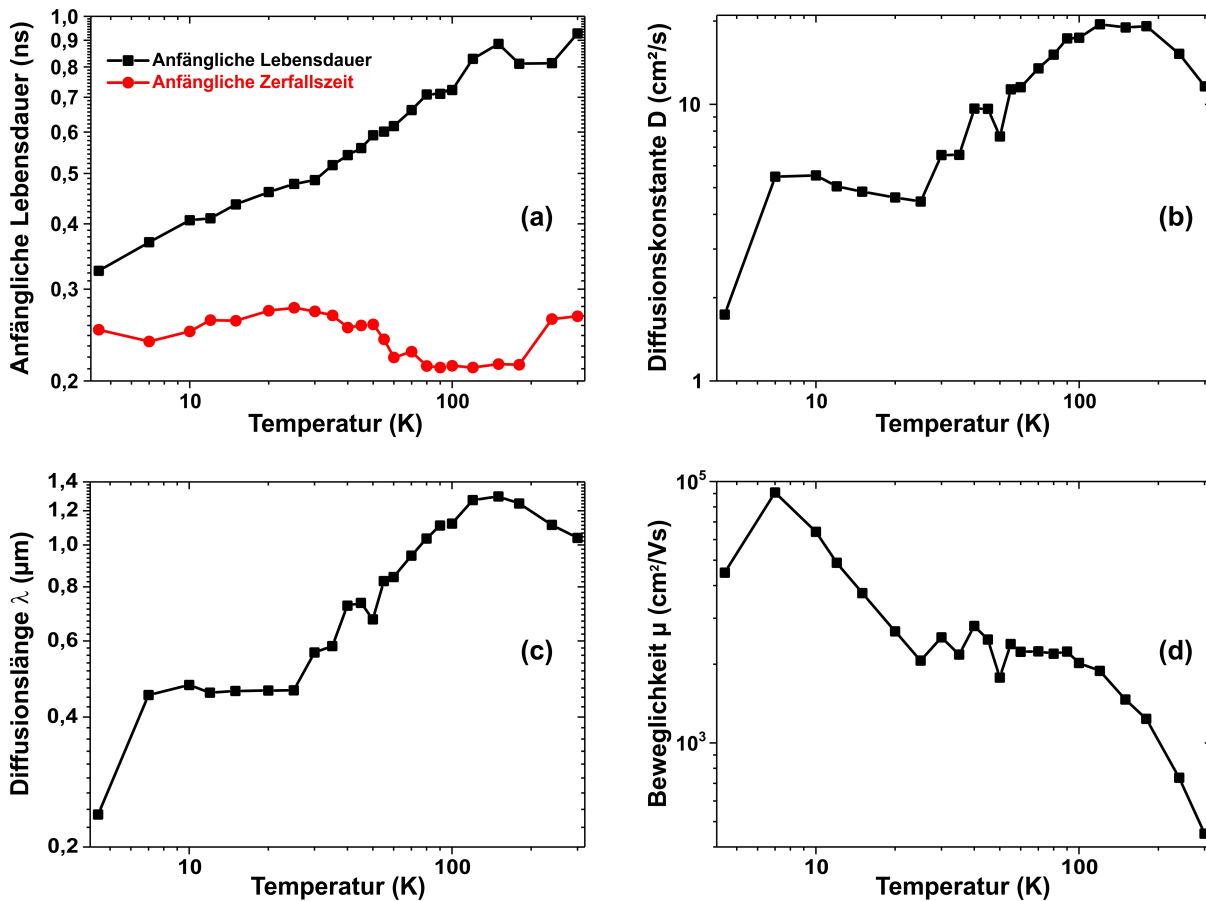


Abbildung 5.19: Jeweils als Funktion der Proben­temperatur: (a) Vergleich der anfänglichen Lebensdauer (schwarz) und Zerfallszeit für die Apertur (rot) der freien Exzitonen, (b) durch Anwendung der Gleichung (4.46) erhaltene Diffusionskonstanten der freien Exzitonen, (c) aus der anfänglichen Lebensdauer und der Diffusionskonstanten erhaltene Diffusionslänge der freien Exzitonen, (d) mittels Einsteinrelation erhaltene Beweglichkeit der freien Exzitonen.

eine mit steigender Proben­temperatur gleichbleibende Zerfallszeit τ_{hole} aufzuzeigen. Genau diese Erwartung wird durch das Ergebnis der Anpassung der Gleichung (4.46) erhalten und ist in der Abbildung 5.19b wiedergegeben. Bei einer Proben­temperatur von $T=5 \text{ K}$ erreichen die freien Exzitonen eine Diffusivität von ca. $D=2 \text{ cm}^2/\text{s}$. Mit steigender Proben­temperatur wächst diese auf einen Wert von ca. $D=11 \text{ cm}^2/\text{s}$ an. Berechnet man hieraus die Diffusionslängen der FX, so zeigt sich auch hier ein weitgehend monotonen Ansteigen mit zunehmender Proben­temperatur. Erreicht werden hier Diffusionslängen von $\lambda=0,2 \mu\text{m}$ bei $T=5 \text{ K}$ bis etwa $\lambda=1,4 \mu\text{m}$ bei $T=180 \text{ K}$ (Abbildung 5.19c). In Übereinstimmung mit dem optischen Eindruck des untersuchten Proben­stücks, der Tatsache, dass es aus dem Randbereich des Wafers stammt und der im Vergleich geringeren Lebensdauer τ liegen diese Diffusionslängen unterhalb derer, die für die im vorangegangenen Abschnitt vorgestellte Probe ermittelt wurden (zum Vergleich: $\lambda(5 \text{ K})=3 \mu\text{m}$ bis $\lambda(120 \text{ K})=0,85 \mu\text{m}$).

Für noch höhere Temperaturen fallen sowohl die Diffusionskonstanten, als auch die Diffusionslängen wieder geringfügig ab. Dieser Abfall jedoch kann durch Messungenauigkeiten entstanden sein. Diese Ungenauigkeiten werden verursacht durch eine starke Abnahme der Lumineszenzintensität für hohe Temperaturen und damit einhergehend eine verschlechterte spektrale Auflösung

der Messapparatur durch Öffnen des Monochromatoreintrittsspalts. Dies wiederum führt dazu, dass ggf. weitere Übergänge mit in die aufgenommenen Transienten einfließen und so die reine FX-Lumineszenz verfälschen. So können auch freie Exzitonen der unterschiedlichen Valenzbänder eine zueinander unterschiedliche Gewichtung in der Messung erhalten, als dies bei tieferen Temperaturen der Fall ist.

In der Abbildung 5.19d ist die mittels Einsteinrelation errechnete Beweglichkeit der freien Exzitonen dargestellt. Wie leicht zu sehen ist, fällt diese monoton mit steigender Temperatur ab (das erste Wertepaar bei $T=5$ K außen vor gelassen). Das Maximum wird erreicht bei einer Proben temperatur von $T=7$ K und beträgt $\mu=9000$ cm^2/Vs . Mit zunehmender Temperatur fällt die Beweglichkeit bis $T=300$ K auf $\mu=450$ cm^2/Vs . Im Vergleich mit der im Abschnitt 5.2.1 herausgemessenen Beweglichkeit zeigt sich, dass die Werte für hohe Temperaturen vergleichbar sind, bei tiefen Temperaturen hingegen die Abweichung bereits zwei Größenordnungen beträgt, wobei das Probenstück aus dem Zentrum des Wafers die wesentlich größere exzitonische Beweglichkeit aufzeigt. Auch dies bestätigt die übliche Beobachtung geringerer kristalliner Qualität im Randbereich eines Wafers und deckt sich mit dem Eindruck geringerer Qualität aufgrund bereits mit bloßem Auge sichtbarer Einschlüsse im Kristall.

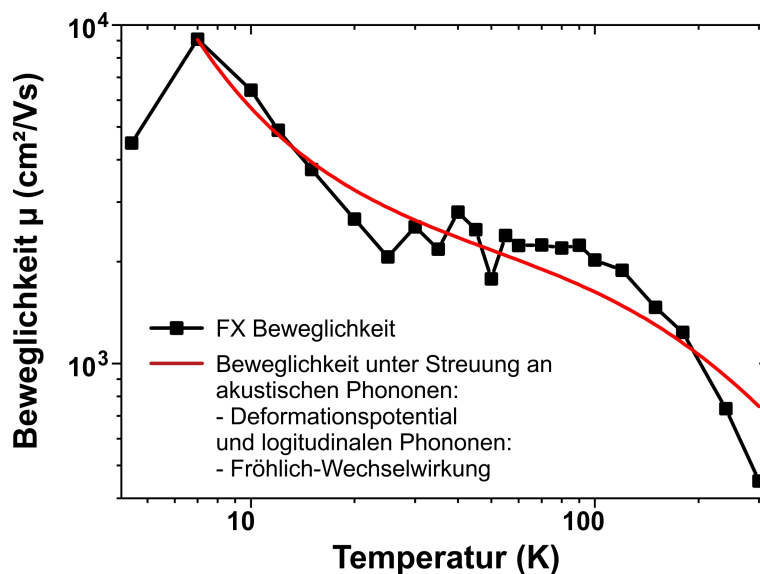


Abbildung 5.20: Analyse der zugrundeliegenden Streumechanismen beim Transport freier Exzitonen im vorliegenden HVPE-GaN mittels Anpassung zweier charakteristischer Verläufe der Beweglichkeit in Abhängigkeit von der Temperatur für die Streuung an akustischen Phononen über das Deformationspotential und an longitudinalen Phononen über die sogenannte Fröhlich-Wechselwirkung. Die schwarze Linie repräsentiert die Beweglichkeit der freien Exzitonen, erhalten aus den durchgeführten Messungen, die rote Kurve repräsentiert die theoretische Beweglichkeit unter Beteiligung der beiden genannten Streuart.

Auch für diese Probe wurde eine Analyse der beteiligten Streumechanismen beim Transport der freien Exzitonen durchgeführt. Der Verlauf der Beweglichkeit in Abhängigkeit von der Proben temperatur lässt sich recht gut reproduzieren unter der Annahme der Beteiligung von Streuungen an akustischen Phononen über das Deformationspotential und Streuungen an longitudinalen Phononen in einem piezoelektrischen Kristall (Fröhlich-Wechselwirkung). Der er-

haltene theoretische Verlauf ist gemeinsam mit den experimentell bestimmten Beweglichkeiten der freien Exzitonen in der Abbildung 5.20 dargestellt.

Obwohl es sich bei der hier untersuchten Probe im Prinzip um die gleiche Probe handelt wie im vorangegangenen Abschnitt, gibt es offensichtlich dennoch einige Unterschiede beim exzitonischen Transport sowohl bei den absoluten Werten der Beweglichkeit, als auch bei den beteiligten Streumechanismen. Während sich der exzitonische Transport in der Probe aus dem Zentrum des Wafers (und damit dem qualitativ offenbar hochwertigeren Teil) unter Beteiligung von Streuungen am Deformationspotential, piezoelektrischer Wechselwirkung und Fröhlich-Wechselwirkung beschreiben lässt und die Beweglichkeit maximal rund $\mu=700.000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ erreicht, so lässt er sich für das Probenstück aus dem Randbereich mit der Streuung am Deformationspotential und der Fröhlich-Wechselwirkung allein beschreiben und die Beweglichkeit erreicht im Maximum lediglich rund $\mu=9.000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$.

Gemeinsam haben beide Probenstücke, dass für die Exzitonen keine Streuung an ionisierten Störstellen nachgewiesen werden konnte. Außerdem sind offenbar beide vorgestellten und verwendeten Methoden dazu geeignet, den exzitonischen Transport zu untersuchen.

5.3 Transportuntersuchungen an ZnO-Substraten

5.3.1 Methode 1: cw-Linescans

Neben dem Materialsystem Galliumnitrid stand im Zentrum des Interesses das Zinkoxid (ZnO). Um die Transporteigenschaften von Exzitonen im ZnO zu untersuchen, wurde ein Substrat der Firma Crystek mit quaderförmigen Titanmasken versehen und entsprechend mit der Methode der cw-Linescans analysiert. Auch hier wurden die Titanmasken mittels Elektronenstrahlverdampfung und Lift-Off-Prozess realisiert. Die Beschleunigungsspannung wurde zu $V_{Acc}=7\text{ kV}$ gewählt, um den optimalen Kompromiss aus Eindringtiefe (Durchdringung der Titanschicht) der Primärelektronen und dem Anregungsvolumen zu realisieren (vgl. Abschnitt 4.1.1), der Strahlstrom betrug $I_{cw}=440\text{ pA}$.

Die Abbildung 5.21 zeigt als SE-Kontrastbild den Bereich der Maskenkante, an der die Untersuchungen dieser Probe durchgeführt wurden. Die Maskenflanke hat auch hier eine Ausdehnung von $w=130\text{ nm}$. In der Erwartung, dass die Diffusionslänge λ der freien Exzitonen einige hundert Nanometer beträgt und so größer als die Ausdehnung der Maskenkante ist, wurden die Transportuntersuchungen an dieser Maskenkante unter Variation der Temperatur ($T=5\text{ K}$ bis $T=300\text{ K}$) durchgeführt.

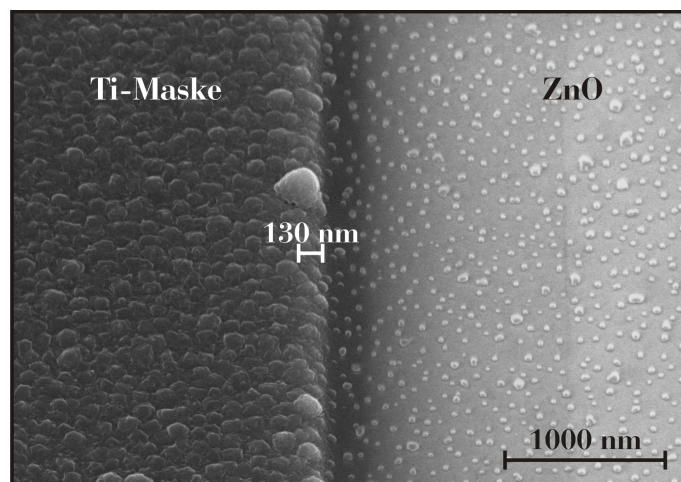


Abbildung 5.21: FEREM-Aufnahme der untersuchten ZnO-Substrat-Probe an der Kante zu einer Ti-Maskierung. Die Ausdehnung der Maskenflanke beträgt rund $w=130\text{ nm}$. Hier nicht zu erkennen: die Dicke des aufgebrachtens Titans beträgt $d=160\text{ nm}$.

Wie in der FE-REM-Aufnahme zu sehen ist, scheint das Titan dabei relativ „körnig“ zu sein. Zudem sind einige kleinere kieselartige Rückstände auf der ZnO-Oberfläche zu sehen. Darüber hinaus findet sich auch hier ein Bereich, der wie bereits im Abschnitt 5.1.1 gezeigt, direkt an der Maskenkante auf dem ZnO einen dunkleren SE-Kontrast aufweist als die weiter von der Maske entfernte Oberfläche - eine Art Vorhof - mit einer Ausdehnung von ca. $1\text{ }\mu\text{m}$. Jedoch ist dieser hier wesentlich schwächer ausgeprägt und kann in den Experimenten zudem nicht als störend eingestuft werden. Sollte der dunkle Kontrast also von verbliebenen Lackresten verur-

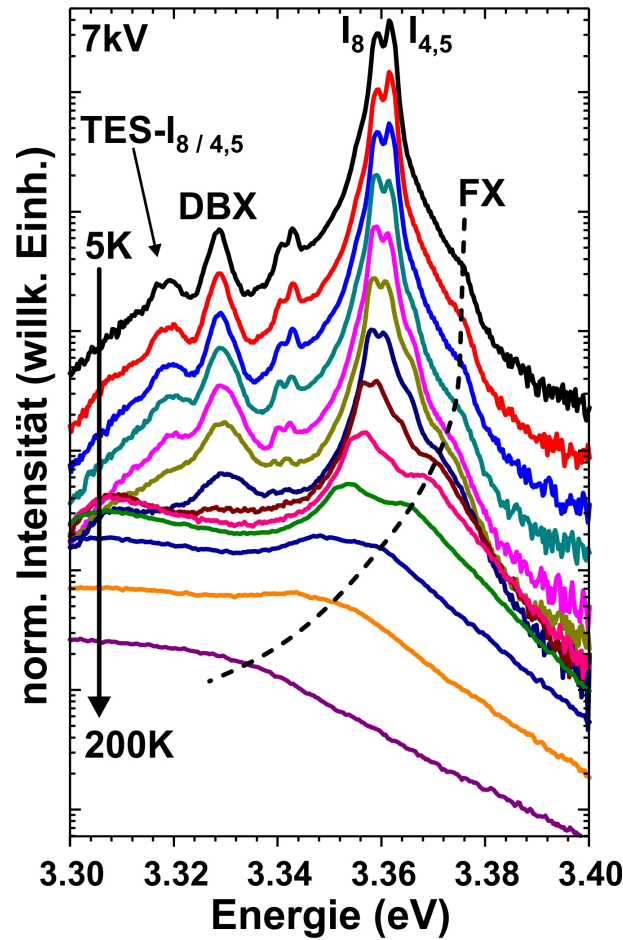


Abbildung 5.22: KL-Spektren im Temperaturintervall von $T=5$ K bis $T=200$ K. Die spektrale Position des freien Exzitons schiebt mit zunehmender Temperatur zu kleineren Energien (gestrichelte Linie) und liegt bei $T=5$ K bei $E_{FX}=3,375$ eV.

sacht werden, so ist die Bedeckung hier offenbar zum einen homogener verteilt und zum anderen wesentlich dünner, als im Abschnitt 5.1.1.

In der Abbildung 5.22 sind die aus den Linescans erhaltenen Spektren für unterschiedliche Proben Temperaturen dargestellt. Dominiert werden sie bei tiefen Temperaturen bis ca. $T=150$ K von einer ausgeprägten Intensität der Lumineszenz donatorgebundener Exzitonen. Entsprechend der Notation von [MEY04] werden diese mit I_5 ($E=3,361$ eV) und I_8 ($E=3,359$ eV) bezeichnet. Der Übergang I_8 wird dem Element Gallium zugeordnet, welcher im ZnO als Donator wirkt. Welchem Element der Übergang I_5 zugeordnet werden kann, ist derzeit noch ungeklärt. In Relation zu den freien Exzitonen, zu finden bei einer Rekombinationsenergie von ca. $E_{FX}=3,375$ eV bei einer Temperatur von $T=5$ K (gestrichelte Linie in Abbildung 5.22), verliert die Intensität der Lumineszenz der donatorgebundenen Exzitonen mit steigender Temperatur. Dies ist damit zu begründen, dass mit steigender Temperatur die thermische Energie der Exzitonen zunimmt, bis zu dem Wert, der ausreicht, um das Potential dieses Donators zu verlassen. Der Komplex aus Exziton und Donator also dissoziiert. Die so freiwerdenden Exzitonen gehen somit über in den Pool der freien Exzitonen. Man spricht in diesem Zusammenhang entsprechend von einer *thermischen Aktivierung* der freien Exzitonen.

Energetisch unterhalb der I_8 Linie finden sich im Spektrum weitere Übergänge. Bei $T=5$ K

und einer Energie von $E=3,342$ eV befindet sich die Lumineszenz von an einen neutralen Akzeptor gebundenen Exzitonen [WAG05]. Bei einer Übergangsenergie von etwa $E=3,33$ eV (mit DBX - Defect-Bound-Exciton - gekennzeichnet) befindet sich ein Rekombinationskanal, der ebenfalls in [MEY04] diskutiert wird. Das Fazit, das hier gezogen wird ist, dass es sich bei diesem Übergang um exzitonische Lumineszenz handelt. Die Exzitonen sind dabei an Kristallfehler gebunden - z.B. Versetzungen. Somit handelt es sich also um eine strahlende Rekombination an einem Gitterfehler. Ähnliches wurde exzessiv am Materialsystem Galliumnitrid untersucht. Hier insbesondere im Zusammenhang mit der Polarisationsfeldreduktion durch Wachstum abweichend von der c-Richtung. Hier führen Stapelfehler zu sehr intensiver Lumineszenz, energetisch deutlich unterhalb der Bandkante [BAS10]. Unterhalb des DBX, bei einer Energie um $E=3,32$ eV, zeigen sich die Peaks von den Zweielektronensatelliten-Übergängen der donatorgebundenen Exzitonen I_8 , I_4 und I_5 . Hier bleibt der Donator in einem angeregten Zustand nach der Rekombination des an ihn gebundenen Exzitons zurück. Diese charakteristische Energie (der spektrale Abstand von D^0X zu TES) des angeregten Zustands lässt eine entsprechende Identifizierung des zugrundeliegenden Donators zu, sofern ihre energetische Position im elektronischen Gesamtsystem (also der Bandlücke) bekannt ist.

Energetisch unterhalb dieser Übergänge findet sich ein weiterer Lumineszenzpeak mit einer Lage um $3,305$ eV. In [KRO05] wird dieser Übergang mit der Verunreinigung des Materials mit geringen Konzentrationen Arsen in Verbindung gebracht. In der gewählten Darstellung nicht zu erkennen ist, dass dieser Übergang bei einer Temperatur von 30 K und höher zunehmend ausgeprägt sichtbar wird (sie schiebt jedoch zu kleineren Energien aus der Darstellung heraus). Bei Temperaturen unterhalb von $T=30$ K wird dieser Übergang von benachbarten strahlenden Übergängen dominiert.

Aufgrund der spektralen Auflösung ist in den dargestellten bzw. aufgenommenen Spektren keine Differenzierung der A-, B- und C-Valenzbandexzitonen erkennbar. Aus diesem Grund wird auch bei der Auswertung der Messdaten eine Integration über den gesamten spektralen Bereich dieser freien Exzitonen vorgenommen. Ferner überlagern mit zunehmender Temperatur aufgrund der thermischen Verbreiterung der Linien diese Komplexe, so dass bei höheren Temperaturen eine Unterscheidung auch mit einer höheren spektralen Auflösung nicht mehr möglich wäre.

Zur Bestimmung der Lage der Maskenkante x_0 in der Messung wurde wieder der simultan erfasste Sekundärelektronenkontrast betrachtet. In der Abbildung 5.23b ist der SE-Kontrast über den Ort des Linescans dargestellt. Blau markiert ist der Bereich der Maskenkante. Zu kleineren Werten der Position, in der Abbildung grau hinterlegt, befindet sich die vollständig ausgebildete Titanschicht.

In der Abbildung 5.23a ist die dem Linescan zugehörige Lumineszenzintensität der freien Exzitonen in Abhängigkeit vom Ort dargestellt. Es zeigt sich deutlich der starke Abfall der Lumineszenzintensität im Bereich der Maskenkante und ein weiteres Absinken der Intensität mit Fortschritt in den maskierten Bereich (also zu kleineren Werten der x-Achse). Der starke Abfall geschieht exakt im Bereich und der Ausdehnung der Maskenkante und kann mit einer Verringerung der Anregungsdichte in Richtung der Titanschicht erklärt werden. In der Abbildung 5.26a ist aufgezeigt, dass sich der Anstieg in diesem Bereich unter Änderung der Proben temperatur nicht ändert (siehe rote Linie). Die Unabhängigkeit von der Temperatur ist ein starkes Indiz für die Annahme, dass die Änderung der Anregungsdichte im verwendeten Modell mit berücksichtigt

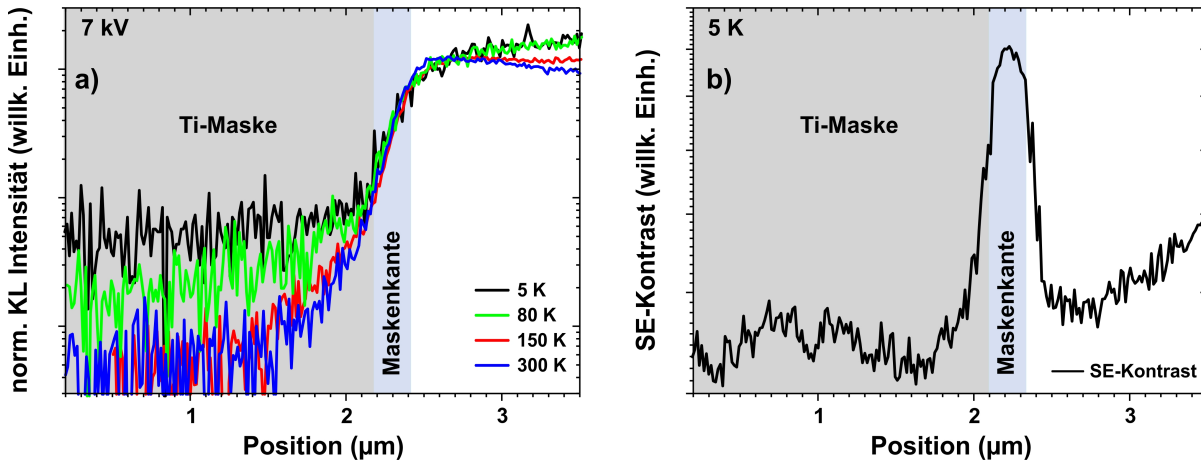


Abbildung 5.23: a) Linescan der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen senkrecht über eine Maskenkante für Temperaturen von $T=5\text{ K}$, $T=80\text{ K}$, $T=150\text{ K}$ und $T=300\text{ K}$. b) SE-Kontrast zum Linescan bei $T=5\text{ K}$. Blau hinterlegt ist die Position der Maskenkante, grau hinterlegt die Position der vollständig ausgebildeten Titanschicht.

werden muss und zudem keine Diffusions- oder Transporteigenschaften der Exzitonen wieder spiegelt. Diesem Umstand wird entsprechend den Ausführungen des Abschnitts 4.3.1 Rechnung getragen. Der interessierende Bereich des Linescans liegt deshalb insbesondere im Bereich der Titanschicht bis zur Maskenkante und im Bereich direkt am Ende der Maskenkante, hin zur freiliegenden Probenoberfläche.

Wie aus den dargestellten Intensitätsverläufen (Abb. 5.23a) ersichtlich ist, ändert sich der Anstieg der Lumineszenzintensität im Bereich der Titanschicht systematisch mit der Proben-temperatur. Bei hohen Temperaturen ist die Lumineszenzintensität von $x=0\ \mu\text{m}$ bis $x=1\ \mu\text{m}$ des Linescans nahezu konstant und steigt erst nahe der Maskenkante an (vgl. blaue Kurve bei $T=300\text{ K}$). Bei tiefen Temperaturen hingegen steigt die Lumineszenzintensität bereits von Beginn des betrachteten Bereichs in Richtung Maskenkante allmählich an (schwarze Kurve bei $T=5\text{ K}$), was für eine im Vergleich zu höheren Temperaturen größere Diffusionslänge spricht - sie gelangen bereits aus großer Entfernung in den unmaskierten Probenbereich und rekombinieren erst dort. Sie tragen somit zur Lumineszenzintensität bei, obwohl die Exzitonengeneration weit Entfernt vom Maskenrand unter der Titanschicht geschieht. Ein Anpassen der Lösung der eindimensionalen Diffusionsgleichung (4.26) mit (4.27) an den Verlauf der Lumineszenzintensität bestätigt diese Annahme. Die Ergebnisse der Anpassung sind in der Abbildung 5.26a dargestellt. Für eine Proben-temperatur von $T=8\text{ K}$ ist die entsprechende Anpassung der Gleichung (4.26) an den Intensitätsverlauf der freien Exzitonen in Abbildung 5.24 dargestellt. Wie hier zu sehen ist, werden die Messwerte hervorragend vom erarbeiteten Modell reproduziert. Im gezeigten Fall liegt die ermittelte Diffusionslänge bei $\lambda(8\text{ K})=4,1\ \mu\text{m}$. Die Diffusionslänge reicht somit von maximal $\lambda=4,1\ \mu\text{m}$ bei tiefer Temperatur bis hinunter zu $\lambda=1,12\ \mu\text{m}$ bei einer Proben-temperatur von $T=300\text{ K}$. Bis zu einer Temperatur von $T=30\text{ K}$ liegt die Diffusionslänge dabei nahezu konstant bei Werten um ca. $\lambda=4\ \mu\text{m}$, gefolgt von einem deutlichen Abfall mit weiter steigender Temperatur.

Um den Transport der freien Exzitonen beschreiben zu können und insbesondere Rückschlüsse

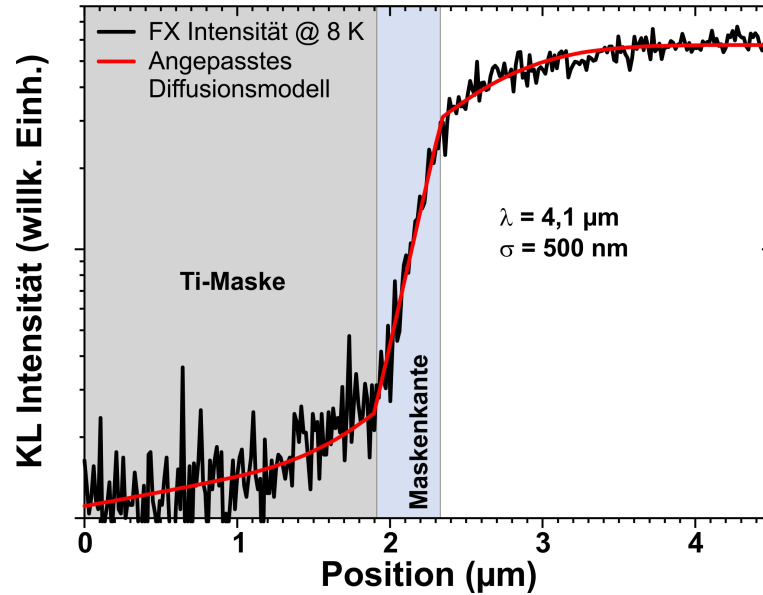


Abbildung 5.24: KL-Intensität der freien Exzitonen als Funktion der Position senkrecht zur Maskenkante (schwarz) bei einer Proben­temperatur von $T=8\text{ K}$ und zugehörige Anpassung der Diffusions­gleichung (rot) unter Berücksichtigung einer Änderung der Generationsrate im mit Titan bedeckten Gebiet inklusive des Kantenbereichs. Die Anregungsweite beträgt ca. $\sigma=500\text{ nm}$, die durch die Anpassung erhaltene Diffusionslänge beträgt $\mu=4,1\text{ }\mu\text{m}$

auf die zugrundeliegenden Streumechanismen ziehen zu können, muss zu der Diffusionslänge der freien Exzitonen auch deren anfängliche Lebensdauer bekannt sein (vgl. Abschnitt 2.7). Diese wird mittels zeitaufgelöster Kathodolumineszenzuntersuchungen erhalten, wie sie in Abschnitt 3.2 und 2.5 diskutiert werden. Die Transienten wurden sämtlich unter identischen Bedingungen aufgenommen wie die Linescans. Die Beschleunigungsspannung, Proben­temperaturen, als auch der in-pulse Strahlstrom wurden nominell identisch gewählt, also $I_{cw}=440\text{ pA}$ und $V_{Acc}=7\text{ kV}$. In der Abbildung 5.25 ist eine Auswahl der aufgenommenen Transienten für die Lumineszenz der freien Exzitonen für unterschiedliche Proben­temperaturen jeweils als Punktfolge dargestellt. Auch hier lässt sich eine eindeutige Abhängigkeit des Abklingverhaltens von der Temperatur erkennen. Bei tiefen Temperaturen (schwarze Kurve bei $T=5\text{ K}$) fällt die Lumineszenzintensität schnell ab, was mit einem „trapping“, also dem Einfang von Exzitonen in gebundene Zustände, erklärt werden kann. Aufgrund der geringen thermischen - und damit kinetischen - Energie werden sie leicht an Potentialmulden von z.B. neutralen Donatoren gebunden. Steigt die Temperatur an, so gelingt es einer zunehmenden Anzahl von gebundenen Exzitonen ihren Bindungspartner zu verlassen und als freie Exzitonen zu rekombinieren. Außerdem werden Exzitonen bei höheren Temperaturen aufgrund ihrer thermischen Energie mit einer verringerten Wahrscheinlichkeit an solche Störstellen gebunden. Infolge dessen steigt die Lebensdauer der freien Exzitonen. Dies ist erkennbar an einem geringeren Abfall der Lumineszenzintensität als Funktion von der Zeit (z.B. blaue Kurve bei $T=290\text{ K}$). Dies deckt sich auch mit den Intensitätsverhältnissen der Lumineszenz der freien und gebundenen Exzitonen in den zuvor gezeigten Spektren. Zugunsten der freien Exzitonen verlieren die gebundenen Exzitonen mit zunehmender Temperatur an Intensität.

Durch Anpassung der Gleichung (2.17) an den anfänglichen Abfall der Lumineszenzintensität erhält man die anfängliche Lebensdauer der freien Exzitonen von $\tau(5\text{ K})=0,3\text{ ns}$ bis $\tau(290\text{ K})=9,8\text{ ns}$. Dieser Anstieg der Lebensdauer mit zunehmender Temperatur verläuft über den gesamten betrachteten Temperaturbereich nahezu linear (vgl. Abbildung 5.26b). Die Zunahme der Lebensdauer mit steigender Temperatur zeugt von einer guten Kristallqualität, also wenigen Defekten und wenigen Störstellen, die eine nichtstrahlende Rekombination mit steigender Temperatur stark begünstigen würden. Die aus der Anpassung der Gleichung (2.17) erhaltenen Kurven sind in der Abbildung 5.25 als durchgezogene Linien dargestellt

Mit den Gleichungen (2.39) und (2.38) lässt sich nun aus den bekannten Größen der Diffusionslänge $\lambda(T)$ und der Lebensdauer $\tau(T)$ der freien Exzitonen die Diffusionskonstante $D(T)$ zu jeder Temperatur und hieraus die Beweglichkeit $\mu(T)$ ermitteln. Die Ergebnisse sind in der Abbildung 5.26c und d dargestellt.

Offensichtlich fällt der Wert der Diffusionskonstante (Abbildung 5.26c) für tiefe Temperaturen (von $T=5\text{ K}$ bis $T=30\text{ K}$) lediglich leicht von ca. $D(5\text{ K})=500\text{ cm}^2/\text{s}$ auf etwa $D(30\text{ K})=300\text{ cm}^2/\text{s}$. Mit weiter steigender Temperatur fällt die Diffusivität deutlich um zwei Größenordnungen bis zu einer Temperatur von $T=290\text{ K}$ auf $D(290\text{ K})=1,3\text{ cm}^2/\text{s}$ ab. Definiert man mittels der Einsteinbeziehung (2.38) aus der Diffusionskonstanten die exzitonische Beweglichkeit, so erhält man den in Abbildung 5.26d dargestellten Verlauf. Im Bereich von $T=5\text{ K}$ bis $T=300\text{ K}$ fällt die Beweglichkeit monoton von ca. $\mu=10^6\text{ cm}^2/\text{Vs}$ auf etwa $\mu=50\text{ cm}^2/\text{Vs}$. Wie bereits im Abschnitt

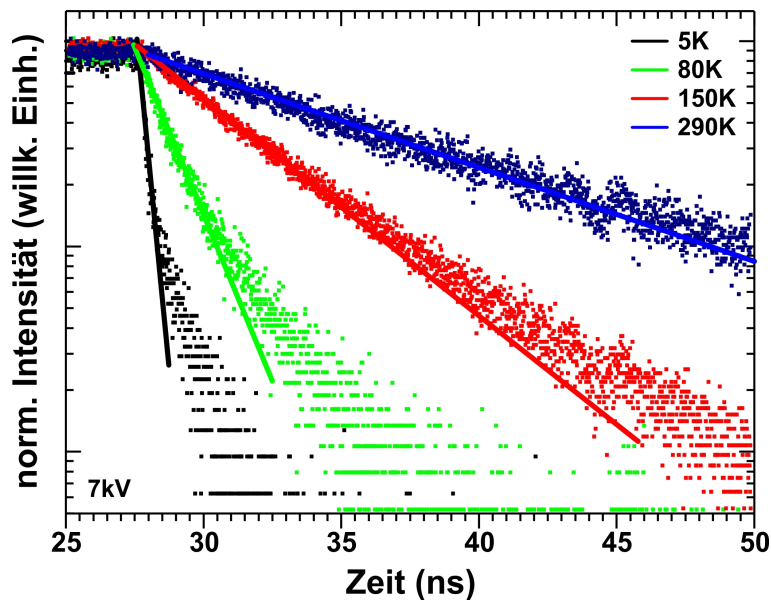


Abbildung 5.25: Transienten der Lumineszenz der freien Exzitonen für Temperaturen von $T=5\text{ K}$, $T=80\text{ K}$, $T=150\text{ K}$ und $T=290\text{ K}$, dargestellt als Punktfolge. Gezeigt ist der letzte Moment der stationären Anregung, sowie der anschließende Abfall der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen. Im Bereich des anfänglichen Abfalls sind mit durchgezogenen Linien die anfänglichen Zerfälle gekennzeichnet und stammen aus der Anpassung der Gleichung (2.17) an die entsprechenden Messdaten

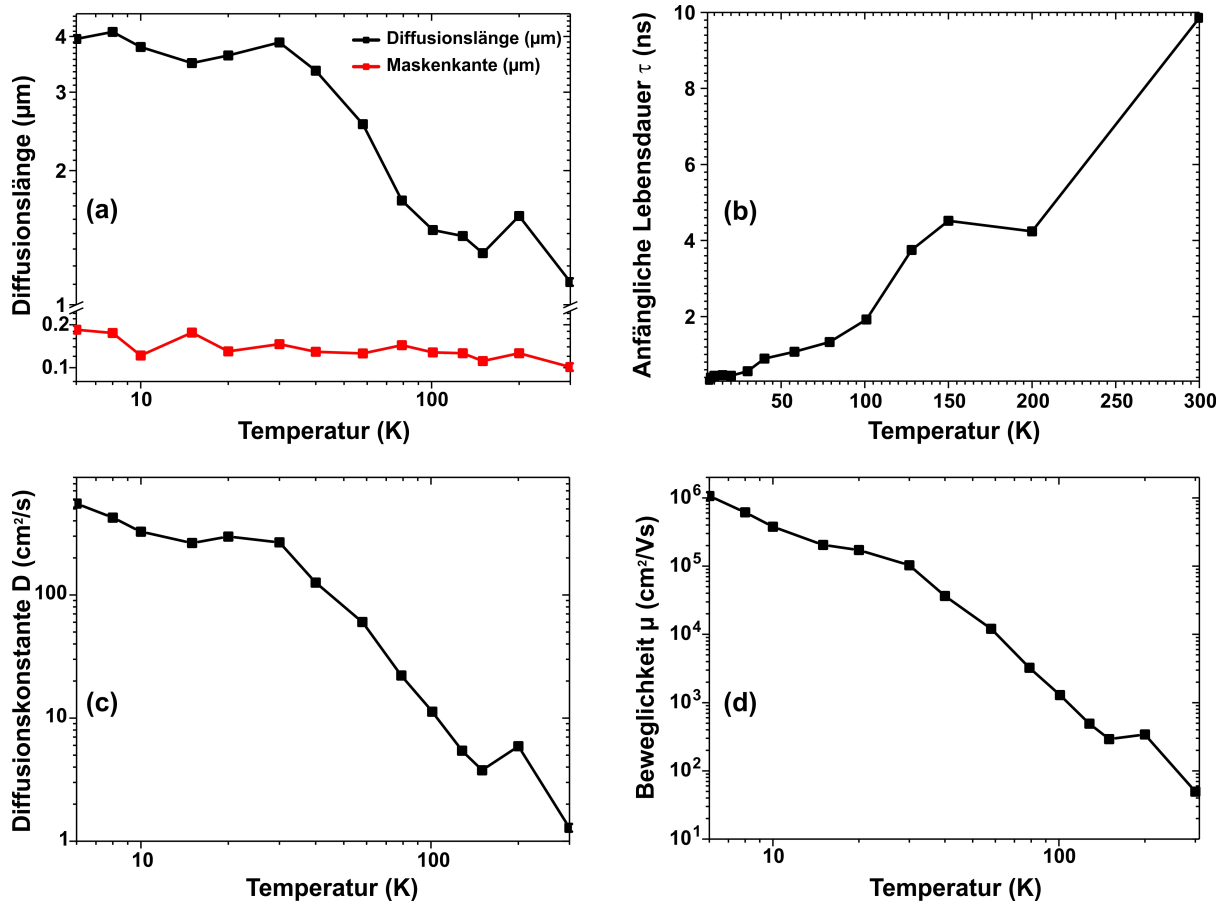


Abbildung 5.26: a) Aus den Linescans erhaltene Diffusionslängen λ (rot: Diffusionsgleichung auf Bereich der Maskenkante angewandt, schwarz: Diffusionsgleichung auf gesamten Verlauf des Linescans angewandt). b) aus den Transienten ermittelte anfängliche Lebensdauer τ , c) Diffusionskonstante D und d) Beweglichkeit μ der freien Exzitonen in Abhängigkeit von der Temperatur. Die roten Kurven in d) wurden aus allometrischen Anpassungen im Temperaturintervall von $T=5$ K bis $T=30$ K und $T=30$ K bis $T=290$ K erhalten.

2.7 beschrieben, überlagern sich die charakteristischen Beweglichkeiten der einzelnen Streumechanismen entsprechend der Matthiessen-Regel, also über die Summen der Kehrwerte ihrer charakteristischen Beweglichkeit.

In der Abbildung 5.27 ist das Ergebnis der entsprechenden Überlagerung von Beweglichkeiten zugehörig zur Streuung am akustischen Deformationspotential und der Fröhlich-Wechselwirkung aufgezeigt (rote Kurve). Dieser theoretische Verlauf der Beweglichkeit reproduziert den Verlauf der Beweglichkeit aus den Messwerten hervorragend, so dass davon ausgegangen werden kann, dass für diese untersuchte Probe, einem ZnO-Einkristall, im Bereich tiefer Temperaturen der dominierende Streumechanismus jener am akustischen Deformationspotential ist, wohingegen mit zunehmender Temperatur die Fröhlichwechselwirkung, also die Streuung mit longitudinal optischen Phononen in diesem polaren Kristall, überwiegt. Auch die aus der Anpassung hervorgegangene Debye-Temperatur von $T_D = 379$ K liegt nahe an dem Literaturwert von $T_D \approx 416$ K [LAN99].

Die hier nachgewiesenen Streumechanismen sind in Anbetracht der Tatsache, dass es sich

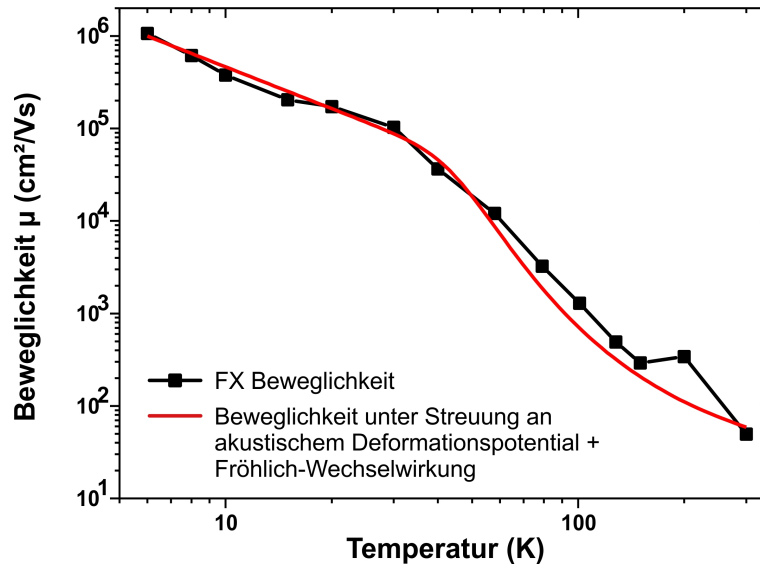


Abbildung 5.27: Beweglichkeit der freien Exzitonen in Abhängigkeit von der Temperatur in doppellogarithmischer Darstellung (schwarze Kurve). Theoretischer Verlauf der Beweglichkeit unter Annahme der Beteiligung von Deformationspotentialstreuung und Streuung mit longitudinal optischen Phononen (rote Kurve).

bei Exzitonen um elektrisch neutrale Teilchen handelt nachvollziehbar. Bei tiefen Temperaturen kann auch für den exzitonischen Transport in ZnO keine Streuung an ionisierten Störstellen nachgewiesen werden. Bereits bei tiefen Temperaturen werden akustische Phononen generiert, die eine Deformation des Kristallgitters und damit eine lokale Änderung der Potentiallandschaft generieren, je höher die Temperatur, desto größer. Auf diese kurzreichweitigen Potentialänderungen folgt die Induktion eines Dipolmoments im Exziton, welches sich in unmittelbarer Umgebung des Phonons befindet, so dass am entstandenen Feld bzw. Feldgradienten eine Streuung auftreten kann. Mit zunehmender Temperatur werden mit wachsender Wahrscheinlichkeit zudem longitudinal optische Phononen erzeugt. Auch diese erzeugen eine entsprechende (stärkere) Deformation in der Potentiallandschaft. Die Tatsache, dass es sich bei dem ZnO um einen polaren Kristall handelt (mit wurtzitischer Struktur) bedingt die Fröhlichwechselwirkung mit dem charakteristischen exponentiellen Abklingen der Beweglichkeit mit steigender Temperatur.

Richtungsabhängigkeit der exzitonischen Diffusionslänge

Um zu prüfen, ob in dem vorliegenden Kristall eine Richtungsabhängigkeit der Diffusionslänge vorliegt, wurde an einer weiteren Position auf der Probe an einer der rechteckigen Masken an zwei orthogonal zueinander stehenden Kanten die Diffusionslänge der freien Exzitonen mittels Linescans ermittelt. Da die Probe in c -Richtung gewachsen ist und in der c -Ebene die Diffusionsmessungen durchgeführt werden, sollte aufgrund der Kristallsymmetrie keine Abhängigkeit von der Richtung feststellbar sein. Dies bestätigen die durchgeführten Untersuchungen. In der Abbildung 5.28a ist exemplarisch zum Vergleich die KL-Intensität der freien Exzitonen in Abhängigkeit von der Position über der Maskenkante dargestellt. Es ist leicht zu erkennen, dass sowohl für die „Richtung 1“, als auch für die „Richtung 2“ die Intensitätsverläufe nahezu deckungsgleich verlaufen. Die entsprechende Auswertung mit der Gleichung (4.26) verifiziert diesen Eindruck (vgl. Abbildung 5.28b)).

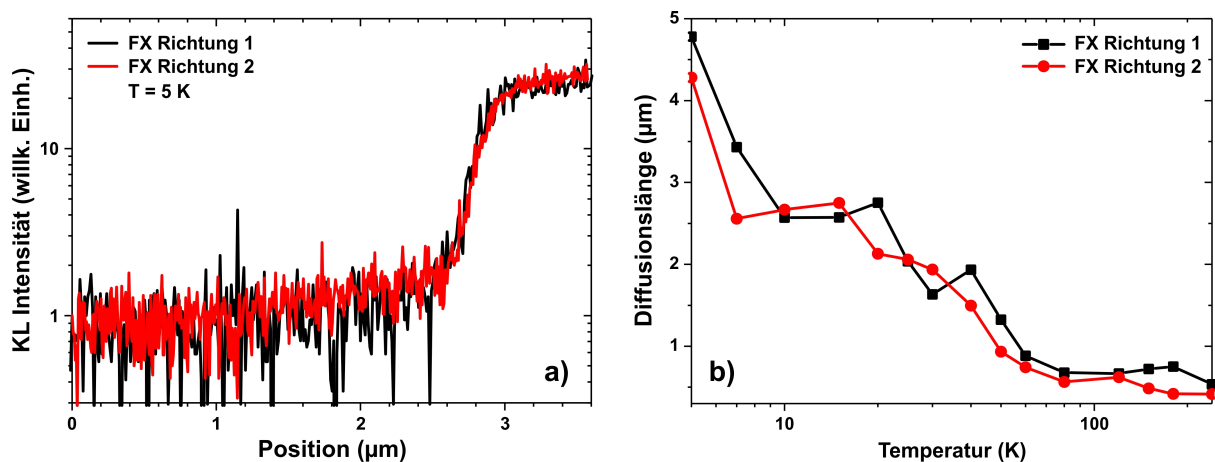


Abbildung 5.28: a) Vergleich des KL-Intensitätsverlaufs der freien Exzitonen für die zwei orthogonal zueinander verlaufenden Orientierungen bei einer Proben temperatur von $T=5\text{ K}$. b) Vergleich der Diffusionslängen beider Orientierungen in Abhängigkeit von der Proben temperatur.

Die Diffusionslängen unterscheiden sich über den gesamten betrachteten Temperaturbereich, das heißt von $T=5\text{ K}$ bis $T=240\text{ K}$ praktisch nicht und auch der qualitative Verlauf ist über das gesamte Temperaturintervall identisch. Die Diffusionslängen erreichen dabei Werte um $\lambda=4,5\ \mu\text{m}$ bei $T=5\text{ K}$ und fallen mit steigender Temperatur bis ca. $\lambda=0,5\ \mu\text{m}$.

Die Änderung der Diffusionslänge mit der Temperatur unterscheidet sich in diesem Fall von der im vorangegangenen Abschnitt. Dies ist zum einen darauf zurückzuführen, dass an einer gänzlich anderen Probenposition gemessen wurde. Zum anderen wurden diese Messungen bei fortgeschrittenem Probenalter durchgeführt. Durch Oxidation und chemische Reaktionen mit dem umgebenden Medium (die Probe wurde unter normaler Atmosphäre gelagert) kann eine Beeinflussung stattgefunden und so deren Charakter, insbesondere in Bezug auf die Transporteigenschaften der freien Exzitonen verändert haben.

Auf eine Untersuchung der Streumechanismen wurden an dieser Stelle verzichtet, da einzig der Einfluss der Orientierung auf die Diffusionslänge untersucht werden sollte.

Ambipolarer Transport im ZnO-Einkristall

Wie bereits beim GaN gezeigt, erlaubt es die verwendete Messmethode bei der Aufnahme der Linescans zu jedem Punkt der betrachteten Linie ein Spektrum aufzunehmen. Entsprechend stehen diese Daten für die anschließenden Auswertung zur Verfügung, so dass keine Beschränkung auf lediglich die freien Exzitonen besteht. Um den sogenannten ambipolaren Transport bzw. im konkret vorliegenden Fall die ambipolare Diffusionslänge zu bestimmen wurde die KL-Intensität des gesamten aufgenommenen Spektralbereichs aufsummiert und der Intensitätsverlauf über die Maskenkante mit der Gleichung (4.26), wie bereits für die freien Exzitonen, ausgewertet. Ambipolar, im eigentlichen Sinne die Gesamtheit von Elektronen und Löchern, ist in diesem Falle so zu verstehen, dass sämtliche Übergänge und sämtliche Komplexe die im aufgenommenen Spektrum (siehe Abbildung 5.22) existieren bzgl. ihrer Diffusionseigenschaften berücksichtigt werden.

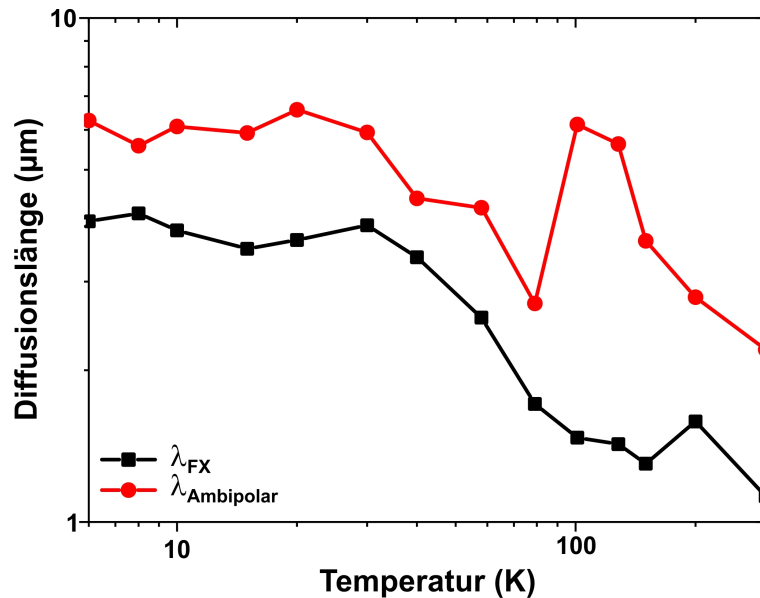


Abbildung 5.29: Vergleich der ambipolaren Diffusionslänge (rot), ermittelt aus dem spektral integralen Intensitätsverlauf des betrachteten Wellenlängenbereichs, mit der Diffusionslänge der freien Exzitonen (schwarz).

In der Abbildung 5.29 sind die erhaltenen Diffusionslängen für die freien Exzitonen im direkten Vergleich zur ambipolaren Diffusionslänge aufgetragen. Die ambipolare Diffusionslänge liegt dabei über den gesamten Temperaturbereich ca. $\Delta\lambda=1\mu\text{m}$ bis $\Delta\lambda=1,5\mu\text{m}$ höher als die der freien Exzitonen. Eine Erklärung hierfür könnte der Beitrag der gebundenen Exzitonen sein. So ist folgendes denkbar: Die freien Exzitonen besitzen eine relativ hohe Diffusionslänge und eine hohe Beweglichkeit. Damit verbunden ist eine relativ hohe kinetische Energie, welche über Stöße reduziert wird. Ist ihre kinetische Energie klein genug, werden sie bei tiefen Temperaturen an Potentialminima eingefangen. Dieser Ort des Einfangs jedoch kann in seiner Entfernung zum Ort der Anregung bereits der Diffusionslänge der freien Exzitonen entsprechen. Von hieraus ist ein jedoch weiterer Transport hin zu noch tiefer liegenden Potentialen (neutraler Akzeptor, struktureller Defekt etc.) möglich. So, dass der Beitrag von an Störstellen gebundene Exzitonen wesentlich weiter vom Ort der Anregung entfernt sein kann, als die freien Exzitonen in der Lage

sind zu diffundieren. Es könnte sich also um eine Art des Hopping Transports handeln. Die bei Ladungsträgern üblicherweise zu beobachtende thermische Aktivierung ist hier nicht erkennbar und wird unter Umständen bei Temperaturerhöhung durch den Übergang der gebundenen zu freien Exzitonen und deren Verringerung der Diffusionslänge mit steigender Temperatur zum Teil kompensiert. Der Anteil freier Exzitonen nimmt in der gewählten Betrachtung mit zunehmender Temperatur zu, so dass also ein entsprechend stärkere Gewichtung auf deren Diffusionslänge liegt.

Aufgrund einer nicht idealen Maskierung konnte für Temperaturen von $T=100\text{ K}$, $T=120\text{ K}$ und $T=150\text{ K}$ die in diesem Fall erhaltene Linienform der Lumineszenzintensität in Abhängigkeit vom Ort vom erarbeiteten Modell nicht so akkurat reproduziert werden, wie jene der bei anderen Temperaturen erhaltenen Intensitätsverläufe.

5.3.2 Methode 2: transparente Kreisflächen

Mit der Methode der transparenten Kreisflächen, zur Analyse des exzitonischen Transports, wurde ein weiteres ZnO-Substrat untersucht. Das ZnO-Substrat stammt von der Firma Tokyo Denpa und wurde mit der in Kapitel 3.3 vorgestellten Methode zur Erzeugung von Lochmasken prozessiert. Die Untersuchungen zur anfänglichen Lebensdauer der freien Exzitonen wurde vor der Prozessierung möglichst mittig der Probe durchgeführt. Hier wurden dann ortsnah auch die transienten Messungen an den Löchern durchgeführt. Zuvor jedoch erfolgten spektrale Analysen der Lumineszenz unter kontinuierlicher Anregung. Die aufgenommenen Spektren zu unterschiedlichen Probertemperaturen sind in der Abbildung 5.30 dargestellt. Sowohl die Abnahme der Lumineszenzintensität, als auch die Rotverschiebung der Lumineszenz der freien Exzitonen (eingezeichnete gestrichelte Linie) erfolgt streng monoton mit steigender Temperatur, wobei diese bei $T=5\text{ K}$ bei $E_{FX}=3,374\text{ eV}$ liegt. Sämtliche Untersuchungen erfolgten bei einer Primärelektronenenergie von $E=5\text{ keV}$ und einem Strahlstrom von $I=560\text{ pA}$.

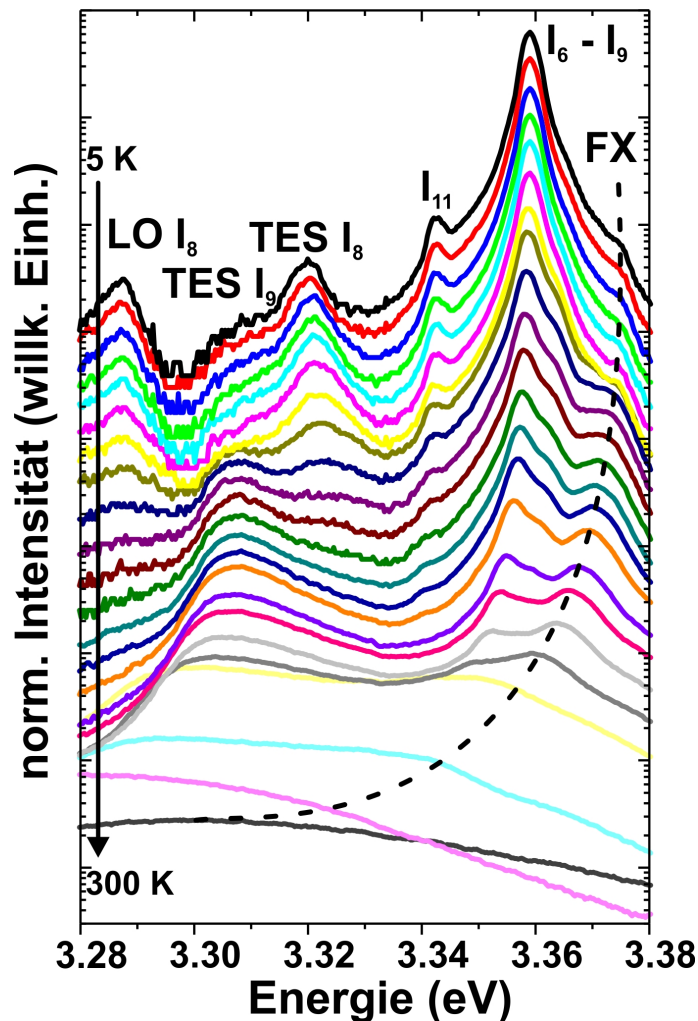


Abbildung 5.30: KL-Spektren zu unterschiedlichen Probertemperaturen ($T=5\text{ K}$ bis $T=300\text{ K}$). Die gestrichelte Linie markiert die jeweilige spektrale Position der Lumineszenz freier Exzitonen. Neben der energetisch hierunter liegenden Lumineszenz gebundener Exzitonen I_6 bis I_9 und I_{11} treten deren Zweielektronen-Übergänge ($TES I_8$ und $TES I_9$) und ein LO-Replik von I_8 auf.

Energetisch unterhalb der Übergänge der freien Exzitonen finden sich die Übergänge gebundener Exzitonen. Identifiziert werden konnten die Übergänge von I_6 bis I_9 (um $E=3,358$ eV) und I_{11} (um $E=3,342$ eV). Von den Übergängen I_8 und I_9 gibt es Zweielektronenübergänge (TES), bei denen nach der Rekombination des Exzitons der zurückbleibende Donator in einem angeregten Zustand (z.B. $2s$, $2p$) zurückbleibt. Von I_8 findet sich ein unter Generation eines longitudinal optischen Phonons erzeugter LO-Replik, 72 meV unterhalb der I_8 -Linie. Hierbei wird ein Teil der Übergangsenergie eines rekombinierenden I_8 Exzitons an das Kristallgitter in Form eines Phonons abgegeben. Aus der energetischen Differenz dieser beiden Übergänge (I_8 und LO I_8) lässt sich eine LO-Phononenenergie von $E_{LO}=72$ meV ableiten.

Mittels zeitaufgelöster Kathodolumineszenz wurden an derselben Position, an der auch die Spektren aufgenommen wurden, Transienten der Lumineszenz der freien Exzitonen aufgenommen. Den Abfall der Lumineszenzintensität direkt nach dem Abschalten der Anregung im Gleichgewichtszustand ist in der Abbildung 5.31a für verschiedene Proben temperaturen dargestellt. Hier ist zu sehen, dass mit zunehmender Temperatur der Probe, der Abfall der Lumineszenzintensität zunehmend langsamer verläuft, der Abfall also in den Transienten zunehmend flacher ausfällt. Dies entspricht einer Erhöhung der Lebensdauer mit zunehmender Temperatur.

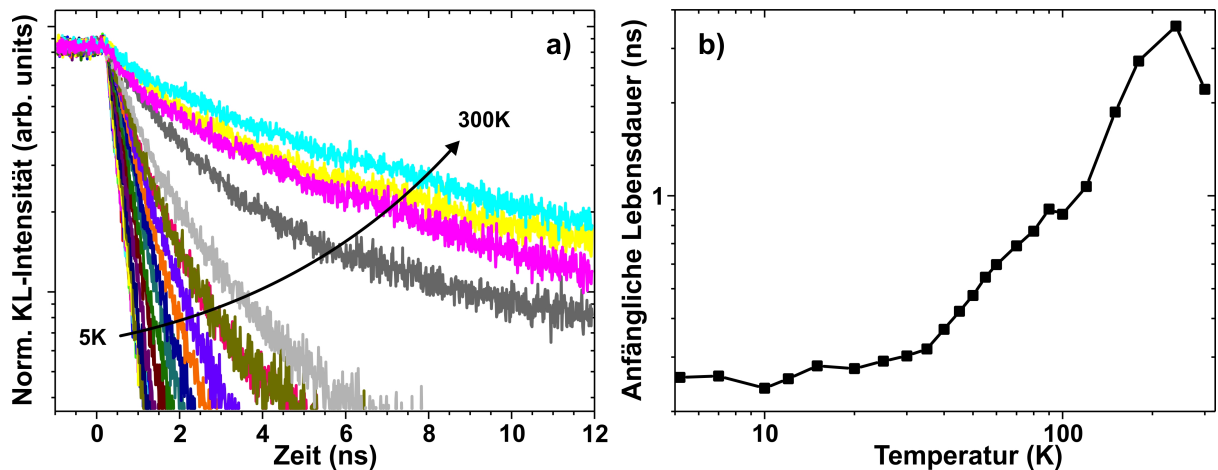


Abbildung 5.31: a) Transienten der FX-Lumineszenz für Temperaturen von $T=5$ K bis $T=300$ K (Pfeil), dargestellt für den letzten Moment der Anregung und dem sich anschließenden Abfall der Lumineszenzintensität. b) Anfängliche Lebensdauer τ der freien Exzitonen, ermittelt aus dem anfänglichen Abfall der Lumineszenz in den Transienten.

Wie in der Abbildung 5.31b zu sehen ist, steigt die anfängliche Lebensdauer mit zunehmender Temperatur monoton von $T=5$ K bis $T=240$ K von $\tau=0,26$ ns bis $\tau=2,2$ ns. Bei einer Proben temperaturen von $T=300$ K liegt die ermittelte anfängliche Lebensdauer τ der freien Exzitonen unterhalb derer bei $T=240$ K. Offenbar wurden durch die im Vergleich mit niedrigeren Temperaturen geringe Intensität der Lumineszenz und damit einhergehend ein weit geöffneter Monochromator-Eintrittsspalt weitere spektrale Anteile in das Lumineszenzsignal integriert. Diese können durch Prozesse geringerer Lebensdauer beinhalten und so die erhaltene Transiente bzw. ermittelte Lebensdauer kürzer erscheinen lassen. Daher wird in der weiteren Auswertung die Proben temperaturen $T=300$ K ausgespart.

Nachdem sowohl die spektralen Eigenschaften als auch die anfänglichen Lebensdauern der

freien Exzitonen für ein weites Temperaturfenster bestimmt wurden, wurde die Probe mit der Titanmaske inkl. darin enthaltener zirkularer Aperturen versehen. Die hierfür verwendeten Polystyrenkugeln wurden mit Durchmessern von $K=0,5\ \mu\text{m}$ und $K=1\ \mu\text{m}$ auf die Probenoberfläche aufgetragen. Anschließend wurde die Probe mit den Kugeln mittels thermischer Verdampfung mit einer $d=160\ \text{nm}$ dicken Titanschicht versehen. Ein großer Dank sei an dieser Stelle apl. Prof. Dr.rer.nat. Armin Dadgar für die Bedampfungen ausgesprochen. Nach anschließendem Ablösen der Kugeln wurden SE-Kontrastbilder mit einem FEREM aufgenommen, um die Qualität der entstandenen Maskierung zu untersuchen (siehe Abbildung 5.32).

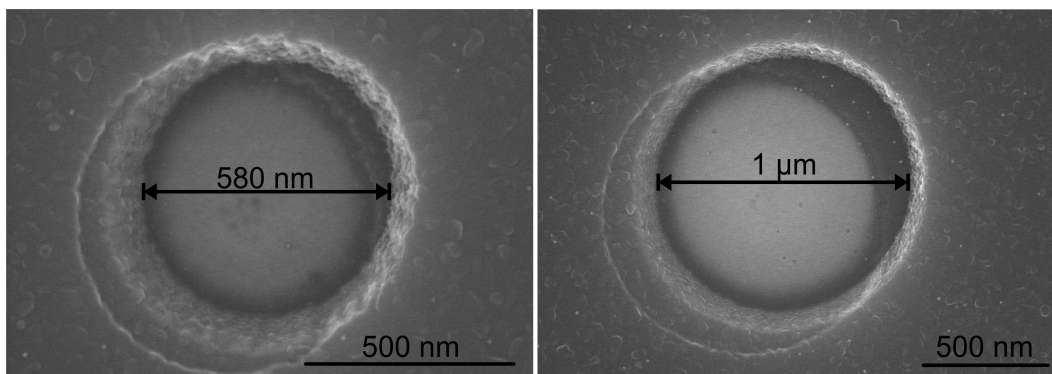


Abbildung 5.32: SE-Kontrastbilder, aufgenommen mit einem FEREM. Die entstandenen zirkularen Löcher besitzen Durchmesser von $K=580\ \text{nm}$ und $K=1\ \mu\text{m}$. Der am linken, unteren Rand der beiden Abbildung erkennbare „Schatten“ rührt von einem zweistufigen Bedampfungsprozess her, wobei die Titanquelle gegenüber dem ersten Bedampfungsschritt offenbar minimal lateral verschoben wurde. Die Weite der Kante bzw. Wandung der Löcher beträgt ca. $w=50\ \text{nm}$.

Wie in den Abbildungen zu sehen ist, besitzen die Löcher eine hervorragende radiale Symmetrie und steile Wandungen mit einer Weite, gemittelt aus mehreren Messungen an unterschiedlichen Stellen, von ca. $w=50\ \text{nm}$. Im Zentrum des Lochs mit einem Durchmesser von $K=1\ \mu\text{m}$ wurden die weitergehenden Transportuntersuchungen durchgeführt - das heißt, zeitaufgelöste Kathodolumineszenzmessungen vorgenommen (siehe Abbildung 5.33).

Wie hier in der Abbildung 5.33 zu sehen ist, ändert sich der Abfall der Transienten für Temperaturen unterhalb von $T=240\ \text{K}$ ($T=240\ \text{K}$ cyan) praktisch nicht, was auch die Auswertung der anfänglichen Zerfallszeit bestätigt (siehe Abbildung 5.34a - rote Linie). Auch für Temperaturen oberhalb von $T=180\ \text{K}$ (gelb) liegt die anfängliche Zerfallszeit nur geringfügig über denen der darunter liegenden Temperaturen. Es ist davon auszugehen, dass die Zeitauflösung der verwendeten Apparatur nicht der limitierende Faktor war, da die zeitliche Auflösung des KL-Detektionssystems mit unter $t=100\ \text{ps}$ deutlich unter den hier erhaltenen anfänglichen Zerfallszeiten von ca. $\tau_{hole}=250\ \text{ps}$ liegt. Die erhaltenen, anfänglichen Zerfallszeiten sind demnach in dieser Form offenbar real.

Aufgrund der Diffusion der freien Exzitonen aus dem Gebiet des Lochs unter die Titanmaske, welche undurchlässig für die entstehende Lumineszenz ist, muss ihre anfängliche Zerfallszeit (aus dem Gebiet des Lochs) unterhalb der anfänglichen Lebensdauer der freien Exzitonen liegen. Ein

Teil der erzeugten, freien Exzitonen trägt somit nicht mehr zum Lumineszenzsignal bei. Gerade die langlebigen unter ihnen sind in der Lage das bedeckte Gebiet zu erreichen, während die kurzlebigen Exemplare tendenziell eher innerhalb des Lochkreises rekombinieren.

Die Abbildung 5.34a zeigt sowohl die aus monoexponentiellen Anpassungen erhaltenen anfänglichen Lebensdauern (schwarze Linie), wie auch die anfänglichen Zerfallszeiten der freien Exzitonen (rote Linie). Letztere liegen, wie erwartet, für alle betrachteten Probentemperaturen unterhalb der anfänglichen Lebensdauer. Mit steigender Temperatur erhöht sich die Differenz monoton.

Die Differenz dieser ermittelten Lebens- bzw. Zerfallszeiten ist die Grundlage zur Bestimmung der Diffusionskonstante. Die Ergebnisse der Anpassung von Gleichung (4.46) an den anfänglichen Abfall der Transienten, die für die Löcher erhalten wurden, ist in der Abbildung 5.34b dargestellt. Im Temperaturbereich von $T=5\text{ K}$ bis ca. $T=25\text{ K}$ ergibt sich ein nahezu konstantes Niveau der Diffusionskonstante mit Werten um $D=2\text{ cm}^2/\text{s}$. Mit weiter steigender Temperatur wächst auch die Diffusionskonstante an und erreicht im Maximum bei $T=180\text{ K}$ etwa $D=22\text{ cm}^2/\text{s}$. Eine Auswertung der Diffusionskonstante bei noch höheren Temperaturen war leider nicht möglich, da kein Parameter-Set des verwendeten Modells die Linienform der Transienten ausreichend gut zu reproduzieren vermochte. Dennoch lässt sich erkennen, dass sich ab ca. $T=100\text{ K}$ ($D=20\text{ cm}^2/\text{s}$) eine allmähliche „Sättigung“ der Diffusionskonstante mit steigender Temperatur einstellt und für weiter steigende Temperaturen die Zunahme der Diffusivität nur noch gering ausfällt.

Unter Verwendung der Einsteinrelation (2.38) wurde aus den Diffusionskonstanten die temperaturabhängige Beweglichkeit der freien Exzitonen bestimmt. Wie der Abbildung 5.34d zu entnehmen ist, bewegt sich diese im betrachteten Temperaturintervall zwischen etwa $\mu=1000\text{ cm}^2/\text{Vs}$ und knapp über $\mu=4000\text{ cm}^2/\text{Vs}$. Ein eindeutiger Trend über das gesamte be-

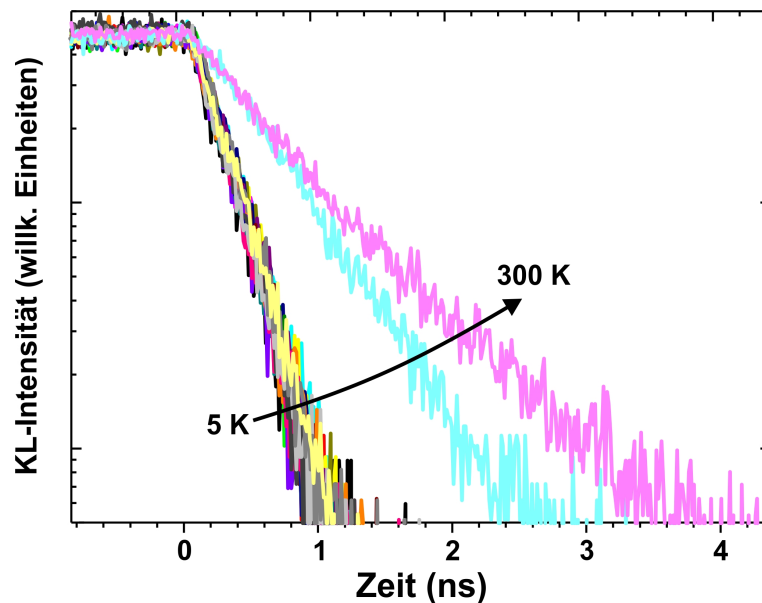


Abbildung 5.33: Transienten der FX-Lumineszenz für Temperaturen von $T=5\text{ K}$ bis $T=300\text{ K}$, dargestellt für den letzten Moment der Anregung und dem sich anschließenden Abfall der Lumineszenzintensität, erhalten aus dem Gebiet eines Loches mit $K=1\text{ }\mu\text{m}$ Durchmesser.

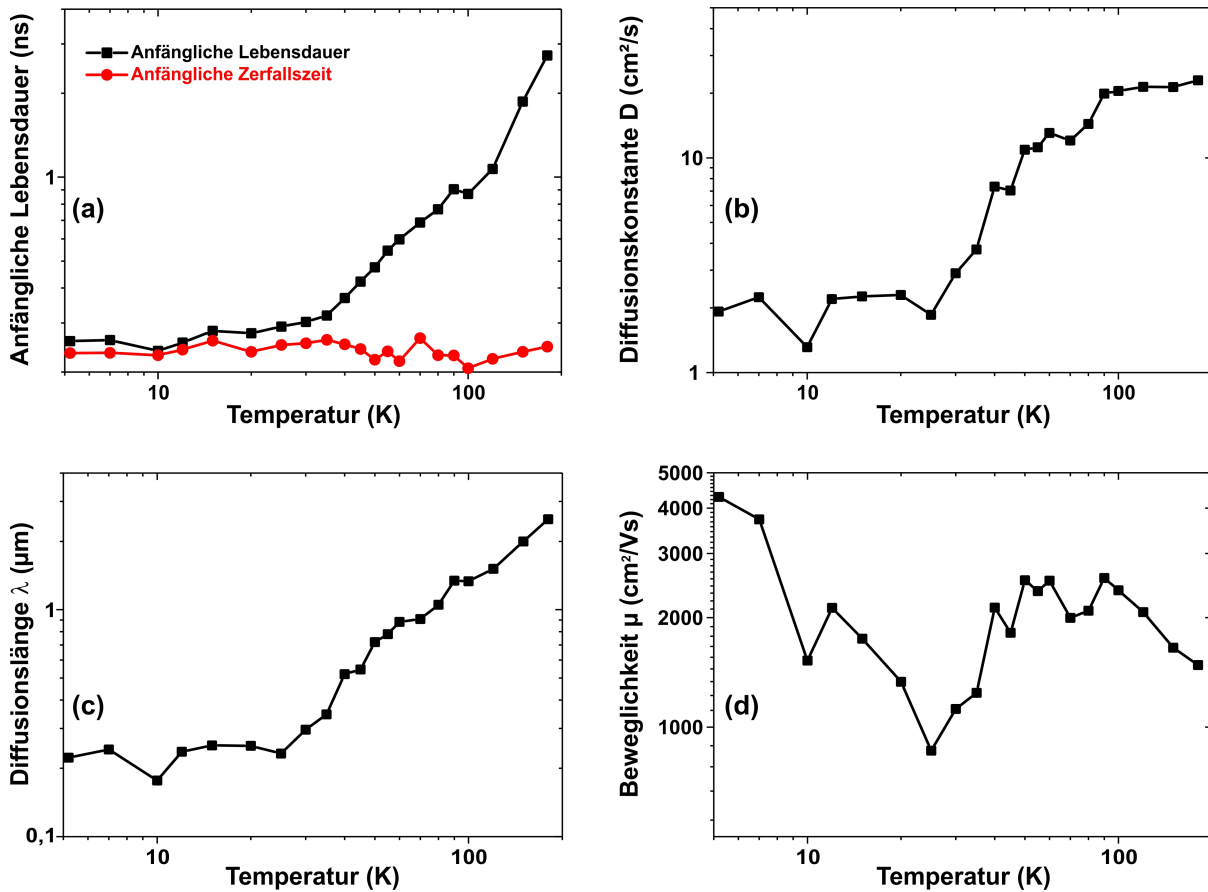


Abbildung 5.34: Jeweils als Funktion der Proben­temperatur: a) Vergleich der anfänglichen Lebensdauer (schwarz) und Zerfallszeit aus dem Loch (rot) der freien Exzitonen. b) durch Anwendung der Gleichung (4.46) erhaltene Diffusionskonstanten der freien Exzitonen. c) aus der anfänglichen Lebensdauer und der Diffusionskonstanten erhaltene Diffusionslänge der freien Exzitonen und d) mittels Einsteinrelation erhaltene Beweglichkeit der freien Exzitonen.

trachtete Temperaturintervall, wie es in den vorangegangenen Abschnitten 5.3.1, 5.2.1 und 5.2.2 der Fall ist, kann hier nicht gefunden werden. Auch eine Anpassung der charakteristischen Beweglichkeiten der verschiedenen Streumechanismen an diesen Verlauf der Beweglichkeit ist nicht möglich. Folglich ist keine Aussage über die am Transport beteiligten Streumechanismen möglich. Keine Kombination der bekannten Streumechanismen ergibt den hier gefundenen Zusammenhang von Beweglichkeit zu Proben­temperatur.

Der hier ermittelte Verlauf der Beweglichkeit spiegelt also ggf. einen Streumechanismus wider, der bisher keine Beachtung fand, oder aber die verwendete Methode zur Bestimmung der Transportparameter hat in diesem Fall versagt. Auch, wenn sie, wie in Abschnitt 5.2.2 gesehen und auch in den nun nachfolgenden beiden Abschnitten gezeigt, zur Ermittlung von exzitonischen Transporteigenschaften geeignet ist. Leider kann zu diesem Zeitpunkt keine Aussage dazu getroffen werden, welcher Fall vorliegt.

5.4 Exzitonischer Transport in keilförmigen ZnO/MgZnO-Quantenfilmen

Neben dem Ziel dieser Arbeit, die Funktionalität der vorgestellten Methoden aufzuzeigen und entsprechende Lösungen für die theoretische Beschreibung der Transportkenngrößen aus den erhaltenen Messgrößen zu erhalten, ist es auch ein Ziel, den exzitonischen Transport an Grenzflächen des ZnO zu untersuchen. Nachdem in den vorangegangenen Abschnitten die Grundlagen für die Untersuchungen gelegt und anhand ausgewählter Proben die grundsätzliche Machbarkeit gezeigt wurde, werden in den nachfolgenden Abschnitten Analysen des exzitonischen Transports innerhalb von bzw. an den Grenzflächen von ZnO-Quantenfilmen besprochen, welche dank ihrer hohen kristallinen Qualität insbesondere in Bezug auf glatte Grenzflächen den Quantum Confined Stark Effect (QCSE) zeigen.

5.4.1 ZnO/MgZnO-QW: Filmdicke $q=4$ nm

Den Einstieg gibt eine keilförmig, mittels PLD gewachsene ZnO-Quantenfilm-Probe. Hergestellt wurde diese Probe in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Marius Grundmann an der Universität Leipzig. Eingebettet in ebenfalls keilförmig ausgestaltete MgZnO-Barrieren mit einer Mg-Konzentration von rund 6% wurde diese Probe auf ein ZnO-Substrat aufgebracht (vgl. Abbildung 5.35). Auf das Substrat wurde eine Pufferschicht ZnO mit einer Schichtdicke von 100-130 nm aufgebracht. Die untere MgZnO-Barrierenschicht besitzt eine Schichtdicke von 60-80 nm, die obere eine Schichtdicke von 15-20 nm. Der hierin eingebettete ZnO-QW wurde mit einer Dicke von 4-5,4 nm realisiert.

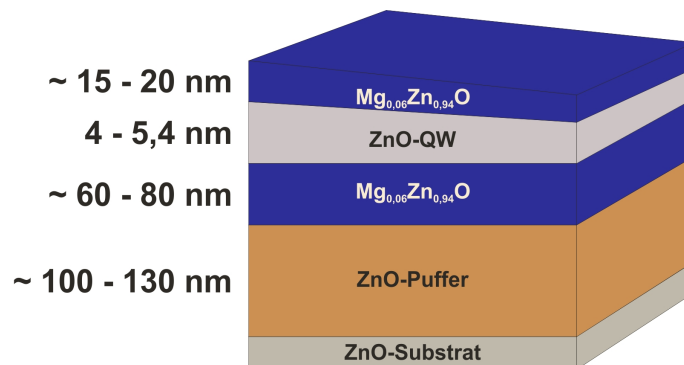


Abbildung 5.35: Schematischer Probenaufbau der keilförmig, mittels PLD gewachsenen ZnO-Quantenfilm-Struktur. Aufgewachsen auf ein ZnO-Substrat wurde eine erste, 100-130 nm dicke, keilförmige ZnO-Pufferschicht, gefolgt von der unteren Barrierenschicht $\text{Mg}_{0,06}\text{Zn}_{0,94}\text{O}$, ebenfalls keilförmig gewachsen mit einer Schichtdicke von 60-80 nm. Der Quantenfilm (QW) selbst besitzt eine Schichtdicke von 4-5,4 nm, die obere Barriere und damit letzte Schicht der Struktur besitzt eine Dicke von 15-20 nm.

Abhängigkeit der Kathodolumineszenz von der Anregungsdichte

Vor der Durchführung der eigentlichen Transportuntersuchungen wurde die Probe mittels Kathodolumineszenzuntersuchungen charakterisiert. Hierzu gehören Analysen der Quantenfilm- sowie der Barrierenlumineszenz in Abhängigkeit von der Temperatur, sowie der Anregungsdichte.

Die Abhängigkeit der spektralen Peak-Position von der Anregungsdichte (sowohl von der Quantenfilmlumineszenz als auch der Barrierenlumineszenz) wurde bei einer Probentemperatur von $T=5\text{ K}$ und einer Primärelektronenenergie von $E_e=5\text{ keV}$ (entspricht einer Betherreichweite von ca. 420 nm) analysiert. Der dabei abgedeckte spektrale Bereich erstreckt sich von $E=2,9\text{ eV}$ bis $E=4,0\text{ eV}$, die gewählten Strahlstromstärken lagen zwischen $I=14\text{ pA}$ und $I=39\text{ nA}$.

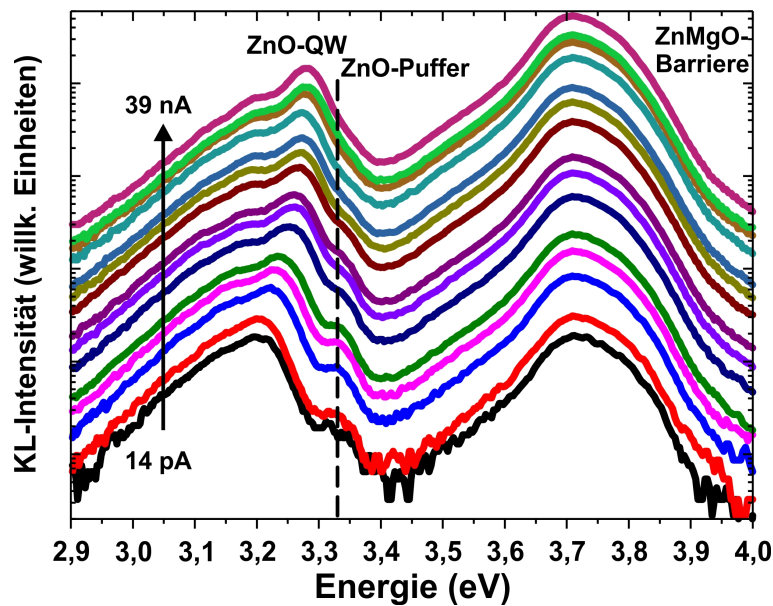


Abbildung 5.36: Kathodolumineszenzspektren für verschiedene Strahlströme (d.h. unterschiedliche Anregungsdichten) der untersuchten MgZnO/ZnO Quantenfilm-Probe. Die Kathodolumineszenzintensität innerhalb dieser Darstellung ist unter den Spektren direkt vergleichbar, der Strahlstrom wurde variiert von $I=14\text{ pA}$ bis $I=39\text{ nA}$ bei einer Probentemperatur von $T=5\text{ K}$ und einer Primärelektronenenergie von $E_b=5\text{ keV}$.

Die entsprechenden Spektren sind in der Abbildung 5.36 dargestellt. Dominiert werden die Spektren von der Barrierenlumineszenz des MgZnO bei einer Rekombinationsenergie von $E_{\text{MgZnO}}=3,71\text{ eV}$. Wie in der Abbildung erkennbar ist, ist diese spektrale Position unabhängig von der konkreten Anregungsdichte bzw. Strahlstromstärke. In [OEZ05] wird ein formaler Zusammenhang für die Magnesiumkonzentration und dem Bandabstand im $\text{Mg}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}$ beschrieben. Die Gleichung (5.2) zeigt diesen Zusammenhang auf. Die Variable b ist der sogenannte „Bowling-Faktor“ und ist verantwortlich für die Nichtlinearität der Bandlücke in Abhängigkeit von der Magnesiumkonzentration.

$$E_g(x) = (1 - x)E_{\text{ZnO}} + x \cdot E_{\text{MgO}} - bx(1 - x) \quad (5.2)$$

Von nur unwesentlich geringerer Intensität im Vergleich zur Barrierenlumineszenz findet sich die Lumineszenz des QW bei $E_{\text{QW}}=3,19\text{ eV}$ bei einem Strahlstrom von $I=14\text{ pA}$. Bei hohen

Strahlströmen ist energetisch unterhalb dieses Peaks im Spektrum ein Nebenmaximum als schwach ausgeprägte Schulter des QW-Peaks erkennbar. Hierbei handelt es sich offenbar um einen LO-Phononen-Replik der ZnO-QW Lumineszenz mit einem energetischen Abstand von $\Delta E = 72 \text{ meV}$ zum Peak der QW-Lumineszenz. Sowohl diese Schulter, als auch das zugehörige Intensitätsmaximum der QW-Lumineszenz variiert bzgl. seiner spektralen Position mit der Anregungsdichte. Zwischen den beiden Hauptmaxima des Spektrums (MgZnO und ZnO-QW) bei etwa $E = 3,32 \text{ eV}$ findet sich die Lumineszenz der ZnO-Pufferschicht - markiert durch eine gestrichelte Linie in der Abbildung 5.36. Diese ist, wie schon die Lumineszenz des MgZnO unabhängig von der Anregungsdichte (also dem Strahlstrom).

Wie bereits erwähnt, ist besonders die Verschiebung der energetischen Lage der Lumineszenz der QW-Exzitonen in den Spektren variierender Anregungsdichten (siehe hierzu Abb. 5.36) auffällig. Beginnend bei einer Anregungsdichte von etwa 70 W/cm^2 ($I = 14 \text{ pA}$ bei $E_e = 5 \text{ keV}$) steigt nicht nur die Lumineszenzintensität mit steigender Anregungsdichte, sondern auch die Übergangsenergie der QW-Lumineszenz. Die Auswertung der spektralen Lage der beiden Hauptmaxima der dargestellten Spektren, das heißt von der ZnO-QW-Lumineszenz und der MgZnO-Lumineszenz sind in der Abbildung 5.37 dargestellt. Wie sich hier zeigt, ändert sich die spektrale Position der Barrierenlumineszenz innerhalb der erreichten Genauigkeit nicht und verharrt für alle untersuchten Anregungsdichten (von ca. 70 W/cm^2 bis ca. 65 kW/cm^2) bei $E_{\text{MgZnO}} = 3,71 \text{ eV}$. Die Peakposition der QW-Lumineszenz hingegen verschiebt sich für diese Anhebung der Anregungsdichte von $E_{\text{QW}} = 3,19 \text{ eV}$ bis $E_{\text{QW}} = 3,27 \text{ eV}$. Es wird also eine Verschiebung von $\Delta E = 29 \text{ meV}/(\text{Dekade Anregungsdichte})$ erreicht.

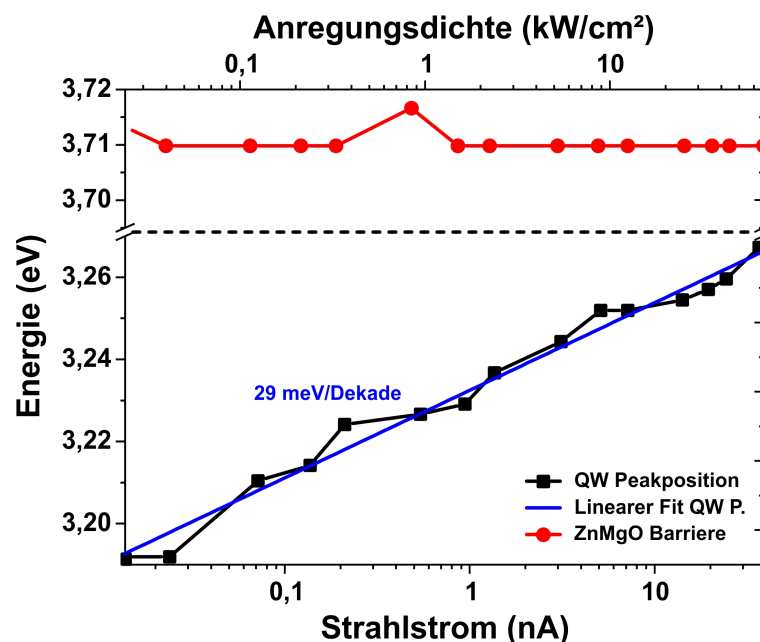


Abbildung 5.37: Darstellung der QW- und Barrieren Lumineszenzmaxima für die unterschiedlichen Anregungsdichten. Rot dargestellt ist der Verlauf der MgZnO-Lumineszenz, schwarz der Verlauf der ZnO QW-Lumineszenz. Mittels linearer Anpassung in dieser einfach logarithmischen Darstellung wurde für die ZnO QW-Lumineszenz eine Verschiebung der Peaklage um $29 \text{ meV}/(\text{Dekade Anregungsdichte})$ ermittelt.

Erklärt werden kann diese Verschiebung mit dem sogenannten QCSE (siehe Abschnitt 2.6). Eine detailliertere Analyse von vergleichbaren Proben wird in [BRA10] gegeben. Durch die Generation zunehmend höherer Überschussladungsträgerkonzentrationen wird das innerhalb der QW-Struktur aufgebaute elektrische Feld (verursacht durch die spontane, sowie piezoelektrische Polarisierung), welches für eine Rotverschiebung der resultierenden Bandlücke verantwortlich ist, immer stärker abgeschirmt. Diese Abschirmung führt damit zu einer Bandverbiegung weg von dem durch die Polarisationsfelder hervorgerufenen Dreieckspotentialtöpfen, hin zu flacheren (rechteckigen) Potentialtöpfen. Diese („Rück-“) Verbiegung sorgt so für eine Blauverschiebung der Lumineszenz mit zunehmender Anregungsdichte bzw. Überschussladungsträgerkonzentration.

Die Existenz des QCSE spricht bereits für eine relativ hohe Qualität der Grenzschichten, wie in [BRA10] berichtet wird und führt dazu, dass die Ladungsträger stärker an der Grenzfläche lokalisiert werden, als dies ohne die Polarisationsfelder der Fall wäre. Somit ist zu erwarten, dass der Einfluss der Grenzflächenbeschaffenheit zwischen QW und Barrieren auf den Transport von Ladungsträgern und Exzitonen gegenüber unpolaren Strukturen erhöht sein wird. Dies ist eine ideale Voraussetzung zur Untersuchung des Einflusses der Grenzflächen auf den Transport.

Abhängigkeit der Kathodolumineszenz von der Proben temperatur

Auch die temperaturabhängigen Kathodolumineszenzuntersuchungen wurden bei einer Primärelektronenenergie von $E_e=5$ keV durchgeführt. Die gewählte Strahlstromstärke beträgt dabei $I=620$ pA, die Anregungsdichte damit ca. $0,9$ kW/cm². Die aufgenommenen Spektren sind in der Abbildung 5.38 dargestellt.

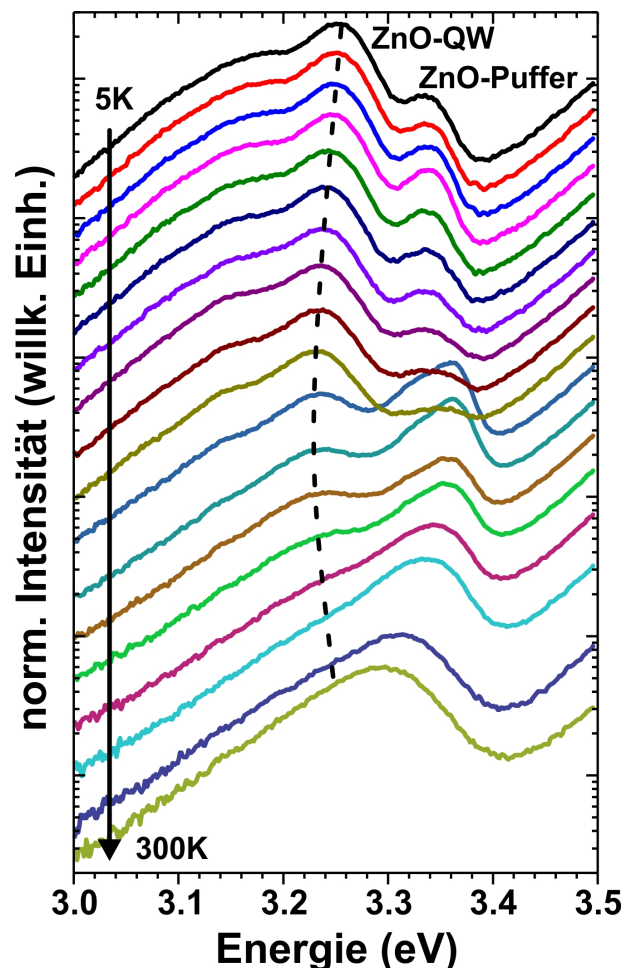


Abbildung 5.38: Kathodolumineszenzspektren der quantenfilmnahen Lumineszenz zu verschiedenen Proben temperaturen unter folgenden Anregungsbedingungen: $V_{Acc}=5$ kV, $I=620$ pA. Die Proben temperaturen wurden systematisch zwischen $T=5$ K und $T=300$ K variiert. Bei $T=5$ K findet sich bei $E_{QW}=3,25$ eV die Lumineszenz des Quantenfilms, bei $E_{ZnO}=3,36$ eV die Lumineszenz des ZnO-Puffers. Bei $T=60$ K findet eine signifikante Veränderung der Lumineszenzintensität und der spektralen Lage der ZnO-Puffer Lumineszenz statt, begründet in einer thermischen Aktivierung der freien Exzitonen in der Pufferschicht

Wie hier zu sehen ist, schiebt die spektrale Position der ZnO-QW-Lumineszenz mit steigender Temperatur zu kleineren Übergangsenergien. Ebenfalls den Spektren zu entnehmen ist, dass sich bei $T=60$ K die spektrale Peakposition, sowie die absolute Intensität der ZnO-Puffer-Lumineszenz im Vergleich zu geringeren Proben temperaturen drastisch ändert. Hier kann davon ausgegangen werden, dass bei niedrigen Temperaturen der dominierende Rekombinationskanal der gebundenen Exzitonen ist (erfahrungsgemäß vermutlich D^0X). Bei $T=60$ K, das ent-

spricht einer thermischen Energie von $E_{th}=4\text{ meV}$, scheint dann die Bindungsenergie der Exzitonen an die neutralen Donatoren thermisch erreicht bzw. überschritten zu sein, so dass eine thermische Aktivierung der freien Exzitonen daraus resultiert. Dieser Zusammenhang ist in der Abbildung 5.40a dokumentiert. Wie aus dem unten noch erläuterten Arrhenius-Plot hervorgeht, findet sich eine Lokalisierungsenergie von $E=3,7\text{ meV}$, welche dieser thermischen Energie hervorragend entspricht.

Zunächst findet für die Lumineszenz des ZnO-Puffers eine geringe Rotverschiebung der Lumineszenzenergie von $E=3,335\text{ eV}$ bis $E=3,326\text{ eV}$ von $T=5\text{ K}$ bis $T=40\text{ K}$ statt. Die Lumineszenzintensität sinkt dabei bis $T=50\text{ K}$ um den Faktor drei ab. Steigt die Probertemperatur auf $T=60\text{ K}$ steigt die Lumineszenzintensität wieder deutlich, nahezu sprunghaft, um den Faktor drei an. Die Peakposition verschiebt sich innerhalb von $\Delta T=20\text{ K}$ von $E=3,33\text{ eV}$ bei $T=50\text{ K}$ auf $E=3,365\text{ eV}$ bei $T=60\text{ K}$, um im Anschluss daran mit weiter steigender Temperatur monoton bis $E=3,295\text{ eV}$ bei $T=300\text{ K}$ in Richtung kleiner Energien zu schieben. Von $T=60\text{ K}$ bis $T=300\text{ K}$ nimmt die Lumineszenzintensität aus der ZnO-Pufferschicht um etwa den Faktor 7 monoton ab. Um zu klären, um welche gebundenen Exzitonen es sich hier handelt, erfolgte eine Auswertung der Peakintensität der ZnO-Puffer-Lumineszenz mittels der Arrheniusdarstellung und -gleichung mit zwei Aktivierungsenergien (siehe Abb. 5.39).

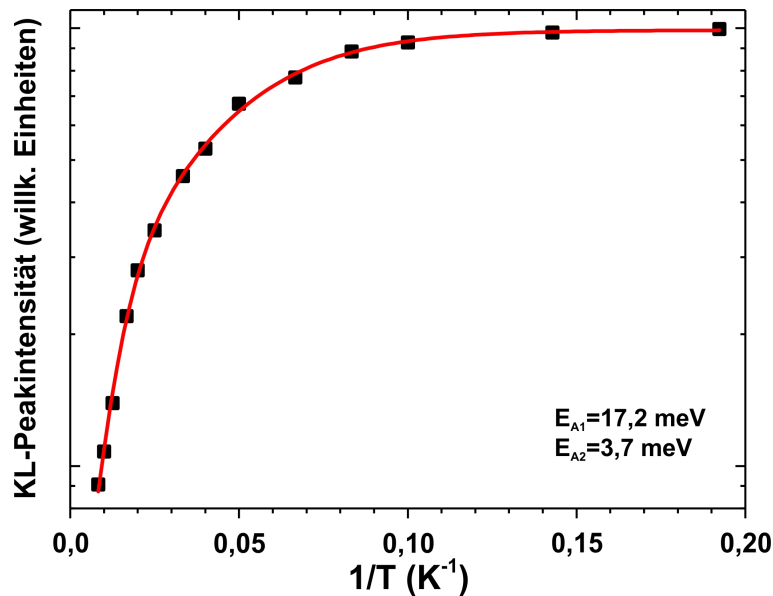


Abbildung 5.39: Arrheniusdarstellung der Lumineszenzintensität der ZnO-Puffer Lumineszenz. Die schwarzen Punkte entsprechen aus den Messungen erhaltenen Intensitäten, die rote Kurve entspricht der Anpassung der Arrhenius-Gleichung mit zwei Aktivierungsenergien. Die Parameter „Aktivierungsenergie“ wurden hiermit zu $E_{\text{Aktivierung}1}=17,2\text{ meV}$ und $E_{\text{Aktivierung}2}=3,7\text{ meV}$ bestimmt.

Die Auswertung ergibt Aktivierungs- / oder Lokalisierungsenergien von $E_{\text{Aktivierung}1}=17,2\text{ meV}$ und $E_{\text{Aktivierung}2}=3,7\text{ meV}$. Diese stimmen entsprechend [MEY04] in etwa mit dem Bindungspartner Gallium überein, welche hier mit $E_{\text{Loc}(\text{GaN})}=16,1\text{ meV}$ angegeben ist und einem weiteren Bindungspartner welcher noch keinem chemischen Element zugeordnet zu sein scheint und gemeinhin mit I_0 bezeichnet wird. Da sowohl die Pufferschicht, als auch der Quantenfilm mit derselben PLD-Apparatur abgeschieden wurde, kann somit davon ausgegangen werden, dass beide

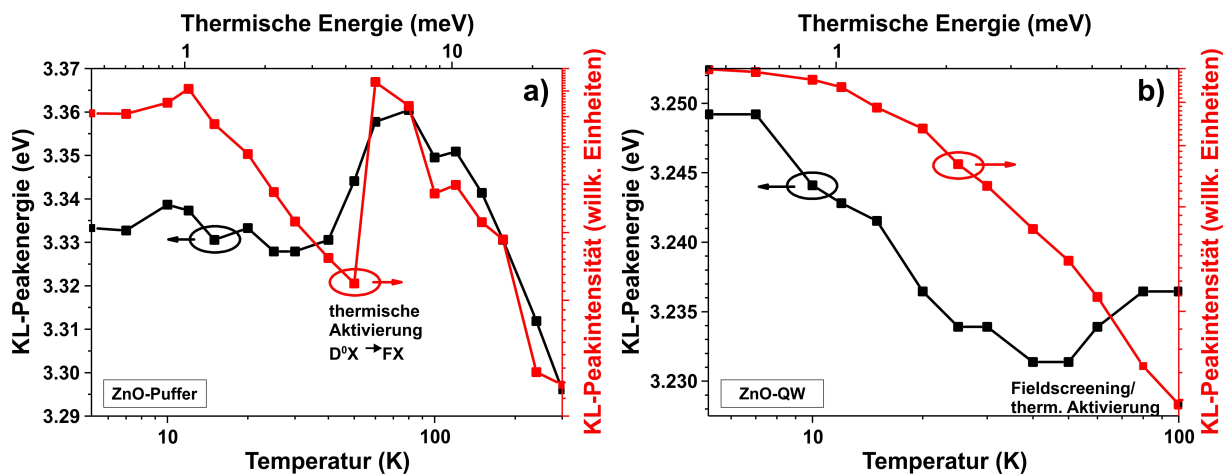


Abbildung 5.40: a) Energetische Lage und Intensität der Lumineszenz des ZnO-Puffers in Abhängigkeit von der Temperatur. Es findet eine thermische Aktivierung ab etwa $T=60$ K statt, gekennzeichnet durch einen schnellen Wechsel von niedrigeren zu höheren Übergangsenergien und einem sprunghaften Ansteigen der Lumineszenzintensität im selben Temperaturbereich. b) Energetische Lage und Intensität der Lumineszenz aus dem Quantenfilm. Die Blauverschiebung der Lumineszenz ab einer Proben­temperatur von $T=60$ K kann mit einer erhöhten Ladungsträgerkonzentration, welche die internen Felder im Quantenfilm abschirmt, erklärt werden.

Schichten auch eine vergleichbare Beschaffenheit ihrer nominellen bzw. ungewollten Dotierung besitzen.

Die Konzentration dieser Untersuchungen jedoch liegt auf der Lumineszenz des QW, sodass auch hier eine Auswertung der Spektren im Hinblick auf die Peakposition und die Lumineszenzintensität durchgeführt wurde (Abbildung 5.40b). Anders als bei der Pufferschicht findet sich keine thermische Aktivierung, sondern ein stetiges, monotones Rotverschieben der Peakposition der QW-Lumineszenz von $E=3,252$ eV bei $T=5$ K bis $E=3,228$ eV bei $T=100$ K und monoton fallender Lumineszenzintensität. Oberhalb von $T=100$ K hat keine explizite Auswertung der Intensität- und spektralen Position für diese Betrachtung stattgefunden, da sich die ab $T=100$ K wieder in Richtung Blau verschiebende QW-Lumineszenz mit der Lumineszenz des ZnO-Puffers überlagert. Die Blauverschiebung der QW-Lumineszenz kann durch eine Abschirmung der internen Felder durch erhöhte Konzentrationen freier Ladungsträger mit steigender Temperatur erklärt werden. Die Intensität der QW-Lumineszenz fällt monoton über das gesamte betrachtete Temperaturintervall um etwa eine Größenordnung.

Die eben thematisierte Problematik der Überlagerung von QW- und Puffer-Lumineszenz führt bei höheren Proben­temperaturen zu einem gewissen „Fehler“ in der Betrachtung des exzitonischen Transports in den anschließenden Untersuchungen. Offenbar kann eine ordentliche Trennung der beiden Übergänge nicht gewährleistet werden, so dass davon ausgegangen werden muss, dass auch die erhaltenen Ergebnisse der zeitaufgelösten Untersuchungen aus einer Mischung beider Rekombinationskanäle bestehen. Verfolgt man allerdings die spektrale Position der QW-Lumineszenz in den temperaturabhängigen Spektren (siehe gestrichelte Linie in Abbildung 5.38), so ist davon auszugehen, dass an diesen Positionen eine stärkere Gewichtung auf der QW-Lumineszenz liegt als auf der Pufferlumineszenz.

Exzitonischer Transport im Quantenfilm von ca. $q=4$ nm Dicke

Nachdem die grundsätzlichen Eigenschaften und auch die spektrale Lage der QW-Lumineszenz bekannt sind, wurde an dieser Struktur der exzitonische Transport im QW untersucht. Die Analysen fanden an einer Stelle der Probe statt, dessen QW-Schichtdicke zu ca. 4 nm bestimmt wurde. Die Energie der Primärelektronen wurde bei $E_e=5$ keV belassen, der Strahlstrom betrug ca. $I_{cw}=640$ pA, sodass sich eine Anregungsdichte von $P=0,9$ kW/cm² ergibt. Die daraus resultierende spektrale Position der QW-Lumineszenz liegt bei $E_{QW}=3,25$ eV bei einer Proben temperatur von $T=5$ K (siehe Abbildung 5.38). Die gegenüber der Lumineszenz der freien Exzitonen im Bulk-Material rotverschobene Lumineszenz lässt sich dabei, wie bereits im vorangegangenen Abschnitt beschrieben, mit dem QCSE erklären.

Zur Ermittlung der Transportparameter wurde auch bei dieser Probe wieder die anfängliche Lebensdauer der QW-Exzitonen aus transienten Messungen im unmaskierten Zustand bestimmt. Dazu wurde ausschließlich die spektrale Position der QW-Lumineszenz betrachtet und entsprechend der Proben temperatur angepasst.

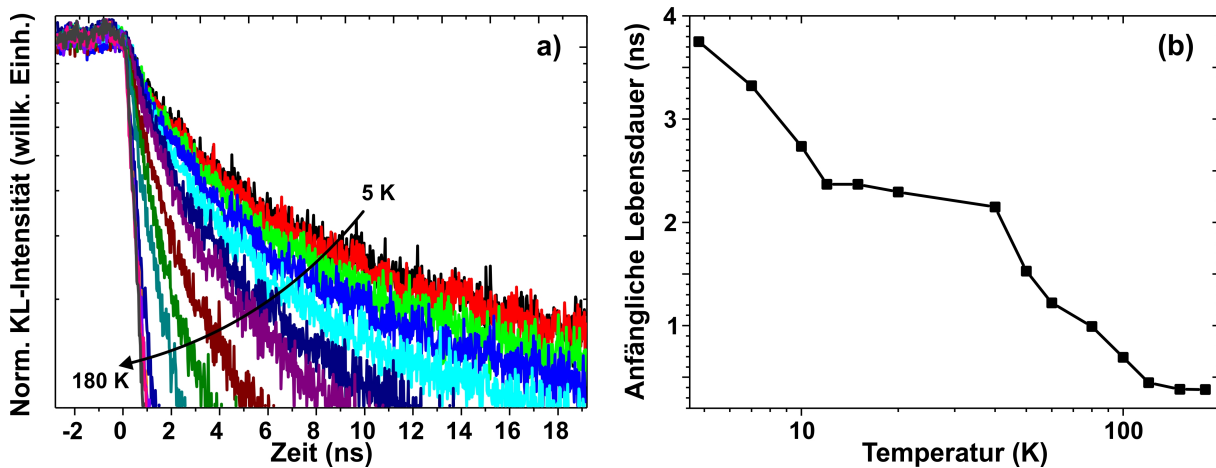


Abbildung 5.41: a) Darstellung des Abfalls der Lumineszenzintensität der aufgenommenen Transienten zu verschiedenen Proben temperaturen nach Erreichen des Gleichgewichtszustandes aus Generation und Rekombination bis ca. $\Delta t=18$ ns nach Beendigung der Anregung. Die Beschleunigungsspannung für die Primärelektronen wurde zu $V_{Acc}=5$ kV gewählt, der cw-Strahlstrom betrug bei den Messungen ca. $I=620$ pA. b) Darstellung der anfänglichen Lebensdauern $\tau(T)$, ermittelt aus dem monoexponentiellen Abklingen der Lumineszenzintensität direkt nach Beendigung der Anregung. Die anfängliche Lebensdauer fällt monoton von $\tau=3,7$ ns bis $\tau=0,4$ ns im Temperaturbereich von $T=5$ K bis $T=180$ K.

In der Abbildung 5.41 sind die Ergebnisse dieser Untersuchung zusammengestellt. In Abbildung 5.41a ist der Abfall der Lumineszenzintensität nach Erreichen des Gleichgewichtszustandes aus Anregung und Rekombination für die ersten $\Delta t=18$ ns dargestellt. Wie mit dem eingetragenen Pfeil dargestellt, ist eine eindeutige Abhängigkeit des Abklingverhaltens mit der Temperatur gegeben. Je höher die Temperatur, desto steiler der Abfall der Lumineszenzintensität. Dies resultiert in einer monotonen Abnahme der anfänglichen Lebensdauer, welche zu den betrachteten Proben temperaturen in der Abbildung 5.41b dargestellt ist. Beginnend bei $T=5$ K und einer

anfänglichen Lebensdauer von ca. $\tau=3,7$ ns fällt sie um eine Größenordnung bis $T=180$ K auf ca. $\tau=0,4$ ns ab. Ermittelt wurde die anfängliche Lebensdauer über eine Anpassung eines monoexponentiellen Abklingens der Lumineszenzintensität, unmittelbar nach Abschalten der Anregung bei $t=0$ ns (vgl. Abbildung 5.41a).

Auch diese Probe wurde mittels thermischer Verdampfung von Titan und vorherigem Auftragen von Polystyren-Kugeln im Durchmesser von $K=1,0$ μm mit Lochmasken ausgestattet.

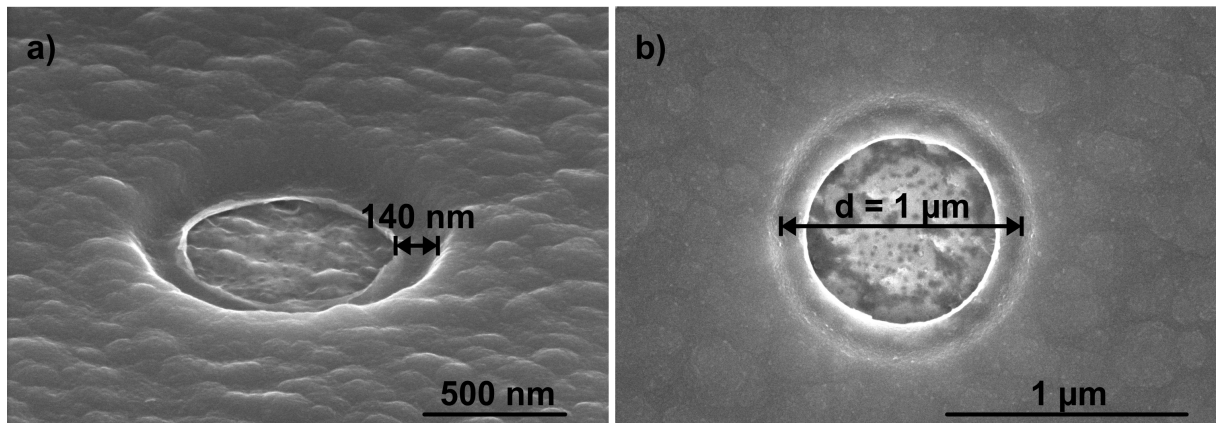


Abbildung 5.42: In dem SE-Kontrastbild eines FEREM a) ist eine Schrägansicht einer Apertur mit dem Durchmesser $d=1,0$ μm dargestellt. Zu erkennen ist ein schmaler, dünner Rand am Boden des Lochs, welcher durch das Unterwandern von Titan unter die aufgebracht Polystyrenkugel entstanden ist. Die Weite des Randes beträgt ca. 140 nm, die Dicke ca. 15 nm. Die Dicke der voll ausgebildeten Titanschicht entspricht den geforderten $d=160$ nm zur vollständigen Intransparenz für die entstehende Lumineszenz. In der Abbildung b) ist ein weiteres Loch mit einem Durchmesser von ebenfalls $K=1$ μm dargestellt. Auch hier ist der Kranz im Innern des Lochs vorhanden und besitzt die gleichen Abmaße von ca. 140 nm. Die Weite der Lochwand selbst beträgt ca. $w=20$ nm.

Die Abbildung 5.42 zeigt zwei Sekundärelektronen- (SE) Kontrastbilder solcher resultierenden Aperturen in der aufgebracht Ti-Schicht. Diese besitzt eine Dicke von ca. $d=160$ nm und Wände mit einer Weite von ca. $w=20$ nm. Diese Weite liegt um etwa den Faktor 6 unterhalb der Weite der Maskenkanten aus dem Lift-Off Prozess, bei dem die quaderförmigen Masken für die ortsaufgelösten Untersuchungen auf Proben aufgebracht wurden. Jedoch findet sich im Boden der hier gezeigten Löcher ein Kranz aus Titan, welches in den Schattenbereich der aufgebracht Kugeln gelangt ist. Die Dicke der sich hier gebildeten Ti-Schicht beträgt etwa $d=15$ nm. Es stellt sich eine Weite dieses Rands von ca. $w=140$ nm ein. Aufgrund der geringen Dicke und der damit einhergehenden geringen Absorptionsfähigkeit für die entstehende Lumineszenz, sowie aufgrund der für alle Temperaturen gleichbleibenden Bedingungen, ist von einem verfälschenden Einfluss auf den zu ermittelnden Verlauf der exzitonischen Beweglichkeit in Abhängigkeit von der Temperatur nicht auszugehen. Zudem wirkt sich die Titanschicht bei dieser Methode nicht auf die Anregungsdichte aus, da die Maskierung von den Primärelektronen nicht durchdrungen werden muss.

Im Zentrum der Löcher wurden gepulste, also zeitaufgelöste Kathodolumineszenzuntersuchungen zu denselben Probentemperaturen und bei derselben spektralen Position durchgeführt, wie die Untersuchungen zur anfänglichen Lebensdauer. Auch die Anregungsbedingungen wurden

identisch gewählt. Die Abbildung 5.43 zeigt die erhaltenen Transienten dieser Untersuchungen. Hier ist zu erkennen, dass die anfängliche Zerfallszeit von $T=5\text{ K}$ bis $T=100\text{ K}$ offenbar deutlich abnimmt (Abbildung 5.43a, erkennbar an einem zunehmend steileren Abklingen der Lumineszenzintensität). Steigt die Temperatur weiter von $T=100\text{ K}$ bis $T=180\text{ K}$ an, so scheint die anfängliche Zerfallszeit konstant zu bleiben (Abbildung 5.43b).

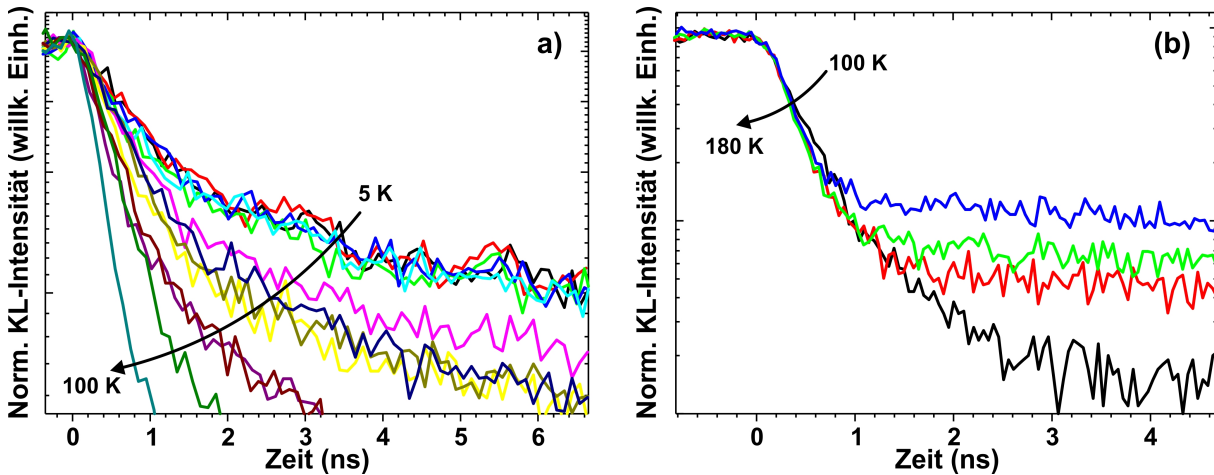


Abbildung 5.43: Darstellung der aufgenommenen Transienten für die Lumineszenz der QW-Exzitonen aus dem Bereich der Apertur für a) Temperaturen von $T=5\text{ K}$ bis $T=100\text{ K}$ und b) von $T=100\text{ K}$ bis $T=180\text{ K}$. Die Zerfallszeit fällt offenbar im Temperaturbereich a) monoton ab, während sie im Temperaturintervall b) annähernd konstant bleibt.

Die anfänglichen Zerfallszeiten sind zum Vergleich mit den anfänglichen Lebensdauern der QW-Exzitonen in der Abbildung 5.44a) als Funktion von der Proben temperatur dargestellt. Die anfänglichen Zerfallszeiten fallen dabei weitestgehend monoton von $T=5\text{ K}$ bis $T=120\text{ K}$ von ca. $\tau=1,6\text{ ns}$ bis $\tau=0,3\text{ ns}$. Bis $T=180\text{ K}$ steigt sie jedoch wieder geringfügig bis $\tau=0,4\text{ ns}$ an. Die erreichten anfänglichen Zerfallszeiten liegen damit teils deutlich (Faktor 2 bei $T=5\text{ K}$) unterhalb derer der anfänglichen Lebensdauer. Dies entspricht der Erwartung, da ein Teil der Exzitonen aus dem Gebiet der Apertur diffundiert und somit bei seiner Rekombination nicht mehr beobachtet werden kann.

Die Abbildung 5.44b zeigt die resultierende Diffusionskonstante. Sie wurde direkt aus der Anpassung von Gleichung (4.46) an den anfänglichen Zerfall der aufgenommenen Transienten erhalten. Sie steigt weitestgehend monoton mit zunehmender Temperatur von knapp $D=0,3\text{ cm}^2/\text{s}$ bei $T=5\text{ K}$ bis etwa $D=1,4\text{ cm}^2/\text{s}$ bei $T=180\text{ K}$ an.

Aus der Diffusionskonstante D und der anfänglichen Lebensdauer τ lässt sich die Diffusionslänge der Exzitonen berechnen. Diese ist in der Abbildung 5.44c dargestellt. Es zeigt sich, dass diese zunächst von $T=5\text{ K}$ kommend leicht von knapp über $\lambda=300\text{ nm}$ bis ca. $\lambda=375\text{ nm}$ bei $T=12\text{ K}$ ansteigt. Mit weiter zunehmender Temperatur verharrt die Diffusionslänge bei etwa $\lambda=375\text{ nm}$ und fällt ab $T=40\text{ K}$ bis $T=180\text{ K}$ auf ca. $\lambda=225\text{ nm}$ ab.

Dieses Verhalten kann auf eine thermische Aktivierung des Transports der Exzitonen bei tiefen Temperaturen hindeuten und einen überkompensierenden Einfluss von Streuungen für höhe-

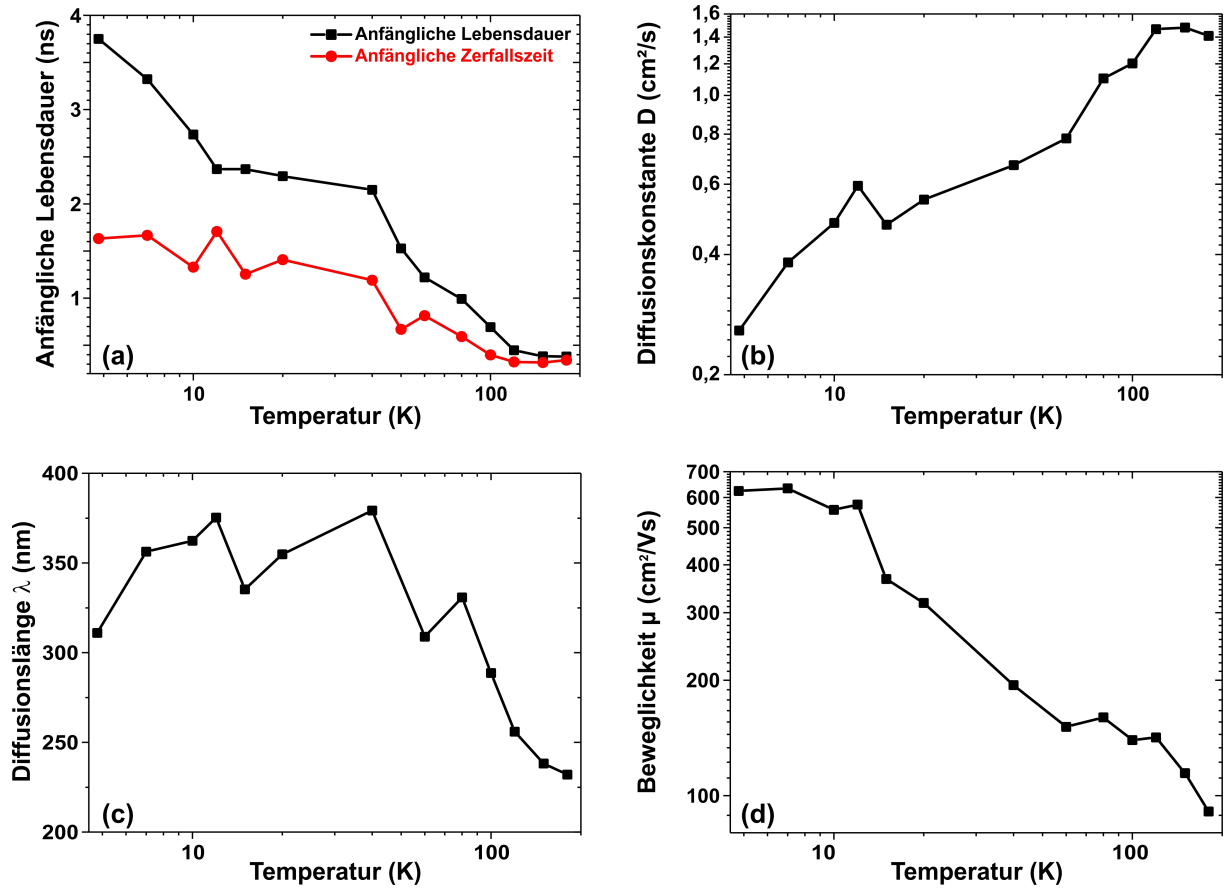


Abbildung 5.44: In Abhängigkeit von der Proben­temperatur sind folgende Ergebnisse dargestellt: a) Vergleich der anfänglichen Lebensdauern (schwarz) und anfänglichen Zerfallszeiten (rot) für die Exzitonen im Quantenfilm, b) berechnete Diffusionskonstanten, c) abgeleitete Diffusionslängen und d) aus der Diffusionskonstante abgeleitete Beweglichkeit der Exzitonen.

re Temperaturen. Eine Analyse des Transports bzw. der beteiligten Streumechanismen erlaubt die Auswertung der temperaturabhängigen Beweglichkeit der freien Exzitonen. Dies geschieht über die Berechnung der Beweglichkeit aus den Diffusionskonstanten mittels der Einsteinrelation (2.38). Das resultierende Ergebnis ist in der Abbildung 5.44d dargestellt.

Wie sich in dieser Darstellung der temperaturabhängigen Beweglichkeit zeigt, wird bis zu einer Proben­temperatur von $T=12$ K ein konstantes Niveau der Beweglichkeit für die Exzitonen im Quantenfilm erreicht. Dieses Niveau bewegt sich dabei im Bereich um $\mu=600$ cm²/Vs. Steigt die Temperatur weiter, so fällt die Beweglichkeit monoton bis $T=180$ K auf einen Wert von $\mu=90$ cm²/Vs. Es lässt sich hier also eine Temperaturunabhängigkeit im Temperaturfenster von $T=5$ K bis $T=12$ K ablesen, was entsprechend den Ausführungen aus Abschnitt 2.8.4 für eine Grenzflächenrauigkeitsstreuung sprechen kann.

In der Abbildung 5.45 ist die Auswertung der Beweglichkeit als Funktion von der Temperatur gezeigt. Neben der aus den Messungen erhaltenen Beweglichkeit ist der theoretische Verlauf der Beweglichkeit in Abhängigkeit von der Temperatur dargestellt, die sich für eine Überlagerung einer temperaturunabhängigen Streuung (in diesem Falle höchstwahrscheinlich der Grenzflächenrauigkeitsstreuung) und der Fröhlich-Wechselwirkung, also der Streuung an longitudinalakustischen Phononen im polaren Kristall, ergibt. Wie zu sehen ist, reproduziert diese aus theo-

retischen Betrachtungen erhaltene Kurve die aus der Messungen erhaltenen Werte in weiten Teilen sehr gut.

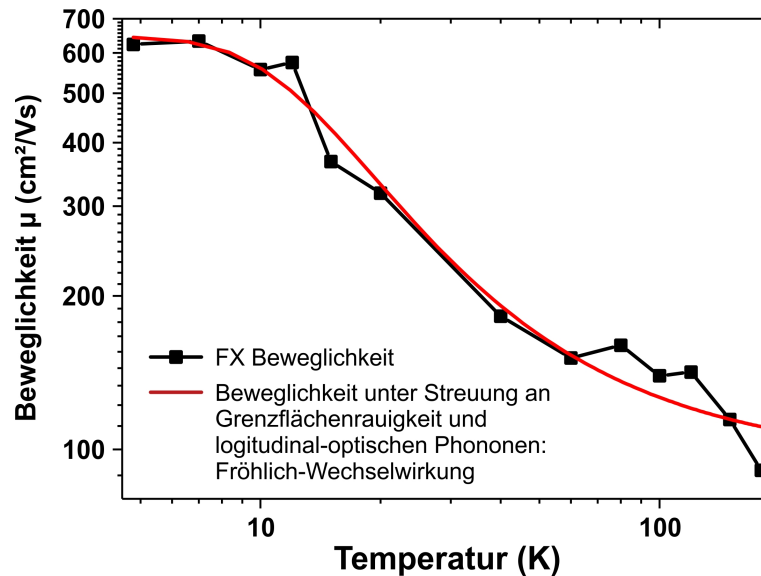


Abbildung 5.45: Darstellung der aus den Messungen erhaltenen exzitonischen Beweglichkeit im Quantenfilm in Abhängigkeit von der Temperatur (schwarz) mit dazugehöriger theoretischer Beweglichkeit der Exzitonen für eine Beteiligung von Grenzflächenrauigkeitsstreuung und Fröhlichwechselwirkung (rot)

Legt man die Aussagen aus den Abschnitten 2.8.3 und 2.8.4 zugrunde, so sprechen die erhaltenen Ergebnisse - insbesondere jene bei tiefen Temperaturen - ebenso wie die Existenz des QCSE für eine qualitativ hochwertige Grenzfläche mit nur geringer Rauigkeit, das heißt großen Bereichen gleicher „Dicke“ (vgl. Abb. 5.46).

Vergleicht man darüber hinaus die Ergebnisse der nachfolgend analysierten Probe, so wird diese Annahme von einer weiteren unabhängigen Interpretation gestützt. Die Halbwertsbreite der ZnO-QW-Lumineszenz beträgt bei beiden Proben ca. FWHM=50 meV bei einer Proben-

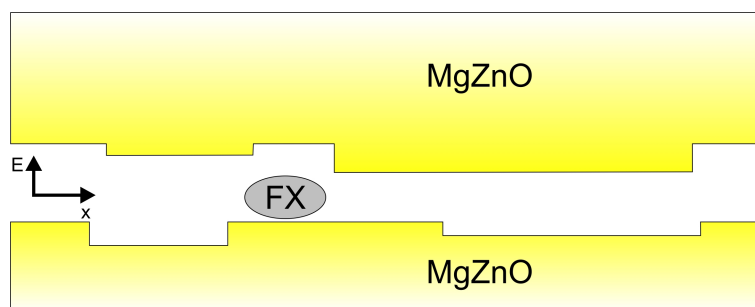


Abbildung 5.46: Schematische, idealisierte Skizze der Grenzflächenbeschaffenheit, abgeleitet aus den erhaltenen Ergebnissen des QCSE und der Transporteigenschaften sowie der Halbwertsbreite der QW-Lumineszenz.

temperatur von $T=5$ K. Berücksichtigt man die Tatsache, dass die Aufweitung der Lumineszenzlinie der exzitonischen QW-Lumineszenz mit abnehmender Filmdicke (der QW besitzt hier eine Dicke von ca. 4 nm, im nachstehenden Abschnitt ca. 5,5 nm) unter ansonsten identischen Bedingungen exponentiell zunehmen müsste (vgl. [BAJ01]), so müssen zur Erreichung gleicher Halbwertsbreiten die Inseln gleicher QW-Dicke in ihrer Ausdehnung zunehmen. Ferner führt der hier gefundene, stärkere QCSE (im Vergleich zur nachfolgenden Probe) zu einem stärkeren Einfluss der Grenzflächenrauigkeit auf die Halbwertsbreite, welche diese ebenfalls vergrößert. Auch dies kann somit nur kompensiert werden durch entsprechend ausgedehntere Gebiete identischer Dicke. Insgesamt folgt also auch aus der Auswertung der Halbwertsbreite der Lumineszenz der QW-Exzitonen eine vergleichsweise glatte Grenzflächenstruktur (vgl. Abbildung 5.46), bei der die Ausdehnung der Inseln die Ausdehnung der Exzitonen in weiten Teilen überragen dürften.

5.4.2 ZnO/MgZnO-QW: Filmdicke $q=5,5$ nm

Analyse der Abhängigkeit der Lumineszenz von der Anregungsdichte

Aus Ermangelung von Vergleichsmöglichkeiten in der Literatur und um die Ergebnisse des vorangegangenen Abschnitts in irgendeiner Weise einordnen zu können, wurde eine weitere ZnO-QW Probe hinsichtlich des exzitonischen Transports innerhalb des ZnO-Quantenfilms untersucht. Der Probenaufbau wurde für diesen Versuch geringfügig abgeändert. Der Probenaufbau ist in der Abbildung 5.47 dargestellt. Als Substrat wurde anstelle eines ZnO-Substrats a-planarer Saphir verwendet. Hierauf wurde eine Pufferschicht aus ZnO, anders als bei der vorgegangenen Probe mit ca. 2,5 % Magnesium dotiert, abgeschieden. Die Schichtdicke der Pufferschicht beträgt ca. 120 nm. An die Pufferschicht schließt sich die untere MgZnO-Barriere an. Die Magnesiumkonzentration wurde wieder zu 10 % gewählt. Die realisierte Schichtdicke beträgt ca. 70 nm. Auf die untere Barriere wurde das nominell undotierte ZnO als keilförmige Schicht mit Dicken von ca. 5-6,5 nm aufgebracht. Abgeschlossen wird der Probenaufbau durch die obere MgZnO-Barriere mit einer Schichtdicke von ca. 20 nm und, wie die untere Barriere, ca. 10 % Magnesium.

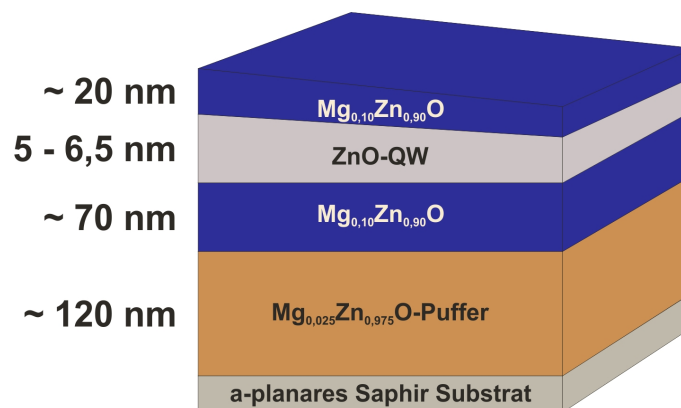


Abbildung 5.47: Schematische Darstellung des Probenaufbaus. Auf ein a-planares Saphir-Substrat wurde mittels PLD eine ca. 120 nm dicke Pufferschicht aus $Mg_{0,025}Zn_{0,975}O$ abgeschieden. Daran schließt sich die untere Barriere des Quantenfilms an. Diese Schicht besteht aus $Mg_{0,06}Zn_{0,94}O$ und ist ca. 70 nm dick. Der eigentliche Quantenfilm aus nominell undotiertem ZnO ist keilförmig realisiert und besitzt so Schichtdicken von ca. 5-6,5 nm. Als obere Barriere wurde abermals eine Schicht aus $Mg_{0,025}Zn_{0,975}O$ abgeschieden. Die Dicke der oberen Barriere beträgt ca. 20 nm.

Abbildung 5.48 zeigt für verschiedene Anregungsdichten Spektren bei einer Beschleunigungsspannung für die Primärelektronen von $V_{Acc}=3$ kV und einer Probentemperatur von $T=5$ K. Die Position auf der Probe wurde zu einer zugehörigen QW-Schichtdicke von ca. $d=5,5$ nm abgeschätzt.

Aus dieser Darstellung geht auch hervor, dass sich die exzitonische Lumineszenz des Quantenfilms in Abhängigkeit von der gewählten Anregungsdichte von ca. $E=3,255$ eV bei 40 W/cm² bis ca. $E=3,29$ eV bei etwa 11 kW/cm² blau verschiebt. Neben dem „Hauptpeak“ der Lumineszenz aus dem Quantenfilm finden sich zudem zugehörige longitudinal-optische Phononen-Repliken (in Abb. 5.48 gekennzeichnet durch „LO-ZnO-QW“). Diese waren bei der Vergleichsprobe wesentlich

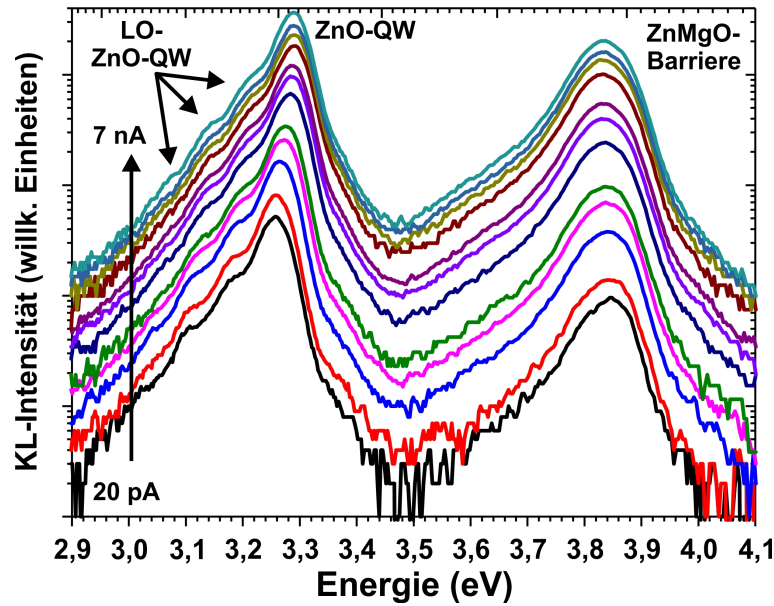


Abbildung 5.48: KL-Spektren in Abhängigkeit vom gewählten Strahlstrom des anregenden Elektronenstrahls bei einer Primärelektronenenergie von $E_b=3\text{ keV}$. Dominiert werden sämtliche Spektren für Strahlströme von $I=20\text{ pA}$ bis $I=7\text{ nA}$ von der Lumineszenz der Exzitonen im Quantenfilm bei einer Energie von ca. $E=3,3\text{ eV}$, wobei sie mit steigender Anregungsdichte (d.h. Strahlstrom) zu höheren Energien schiebt. Die MgZnO-Barriere zeigt ihre Lumineszenz, die ebenfalls deutlich ausgeprägt ist, bei einer Energie von ca. $3,85\text{ eV}$. Offensichtlich ist diese jedoch unabhängig von der gewählten Anregungsdichte. Die Proben temperatur betrug für alle aufgenommenen Spektren $T=5\text{ K}$.

schwächer ausgeprägt. Zusätzlich lag die Übergangsenergie der QW-Lumineszenz bei vergleichbar niedrigen Anregungsdichten energetisch ca. $\Delta E=0,06\text{ eV}$ tiefer (vgl. Abbildung 5.36).

Darüber hinaus ist zu erkennen, dass sämtliche aufgenommenen Spektren von der Lumineszenz der Quantenfilm-Exzitonen dominiert werden. Die Lumineszenzintensität aus dem Barrierenmaterial ist ebenfalls deutlich ausgeprägt, ist jedoch bzgl. der Intensität trotz höherem Volumenanteil des angeregten Materials etwas schwächer. Zudem findet sich hier keine Abhängigkeit von der Anregungsdichte, so dass die Peakintensität für alle betrachteten Strahlströme bei etwa $E=3,84\text{ eV}$ liegt. Damit zeigt sich für dieses MgZnO eine um etwa $\Delta E=0,1\text{ eV}$ höhere Übergangsenergie als bei der zuvor betrachteten Probe.

Die Auswertung der energetischen Positionen der Peakintensitäten sowohl von der Lumineszenz aus dem Quantenfilm, als auch dem Barrierenmaterial ist in der Abbildung 5.49 dargestellt. Es zeigt sich der oben beschriebene Verlauf der energetischen Lage als Funktion von der Anregungsdichte. Während die Lumineszenz aus der MgZnO-Barriere keine Abhängigkeit von der Anregungsdichte aufweist, schiebt die Lumineszenz der Exzitonen aus dem Quantenfilm mit der Anregungsdichte um $\Delta E=19\text{ meV}/(\text{Dekade der Anregungsdichte})$. Im Vergleich mit der im vorangegangenen Abschnitt 5.4.1 untersuchten Probe fällt auf, dass dieser Anstieg um $10\text{ meV}/(\text{Dekade der Anregungsdichte})$ niedriger ausfällt. Auch die absolute energetische Lage ist, wie bereits erwähnt, bei höheren Energien zu finden.

Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt erläutert, ist die Verschiebung mit Variation der

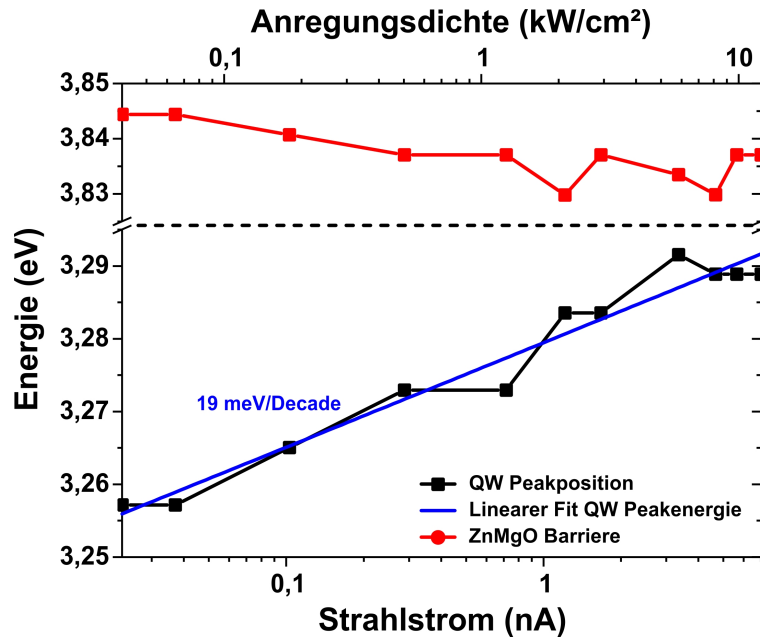


Abbildung 5.49: Darstellung der Lumineszenzmaxima aus dem QW und den Barrieren für die unterschiedlichen Anregungsdichten. Rot dargestellt ist der Verlauf der Lumineszenz aus dem MgZnO, schwarz der Verlauf der exzitonischen Lumineszenz aus dem QW. Mittels linearer Anpassung in dieser einfach logarithmischen Darstellung wurde für die ZnO QW-Lumineszenz eine Verschiebung der Peaklage um 19 meV/(Dekade Anregungsdichte) ermittelt.

Anregungsdichte, ebenso wie die absolute Lage der Lumineszenz des Quantenfilms, auf die Existenz des Quantum-Confined Stark Effekt (QCSE) zurückzuführen. Offenbar ist die Ausprägung bei der hier vorliegenden Probe im Vergleich jedoch trotz höherer Schichtdicke, welche eine stärkere Akkumulation der Polarisationsfelder bedingen sollte, geringer. Ein Indiz für einen reduzierten QCSE ist auch die spektrale Lage der Lumineszenz aus dem Quantenfilm, welche bei vergleichbaren, niedrigen Anregungsdichten, energetisch höher liegt. Da die Proben sich stark ähneln, könnte dies auf die Grenzflächen des Quantenfilms zu seinen Barrierschichten schließen lassen. So ließe sich das beobachtete Verhalten erklären mit entsprechend rauerer Grenzflächen, die den QCSE reduzieren. Weitere Indizien könnte der Transport der Exzitonen im Quantenfilm bei tiefen Temperaturen liefern. Sind die Grenzflächen rau, so werden voraussichtlich andere Streumechanismen als die temperaturunabhängige Grenzflächenrauigkeitsstreuung in diesem Bereich dominieren.

Abhängigkeit der Kathodolumineszenz von der Proben temperatur

Wie bereits bei der Vergleichsprobe in Abschnitt 5.4 wurden auch für diese Probe temperaturabhängige Kathodolumineszenzspektren aufgenommen. Durchgeführt wurden diese Messungen bei einer Beschleunigungsspannung der Primärelektronen von $V_{Acc}=3$ kV und einem Strahlstrom von ca. $I=700$ pA. Aufgrund der geringen Anregungsweite bei der gewählten, kleinen Beschleunigungsspannung beträgt die Anregungsdichte damit etwa $P=1,2$ kW/cm². Die aufgenommenen Spektren sind in der Abbildung 5.50 dargestellt.

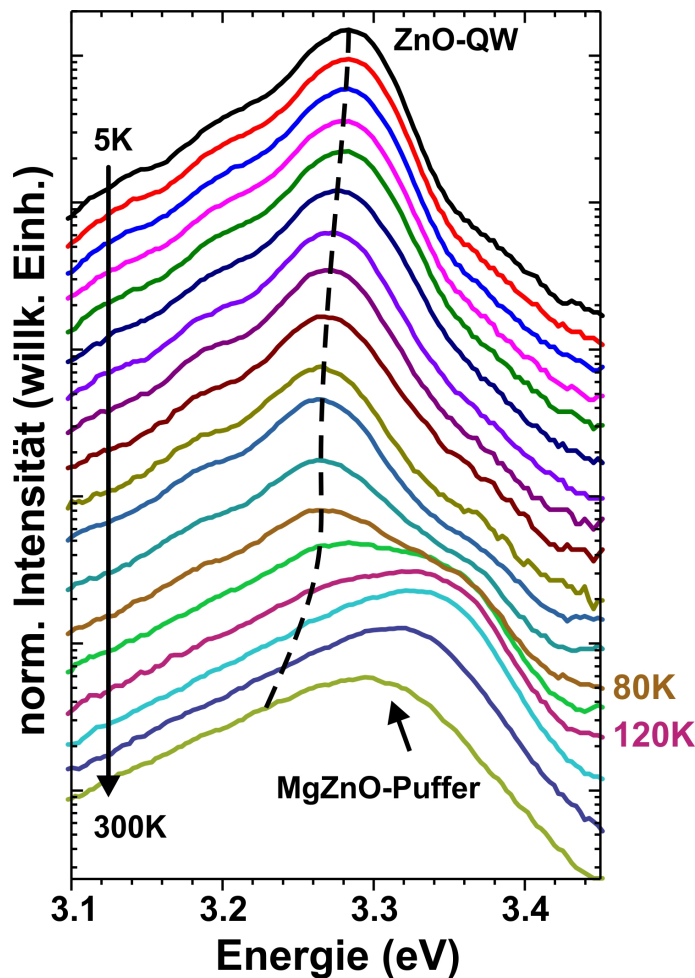


Abbildung 5.50: Temperaturabhängige Kathodolumineszenzspektren der quantenfilmnahen Lumineszenz. Bei einer Primärelektronenenergie von $E_b=3$ keV ($R_{Bethe}=170$ nm) und einem Strahlstrom von $I=700$ pA ergibt sich eine Anregungsdichte von $P=1,2$ kW/cm². Die Proben temperatur wurde systematisch von $T=5$ K bis $T=300$ K variiert. Die QW-Lumineszenz findet sich bei einer Proben temperatur von $T=5$ K bei $E_{QW}=3,28$ eV und aufgrund des QCSE damit deutlich unterhalb der ca. $E=3,38$ eV von Bulk-ZnO. Diese schiebt monoton mit steigender Proben temperatur Richtung kleinerer Übergangsenergien, gekennzeichnet durch die gestrichelte Linie. Bei einer Proben temperatur von $T=80$ K erscheint eine deutlich ausgeprägte Schulter auf der Hochenergieseite der QW-Lumineszenz. Diese hat ihr Zentrum bei ca. $E=3,3$ eV. Dieser Übergang könnte ebenfalls wieder von der Pufferschicht herrühren, bei der es sich um MgZnO handelt. Eine hohe Halbwertsbreite dieses Übergangs spricht für eine gewisse Konzentrationsfluktuation. Er dominiert bei Proben temperaturen größer als $T=120$ K das jeweilige Spektrum.

Auch hier schiebt die ZnO-QW-Lumineszenz mit zunehmender Temperatur zu kleineren Energien, jedoch bleibt die Trendumkehr, welche bei der Probe im vorangegangenen Abschnitt gefunden wurde, aus. Vielmehr „beschleunigt“ sich die Rotverschiebung mit steigender Temperatur ab ca. $T=100$ K noch (siehe schwarze gestrichelte Linie in Abbildung 5.50).

Bei ca. 80 K erscheint eine deutliche Schulter auf der hochenergetischen Seite des ZnO-QW-Peaks, welcher mit zunehmender Temperatur ab ca. $T=120$ K das Spektrum im gezeigten Wellenlängenbereich sogar dominiert. Die Herkunft dieses Übergangs könnte, wie auch schon bei der zuvor besprochenen Probe aus der Pufferschicht stammen. Diese besteht in diesem Fall aus MgZnO. Die hohe Halbwertsbreite dieses Übergangs gibt Hinweise auf Kompositionsfluktuationen.

Die energetische Lage der QW-Lumineszenz lässt sich trotz der Überlagerung der besprochenen Peaks für das gesamte Temperaturintervall von $T=5$ K bis $T=300$ K ermitteln, so dass diese Informationen zur spektralen Position für die weiterführenden Untersuchungen Verwendung finden können (siehe gestrichelte Linie in Abbildung 5.50).

Exzitonischer Transport im Quantenfilm von ca. $q=5,5$ nm Dicke

Um die Frage nach den beteiligten Streumechanismen beim exzitonischen Transport im ZnO-Quantenfilm zu klären, wurden auch an dieser Probe wieder zeit- sowie orts-zeit-aufgelöste Untersuchungen für verschiedene Probertemperaturen durchgeführt. Die Anregungsbedingungen wurden dabei zu einer Primärelektronenenergie von $E_{kin}=3$ keV und einem Strahlstrom von $I=720$ pA gewählt. Dies entspricht einer Anregungsdichte von ca. $P=1,2$ kW/cm² und damit einer energetischen Position der Lumineszenz der Exzitonen im Quantenfilm von ca. $E_{QW}(5\text{ K})=3,273$ eV (vergleiche dazu Abbildung 5.49 im vorangegangenen Abschnitt).

Die Ergebnisse der zeitaufgelösten Kathodolumineszenzuntersuchungen zur Bestimmung der anfänglichen Lebensdauer der freien Exzitonen im Quantenfilm sind in der Abbildung 5.51 dargestellt. Hier findet sich der letzte Moment der Anregung im Gleichgewichtszustand aus Generation und Rekombination und die ersten ca. $\Delta t=30$ ns nach Abschalten der Anregung und damit dem Übergang in den thermodynamischen Gleichgewichtszustand.

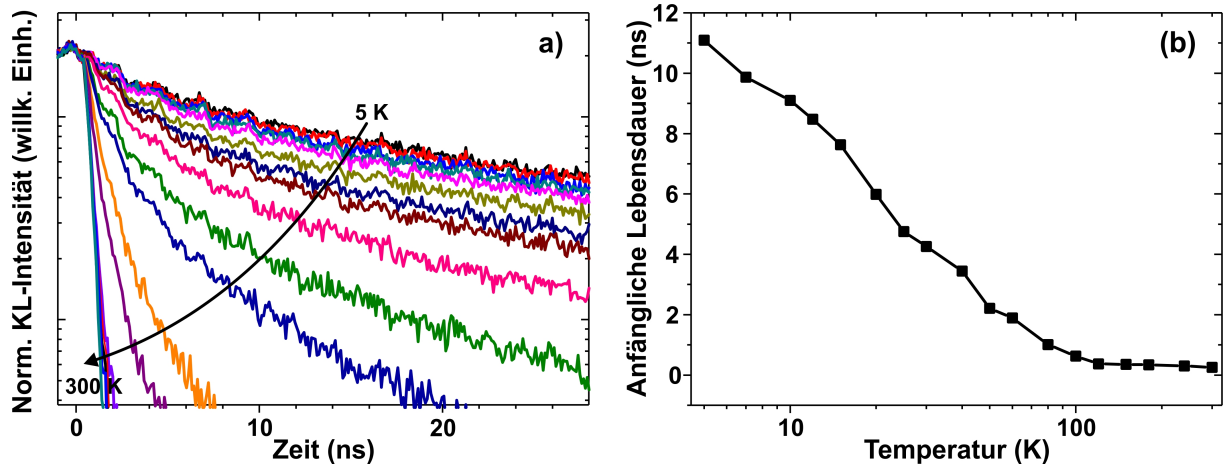


Abbildung 5.51: a) Darstellung der aufgenommenen Transienten der Lumineszenzintensität der Exzitonen im Quantenfilm für verschiedene Temperaturen von $T=5$ K bis $T=300$ K im letzten Moment vor Beendigung der Anregung im quasistationären Zustand aus Generation und Rekombination bei $t=0$ s, sowie den ersten $\Delta t=30$ ns des Rückgangs in den thermodynamischen Gleichgewichtszustand. Mit zunehmender Temperatur fällt die Lumineszenzintensität zunehmend steiler ab. b) Mittels monoexponentieller Anpassung an den anfänglichen Abfall der Lumineszenzintensität direkt nach Beendigung der Anregung erhaltene anfängliche Lebensdauern der Exzitonen des Quantenfilms als Funktion von der Probertemperatur.

Wie in der Abbildung 5.51a zu sehen ist, fällt die Lumineszenzintensität mit zunehmender Probertemperatur zunehmend steiler ab, was eine Verkürzung der Lebensdauer mit steigender Temperatur bedeutet. Dies zeigt auch die Auswertung des anfänglichen Abfalls der Lumineszenzintensität direkt nach dem Abschalten der Anregung mittels Anpassung eines monoexponentiellen Zerfalls - siehe Abbildung 5.51b. Die anfängliche Lebensdauer der Exzitonen im Quantenfilm fällt von $\tau=11$ ns bei einer Probertemperatur von $T=5$ K monoton auf $\tau=260$ ps bei $T=300$ K.

Die anfängliche Lebensdauer wird auch hier für die Berechnung der Transportparameter verwendet. Die Abbildung 5.52 zeigt ein Sekundärelektronenkontrastbild eines solchen Lochs, an

dem diese Untersuchungen durchgeführt wurden.

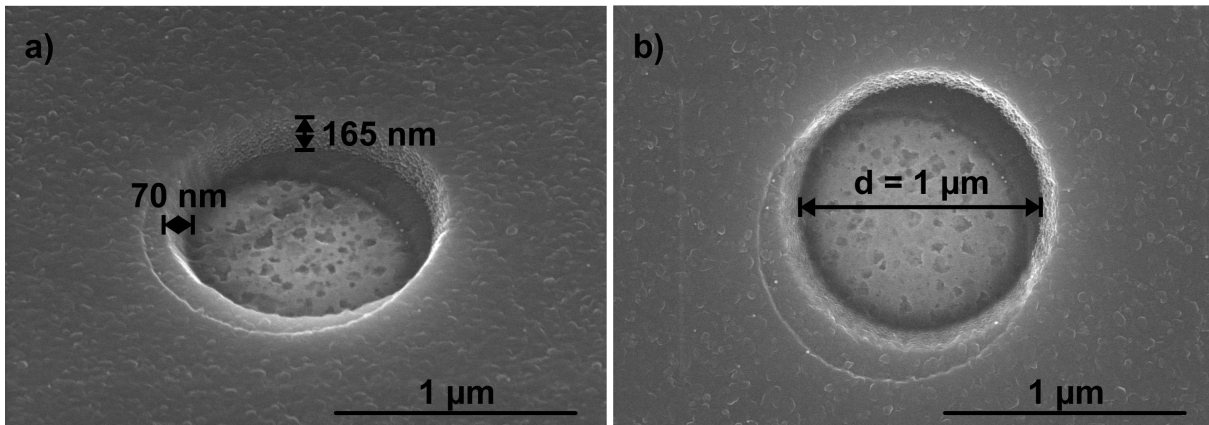


Abbildung 5.52: Dargestellt sind zwei Sekundärelektronenkontrastbilder, aufgenommen mit einem FEREM. Die Abbildung a) wurde unter einem Betrachtungswinkel von ca. 30° aufgenommen. Hieraus lassen sich eine Schichtdicke des aufgetragenen Titans von $d=165$ nm und eine Weite der „Kraterwand“ von ca. $w=70$ nm ablesen. Die Abbildung b) ist eine Aufsicht auf ein Loch mit einem Durchmesser von ebenfalls $K=1$ μm. Es ist, wie in Abbildung a) zu erkennen, durch eine zweistufige Abscheidung des Titans ein doppelter Schattenwurf entstanden (innerhalb des Lochbodens oben-rechts im Bild und außerhalb der Apertur unten links im Bild).

In der Abbildung 5.52a beträgt der Blickwinkel ca. 30° . So ist aus der Aufnahme abzulesen, dass die Schichtdicke des hier erzeugten Lochs $K=1$ μm, $d=165$ nm beträgt und die Wandung der Apertur eine Weite von ca. $w=70$ nm aufweist. Zudem ist hier auch ein Saum am Boden des Lochs (im Bild oben rechts) zu erkennen, sowie ein Gebiet verminderter Schichtdicke außerhalb der Apertur (im Bild unten links am Rand des Lochs). Diese sind dadurch entstanden, dass das beim Bedampfungsprozess verwendete Titangefäß sich auch hier erschöpft hat und zur Erreichung der geforderten Schichtdicke ein weiterer Bedampfungsschritt nötig wurde. Hierbei wurde offenbar die Quelle beim zweiten Schritt gegenüber dem ersten leicht versetzt eingebracht, sodass ein anderer Schattenwurf an den zuvor aufgetragenen Polystyrenkugeln entstand. Die hieraus resultierende Anteil an der Gesamtdicke beträgt jedoch etwas weniger als $\Delta d=10$ nm (ca. 6 %) und ist damit als vernachlässigbar anzusehen.

Anders als bei den Aperturen, die auf die Probe im vorangegangenen Abschnitt aufgebracht wurden (siehe Abbildung 5.42), findet sich hier kein den gesamten Umlauf des Bodens einnehmender Titanrand. Die Qualität dieser Löcher ist insgesamt als besser einzustufen. Der verwandte Prozess ist jedoch identisch.

Der Lochdurchmesser betrug $K=1$ μm, die Proben temperatur wurde variiert von $T=5$ K bis $T=300$ K. Die Strahlstromstärke der anregenden Elektronen wurde im in-pulse-Betrieb zu $I=720$ pA bestimmt und die kinetische Energie der Primärelektronen betrug $E_e=3$ keV.

Die Abbildung 5.53 zeigt die aus diesem Loch erhaltenen Transienten bzw. den anfänglichen Abfall der Lumineszenzintensität der Exzitonen im Quantenfilm.

Mit zunehmender Temperatur (siehe Pfeil in Abbildung 5.53) fällt die Lumineszenzintensität

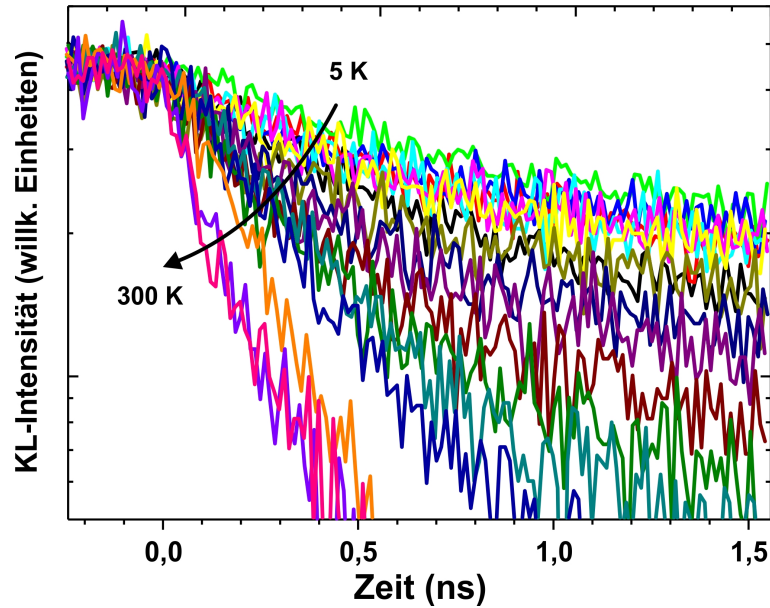


Abbildung 5.53: Darstellung des anfänglichen Abfalls der Lumineszenzintensität der rekombinierenden Exzitonen im Quantenfilm im Gebiet des betrachteten Loches in der Titanmaske. Mit steigender Temperatur (siehe Pfeil) fällt die Lumineszenzintensität zunehmend steiler ab, was einer Abnahme der anfänglichen Zerfallszeit entspricht.

zunehmend steiler ab. Dies deckt sich mit den Ergebnissen aus der Ermittlung der anfänglichen Lebensdauer (vgl. Abbildung 5.51). Auch für die Transienten aus dem Gebiet des Loches wurde zu Vergleichszwecken an den anfänglichen Abfall der Lumineszenzintensität ein monosexponentieller Verlauf angepasst. Die daraus resultierende anfängliche Zerfallszeit der freien Exzitonen im Quantenfilm ist zusammen mit der anfänglichen Lebensdauer für die untersuchten Proben-temperaturen in der Abbildung 5.54a dargestellt. Es zeigt sich auch hier, dass die anfängliche Zerfallszeit für alle betrachteten Temperaturen erwartungsgemäß unterhalb der anfänglichen Lebensdauer der freien Exzitonen im Quantenfilm befindet. Die größte Differenz findet sich bei tiefen Temperaturen. Mit zunehmender Temperatur nähern sich die Werte der anfänglichen Zerfallszeit und Lebensdauer an, überschneiden sich jedoch nicht.

Durch Anpassung der Gleichung (4.46) an den Verlauf des anfänglichen Abfalls der Lumineszenzintensität der freien Exzitonen des Quantenfilms aus dem Gebiet der Apertur (Abbildung 5.53) und Einsetzen der entsprechend zugehörigen anfänglichen Lebensdauer τ sowie Lochdurchmesser K erhält man wiederum die zu jeder Temperatur gehörige Diffusionskonstante $D(T)$. Die Ergebnisse sind in der Abbildung 5.54b dargestellt. Bei einer Proben-temperatur von $T=5$ K liegt die Diffusionskonstante für die freien Exzitonen im Quantenfilm bei $D=3,4$ cm²/s. Mit steigender Temperatur fällt diese zunächst bis $T=12$ K auf $D=1,4$ cm²/s, verharrt dort bis etwa $T=30$ K und steigt bis zu einem Maximum von $D=6$ cm²/s bei $T=50$ K an. Mit weiter steigender Temperatur fällt die Diffusionskonstante monoton bis $T=300$ K auf $D=0,8$ cm²/s.

Berechnet man aus der Diffusionskonstante mit der anfänglichen Lebensdauer über die Gleichung (2.39) die Diffusionslänge λ , so erhält man aus den bisher erhaltenen Ergebnissen die Diffusionslängen, wie sie in der Abbildung 5.54c dargestellt sind. Bei einer Proben-temperatur

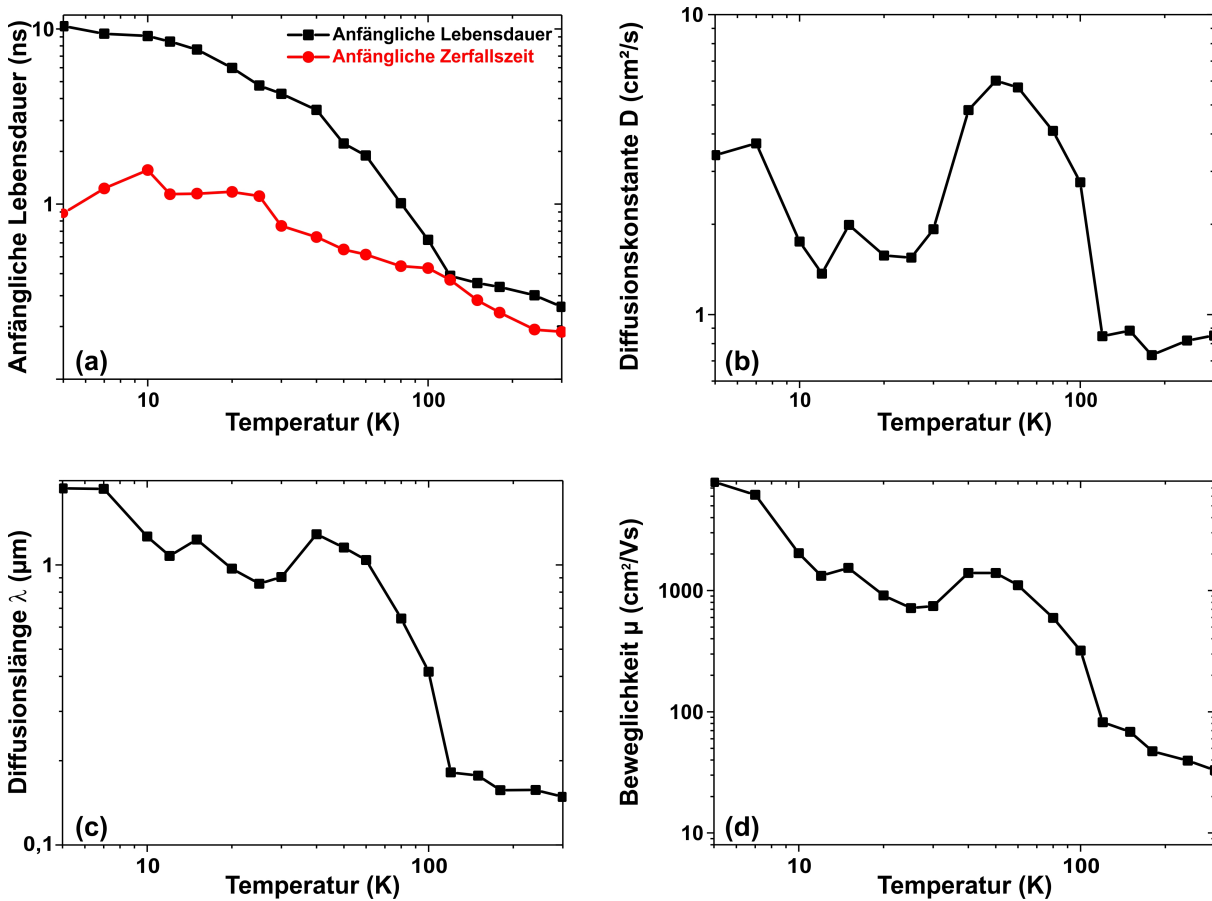


Abbildung 5.54: In Abhängigkeit von der Proben­temperatur sind folgende Ergebnisse dargestellt: a) Vergleich der anfänglichen Lebensdauer (schwarz) und anfänglichen Zerfallszeit (rot) für die Exziton­en im Quantenfilm, b) berechnete Diffusionskonstanten, c) abgeleitete Diffusionslängen und d) aus den Diffusionskonstanten abgeleitete Beweglichkeit der Exziton­en.

von $T=5\text{ K}$ beträgt diese rund $\lambda=1,9\ \mu\text{m}$. Mit steigender Temperatur fällt diese weitestgehend monoton bis zu einer Proben­temperatur von $T=300\text{ K}$ auf einen Wert von $\lambda=0,15\ \mu\text{m}$.

Über die Einsteinbeziehung (2.38) lässt sich auch hier eine Beweglichkeit aus der Diffusions­konstanten definieren. Man erhält den in der Abbildung 5.54d dargestellten Verlauf der Beweg­lichkeit als Funktion von der Proben­temperatur. Das Maximum ihrer Beweglichkeit erreichen die Exziton­en bei der kleinsten betrachteten Proben­temperatur von $T=5\text{ K}$. Hier liegt der Wert bei $\mu=7900\ \text{cm}^2/\text{Vs}$. Bis zu einer Temperatur von $T=30\text{ K}$ fällt die Beweglichkeit monoton bis auf ca. $\mu=750\ \text{cm}^2/\text{Vs}$. Steigt die Temperatur weiter, so wird ein „lokales“ Beweglichkeitsmaxi­mum bei $T=50\text{ K}$ mit einem Wert von $\mu=1400\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ erreicht. An dieses Maximum schließt sich eine monotone Abnahme der Beweglichkeit der Exziton­en bis zu einer Temperatur von $T=300\text{ K}$ an, bei der die Beweglichkeit ihr Minimum im Betrachteten Temperaturfenster erreicht und $\mu=30\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ beträgt. Die im Vergleich zur Probe des vorangegangenen Abschnitts höhere absolute Beweglichkeit der Exziton­en kann durch die größere Dicke und die höheren Potentialbarrieren des Quantenfilms erklärt werden. Dieser Umstand wurde bereits in [HIL89] ausführlich dargelegt, wonach sowohl höhere Schichtdicken, als auch höhere Barrieren für eine höhere Beweglichkeit sorgen. Auch steht dies in Einklang Gleichung (2.91).

Anders als für die im vorangegangenen Abschnitt diskutierte Probe, findet sich hier zudem

kein ausgeprägtes Plateau der Beweglichkeit bei tiefen Temperaturen. Vielmehr fällt diese für Temperaturen größer als $T=5$ K sofort ab. Es kann also davon ausgegangen werden, dass die bereits oben angestellten Vermutungen, dass die Grenzflächen bei dieser Probe nominell rauer sind als bei der Vergleichsprobe, zutrifft. Eine glattere Grenzfläche müsste entsprechend den Überlegungen und Ausführungen des Kapitels 2.8.4 hier eine temperaturunabhängige Beweglichkeit zur Folge haben (siehe auch Vergleichsprobe Abschnitt 5.4.1). Zu beachten ist in diesem Zusammenhang, dass unter dem Begriff der Rauigkeit nicht die Höhe der Potentialfluktuationen allein zu verstehen ist, sondern eine Kombination aus der Höhe und auch der Weite der jeweiligen Schichtdickenfluktuationen im Quantenfilm. Es ist zu vermuten, dass hauptsächlich die Weiten der „Inseln“ gleicher Schichtdicke bei dieser Probe kleiner ausfallen, als in der Vergleichsprobe. Diese Vermutung legen auch die Ergebnisse zum QCSE nahe, welcher bei dieser Probe trotz günstigerer Voraussetzungen durch höhere Barrieren und dickere Quantenfilmschichten kleiner auffällt als bei der oben genannten Probe. Eine entsprechend der Abbildung 5.56 geformte Grenzfläche schirmt aufgrund der sich ausbildenden Potentialfluktuationen das Polarisationsfeld entsprechend ab.

Ebenfalls für rauere Grenzflächen spricht die Auswertung der Halbwertsbreite der exzitonischen Lumineszenz des QW, wie sie bereits am Ende von 5.4 diskutiert wurde. So findet sich bei einer Probentemperatur von $T=5$ K eine identische Halbwertsbreite dieser Lumineszenz von $\text{FWHM}=50$ meV (vgl. Abb. 5.48). Aufgrund der höheren Filmdicke und des geringeren QCSE im Vergleich mit der Probe aus Abschnitt 5.4.1 folgt daraus, dass die Gebiete identischer Schichtdicke entsprechend deutlich kleiner ausfallen müssen, als in der Vergleichsprobe aus dem vorangegangenen Abschnitt [SIN03] [BAJ01]. Veranschaulicht ist dies in der Abbildung 5.56.

Ferner lässt sich abschätzen, dass die Ausdehnung der Schichtdickenfluktuationen im Bereich der Ausdehnung des Exzitons liegen. Aus der temperaturabhängigen Beweglichkeit lässt sich ablesen, dass im Temperaturbereich von $T=20$ K bis $T=40$ K eine thermische Aktivierung des Transports erfolgt. Eine thermische Aktivierung des Transports hat bereits Hillmer et. al ([HIL90]) für eine nicht wachstumsunterbrochene QW-Struktur gefunden, bei der die Grenzflächen der Heterostruktur entsprechend rau ausgestaltet sind. Dies stellt ein weiteres Indiz für vergleichsweise raue Grenzflächen für die vorliegende Probe dar. Die Tatsache, dass die Beweglichkeit zunächst von einem höheren Niveau kommend mit steigenden Temperaturen abnimmt, könnte ggf. damit erklärt werden, dass sich in dem relativ dicken Quantenfilm noch ausreichend Exzitonen befinden, welche aufgrund der Abschirmung des Polarisationsfeldes durch die Konzentration von Überschussladungsträgern / Exzitonen kein attraktives Potential an den Grenzflächen „sehen“ und somit eine weitestgehend von Grenzflächeneinflüssen freie Bewegung ausführen können - sich sozusagen in einem streuzentrenarmen Kanal befinden. Vielmehr streuen diese Exzitonen dann mit den von Phononen hervorgerufenen Potentialfluktuationen. Wie im übernächsten Absatz erläutert wird, kann so auch der temperaturabhängige Verlauf der exzitonischen Beweglichkeit unter Nichtbeachtung der thermischen Aktivierung des Transports ordentlich reproduziert werden.

Übersteigt die Materialtemperatur ca. $T=20$ K bis 30 K erhalten die in den Potentialminima der Grenzflächen gehaltenen Exzitonen ausreichend Energie, um sich von diesen zu lösen und ihrerseits einen Beitrag zur Gesamtbeweglichkeit zu leisten. So, dass die ermittelte Beweglichkeit im Bereich dieser thermischen Aktivierung zunimmt.

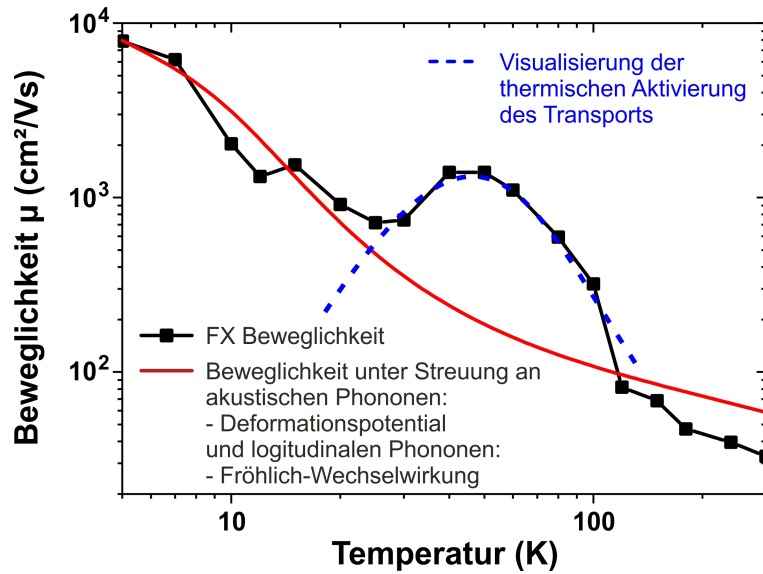


Abbildung 5.55: Darstellung der aus den Messungen erhaltenen exzitonischen Beweglichkeit im Quantenfilm in Abhängigkeit von der Temperatur (schwarz) mit dazugehöriger theoretischer Beweglichkeit der Exzitonen für eine Beteiligung von Streuung am Deformationspotential und der Fröhlichwechselwirkung (rot) und einem „Guide to the Eye“ (blau gestrichelt) zur Anzeige der thermischen Aktivierung des Transports der Exzitonen im QW bzw. an den Grenzflächen - analog zu [HIL88]

Eine Anpassung der charakteristischen Verläufe der Beweglichkeit verschiedener Streumechanismen an die ermittelte Beweglichkeit der Exzitonen lässt den Schluss zu, dass die in diesem Quantenfilm dominierenden Streumechanismen für die freien Exzitonen die Deformationspotentialstreuung und die Fröhlichwechselwirkung darstellen (siehe Abbildung 5.55). Mit diesen beiden Streuarten ist die beste Reproduktion des gefundenen Verlaufes der Beweglichkeit in Abhängigkeit von der Probestemperatur erreichbar.

Entsprechend den Ausführungen des Kapitels 2.8.3 ist ein Parameter für die Deformations-

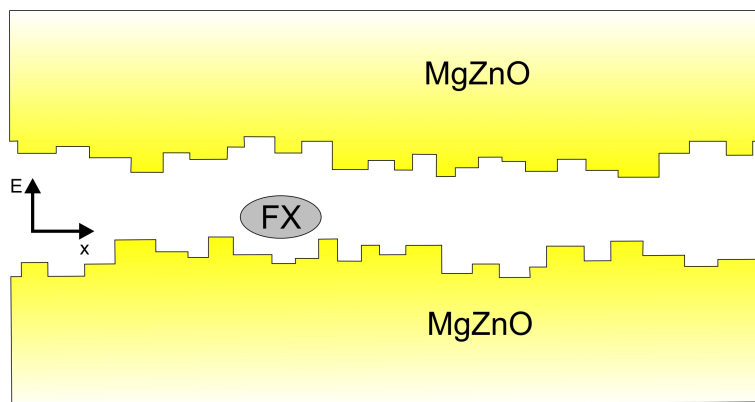


Abbildung 5.56: Schematische Darstellung von einer möglichen Beschaffenheit der Grenzflächen. Modellbildung abgeleitet aus den gefundenen Ergebnissen insbesondere zum QCSE und der Transportergebnisse in Verbindung mit Gleichung (2.91) sowie der Halbwertsbreite der QW-Lumineszenz.

potentialstreuung in zweidimensionalen Strukturen die Schichtdicke dieser Struktur. Für die Qualität der Anpassung spricht die hieraus ermittelte Quantenfilmdicke von $d=5$ nm, wie sie auch annähernd aus den Positionsbestimmungen anhand von Sekundärelektronenkontrastbildern abgeschätzt wurde. Wie auch in allen anderen hier behandelten Fällen spielt die ionisierte Störstellenstreuung für die untersuchten Exzitonen keine Rolle. Die Abwesenheit dieses im Falle von Ladungsträgern extrem dominanten Streumechanismus spricht vielmehr dafür, dass tatsächlich der exzitonische Transport in den vorliegenden Untersuchungen analysiert wurde und diese aufgrund ihrer elektrischen Neutralität den Blick auf die offengelegten anderen Streumechanismen erlauben.

6 Zusammenfassung

Wie bereits in der Einleitung besprochen, erfordern die zunehmende Miniaturisierung sowie die immer weiter steigenden Anforderungen an leistungsfähige und gleichzeitig energieeffiziente Bauelemente eine weitere Optimierung nicht nur ihres Layouts, sondern auch ihres strukturellen Aufbaus und ihrer Qualität - insbesondere im Hinblick auf ihre Grenzflächen.

Eine geeignete Methode zur Analyse der transportlimitierenden Größen in niederdimensionalen Strukturen wie Quantenfilmen stellt die Analyse des exzitonischen Transports dar, da hier die für Ladungsträger dominante Streuung an ionisierten Störstellen, welche andere Streumechanismen „verdeckt“, keine Rolle spielt. Dies bestätigen die in dieser Arbeit erhaltenen Ergebnisse.

Die Kenngröße, welche die zugrundeliegenden Streumechanismen aufzeigt, ist die Beweglichkeit als Funktion von der Temperatur. Jeder Streumechanismus bedingt einen charakteristischen Verlauf der Beweglichkeit in Abhängigkeit von der Temperatur. Die wichtigsten Streumechanismen wurden im Abschnitt 2.8 besprochen. Um die Beweglichkeit der Exzitonen ermitteln zu können, müssen die anfängliche Lebensdauer τ und je nach verwendeter Methode die Diffusionslänge λ , oder die Diffusionskonstante D - jeweils selbst als Funktion der Temperatur - ermittelt werden. Mit diesen Parametern lässt sich dann die Beweglichkeit über die sogenannte Einsteinbeziehung errechnen (siehe Abschnitt 2.7).

Mit den hier gezeigten optischen Methoden zur Untersuchung des exzitonischen Transports wurden hochsensitive Untersuchungsmethoden etabliert, welche es erlauben den exzitonischen Transport auf einer Nanometerskala mit hoher örtlicher und zeitlicher Auflösung zu analysieren. Dazu wurde ein Kathodolumineszenzmessaufbau verwendet, der es sowohl ermöglicht hochorts- als auch hochzeitaufgelöste Lumineszenzuntersuchungen durchzuführen. Dieser Aufbau erlaubt zudem eine hohe Selektivität des betrachteten Wellenlängenbereichs bzw. Übergangs und damit des beobachteten Komplexes. Zwei Verfahren wurden im Rahmen dieser Arbeit erarbeitet und auf Ihre Funktionalität hin begutachtet. Der exzitonische Transport in bulk GaN und ZnO, sowie ZnO-basierten Quantenfilmen wurde analysiert.

Bei der ersten Methode handelt es sich um eine orts aufgelöste Untersuchung, bei der senkrecht zur Kante einer lichtabsorbierenden Maske die Lumineszenzintensität in einem Linescan erfasst wird. Aus dem Verlauf der Intensität entlang dieses Linescans lässt sich die Diffusionslänge λ der freien Exzitonen ablesen. Die entsprechende Modellbildung bzw. die Ableitung der entsprechenden Diffusionsgleichung wurde unter Berücksichtigung der Änderung der Anregungsdichte vom maskierten zum unmaskierten Bereich und einer endlichen, gaussverteilten Anregungsweite vorgenommen. Die Berücksichtigung der Änderung der Anregungsdichte beim Übergang vom maskierten zum unmaskierten Bereich stellt dabei eine Optimierung gegenüber dem Modell dar, welches in meiner Abschlussarbeit Verwendung fand. Die Ableitung der angepassten Diffusionsgleichung ist in Abschnitt 4.3.1 dargelegt und wurde in weiten Teilen bereits im Rahmen meiner Diplomarbeit erarbeitet. Entscheidende Nachteile dieser Methode

sind allerdings die Mindestenergie der Primärelektronen zur Durchdringung der Maskierung von $E=7\text{ keV}$ und damit verbunden eine hohe Anregungsweite und die hohen Anforderungen an die Prozessierung der Maskenkanten, welche eine möglichst gegen Null gehende Weite besitzen müssen. Praktisch wurden im besten Fall Weiten um ca. $w=100\text{ nm}$ erreicht. Hiermit und mit der optischen Auflösung aufgrund der hohen Primärelektronenenergie sind Diffusionslängen kleiner als $\lambda=100\text{ nm}$ nicht detektierbar. Ferner haben sich häufig Ränder im Bereich der Maskenkanten gezeigt, welche Einfluss auf die Lumineszenzintensität nehmen und somit eine Auswertung des Intensitätsverlaufs verwehren.

Zum anderen wurde eine Methode verwendet bzw. erarbeitet, bei der durch die Wahl der Geometrie der Maskierung (zirkuläre Öffnungen in einer lichtabsorbierenden Schicht) der Probenoberfläche eine kombinierte orts-zeit-aufgelöste Information erhalten wird. Hier wird ausgenutzt, dass der erhaltene Abfall der Lumineszenzintensität nach einer gepulsten Anregung direkt davon abhängt, wie hoch die Diffusivität der Exzitonen ausfällt. Hier bedingen sich damit also Lochkreisdurchmesser (bekannt aus Präparation) und Diffusivität („freier Parameter“) gegenseitig. Durch die Kenntnis der Lebensdauer τ der freien Exzitonen und dem Lochkreisdurchmesser kann mittels des im Rahmen dieser Arbeit entwickeltem theoretischen Modells die Diffusionskonstante direkt aus den erhaltenen Transienten ermittelt werden. Die Modellbildung bzw. die Lösung der zugehörigen Diffusionsgleichung mit allen Nebenbedingungen und ebenfalls unter Berücksichtigung einer endlichen Anregungsweite ist im Abschnitt 4.3.2 aufgezeigt. Die Lösung der aufgestellten Diffusionsgleichung unter Vorgabe aller zu berücksichtigenden Bedingungen und unter Vorgabe zur Findung einer analytischen Lösung wurde von Hrn. Andrey Poljakov erarbeitet. Im Vergleich zur oben genannten Methode kann hier aufgrund der fokussierten Anregung im Zentrum der Apertur die Primärelektronenenergie wesentlich kleiner ausfallen, was die Anregungsweite reduziert und somit, wie gezeigt, die Empfindlichkeit dieser Methode deutlich erhöht. Außerdem stellt dies somit eine teils erhebliche Verbesserung zu der in [HIL89] präsentierten Methode dar. Zudem kann somit ein weiterer Bereich von Anregungsdichten abgedeckt werden, was gerade in Bezug auf polare Heterostrukturen größeres Analysepotential bietet. Die Möglichkeit die Lochkreisdurchmesser den Anforderungen entsprechend anzupassen bzw. auszuwählen erhöht die Einsatzbreite von hohen bis sehr geringen Diffusivitäten der freien Exzitonen. Darüber hinaus hat sich die Probenpräparation als deutlich einfacher herausgestellt, als die Herstellung der rechteckigen Maskierungen. Eine hohe Qualität ist ohne großen Aufwand leicht zu reproduzieren. Damit stellt diese neu entwickelte bzw. weiterentwickelte Methode das größere Potential von den beiden genutzten Verfahren dar, um den exzitonischen Transport in Halbleitern zu untersuchen.

Wie die Simulationen in den Abschnitten 4.3.1 und 4.3.2 zeigen, ist die Berücksichtigung der Anregungsweite bei beiden Methoden von grundlegender Bedeutung. Exemplarisch wurde anhand der Diffusionslängenbestimmung aus ortsaufgelösten Messungen gezeigt, dass ohne dieser Berücksichtigung erheblich (im Experiment bis zu Faktor 6) von der „Realität“ abweichende Diffusionslängen erhalten werden können (siehe dazu Abschnitt 5.1.1 bzw. Abbildung 5.5).

Die Ergebnisse zeigen trotz aller Unterschiede, dass beide verwendeten Methoden zu verwertbaren Ergebnissen führen und einen Einblick in den exzitonischen Transport erlauben. Mit

beiden verwendeten Methoden wurde der exzitonische Transport in jeweils zwei Galliumnitrid, als auch zwei ZnO-Substraten untersucht. Mit der orts-zeitaufgelösten Methode (Methode der transparenten Kreisfläche) wurde zudem der exzitonische Transport in zwei ZnO-Quantenfilmen analysiert.

HVPE-GaN

Die Ergebnisse der Untersuchungen zum Transport freier Exzitonen in einer qualitativ hochwertigen, dicken, HVPE gewachsenen Galliumnitridprobe mittels cw-Linescans zeigen, dass die Diffusionslänge von ca. $\lambda=3\ \mu\text{m}$ auf $\lambda=1\ \mu\text{m}$ bei steigender Temperatur von $T=5\ \text{K}$ bis $T=300\ \text{K}$ abfällt. Gleichartig steigt die anfängliche Lebensdauer der freien Exzitonen von $\tau=0,4\ \text{ns}$ auf $\tau=1,4\ \text{ns}$. Die daraus resultierende Beweglichkeit der freien Exzitonen besitzt ihr Maximum bei $T=5\ \text{K}$ mit $\mu=700.000\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ und fällt monoton bis zu einer Temperatur von $T=300\ \text{K}$ auf $\mu=7\ \text{cm}^2/\text{Vs}$. Eine Analyse des Verlaufs der Beweglichkeit zeigt, dass dieser hervorragend reproduziert werden kann, wenn drei verschiedene Streuarten angenommen werden. Diese sind Streuungen am akustischen Deformationspotential, sowie Streuungen an akustischen Phononen unter Beteiligung von piezoelektrischer Wechselwirkung, als auch Streuungen durch die Fröhlichwechselwirkung. Eine Streuung an ionisierten Störstellen kann entsprechend den Erwartungen für die elektrisch neutralen Exzitonen nicht gefunden werden.

Eine weitere HVPE gewachsene GaN-Probe wurde mittels Methode der transparenten Kreisflächen analysiert. Anders als bei der oben genannten Probe steigt die Diffusionslänge mit steigender Temperatur. Bei $T=5\ \text{K}$ beträgt die Diffusionslänge $\lambda=200\ \text{nm}$, bei $T=150\ \text{K}$ wird ein Maximum von $\lambda=1,3\ \mu\text{m}$ erreicht. Die anfängliche Lebensdauer der freien Exzitonen steigt mit zunehmender Temperatur von $T=5\ \text{K}$ bis $T=300\ \text{K}$ von $\tau=300\ \text{ps}$ auf $\tau=1\ \text{ns}$. Dies führt zu einer mit steigender Temperatur fallenden Beweglichkeit der freien Exzitonen. Bei $T=7\ \text{K}$ wird ein Maximum von ca. $\mu=9000\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ erreicht. Mit steigender Temperatur fällt die Beweglichkeit bis $T=300\ \text{K}$ auf $\mu=450\ \text{cm}^2/\text{Vs}$. Die Exzitonen erreichen also nicht die hohe Beweglichkeit wie in der Vergleichsprobe. Gleichzeitig jedoch fällt die Beweglichkeit mit steigender Temperatur nicht so stark ab. Die geringere maximale Beweglichkeit lässt sich mit einer im Vergleich geringeren kristallinen Qualität erklären (das Probenstück stammt aus dem äußersten Randbereich des Wafers). Die Analyse der beteiligten Streuprozesse zeigt die dominante Beteiligung zweier Streumechanismen. Dies sind die akustische Deformationspotentialstreuung und die Fröhlichwechselwirkung. Es kann vermutet werden, dass aufgrund von strukturellen Defekten in dieser Probe die Piezoelektrizität reduziert ist und deshalb, anders als bei der Vergleichsprobe die Streuung an akustischen Phononen unter Beteiligung der piezoelektrischen Wechselwirkung keine dominante Rolle spielt. Auch hier kann erwartungsgemäß keine Streuung der freien Exzitonen an ionisierten Störstellen nachgewiesen werden.

ZnO-Substrat

Wieder startend mit der Methode der cw-Linescans weist das analysierte, kommerzielle ZnO-Substrat für die freien Exzitonen eine Diffusionslänge von bis zu $\lambda=4\ \mu\text{m}$ bei $T=5\ \text{K}$ auf. Diese sinkt mit zunehmender Proben temperatur auf bis zu knapp über $\lambda=1\ \mu\text{m}$ bei $T=300\ \text{K}$. Gleichzeitig steigt jedoch die anfängliche Lebensdauer im selben Temperaturintervall von $\tau=300\ \text{ps}$ bei $T=5\ \text{K}$ auf $\tau=9,8\ \text{ns}$ bei $T=300\ \text{K}$. Dies führt zu einer monoton fallenden Beweglichkeit von $T=5\ \text{K}$ bis $T=300\ \text{K}$ von etwa $\mu=10^6\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ auf $\mu=50\ \text{cm}^2/\text{Vs}$. Eine Auswertung des Verlaufs

der Beweglichkeit in Abhängigkeit von der Temperatur zeigt, dass die beteiligten, dominanten Streumechanismen die am akustischen Deformationspotential und der Fröhlichwechselwirkung sind. Ferner konnte aus dieser Anpassung für die untersuchte ZnO-Probe eine Debye-Temperatur von $T_D=379$ K ermittelt werden, welche sehr nahe dem Literaturwert von $T_D=416$ K liegt. Auch dies zeigt die Qualität der ermittelten Transportkenngrößen.

Eine Abhängigkeit der Diffusionslängen von der Orientierung auf der Probenoberfläche konnte nicht nachgewiesen werden. Dies entspricht aufgrund der Wachstumsrichtung bzw. der Ebene (c-Ebene), in der die Transportuntersuchungen unternommen wurden, der Erwartung.

Der Transport freier Exzitonen in einem weiteren kommerziellen ZnO-Substrat wurde mit der Methode der transparenten Kreisfläche analysiert. Hier zeigt sich, dass die anfängliche Lebensdauer ebenfalls mit zunehmender Temperatur zunimmt. Sie steigt von $T=5$ K bis $T=300$ K von $\tau=260$ ps bis $\tau=2,2$ ns an. Die ermittelte anfängliche Zerfallszeit, ermittelt aus den aufgenommenen Transienten der freien Exzitonen aus dem Lochkreis, zeigen jedoch keine signifikante Variation mit der Proben temperatur. Die ermittelten Diffusionskonstanten reichen von $D=2$ cm²/s bei $T=5$ K bis $D=20$ cm²/s bei $T=180$ K, woraus zusammen mit der anfänglichen Lebensdauer die Diffusionslänge berechnet wurde. Diese steigt ebenfalls mit steigender Temperatur an. Bei $T=5$ K beträgt sie $\lambda=200$ nm, bei $T=180$ K liegt sie im Bereich um knapp $\lambda=3$ μ m. Die mittels Einsteinbeziehung errechnete Beweglichkeit der freien Exzitonen deckt einen Bereich von etwa $\mu=1000$ cm²/Vs bis $\mu=4000$ cm²/Vs ab. Es handelt sich dabei jedoch um keinen monotonen Zusammenhang, sondern um eine eher hin- und herschwankende Beweglichkeit in Abhängigkeit von der Proben temperatur. Dieses dürfte der ermittelten anfänglichen Zerfallszeit geschuldet sein, welche keine Variation mit der Proben temperatur erkennen lässt. Der Grund hierfür liegt möglicherweise an einem ungünstigen Lochdurchmesser. Somit sind für diese Probe leider keine Rückschlüsse auf beteiligte Streumechanismen beim exzitonischen Transport möglich.

ZnO-Quantenfilme

Neben den Bulk-Materialien wurden ZnO basierte Quantenfilme untersucht. Hier sollte geklärt werden, ob eine Streuung an Grenzflächen aufgezeigt werden kann bzw. welchen Einfluss die Grenzflächen zum Barrierenmaterial auf den Transport der freien Exzitonen im Quantenfilm haben. Zur Analyse dieses Transports wurde die flexiblere und sensitivere Methode der transparenten Kreisfläche verwendet.

Die erste Probe weist MgZnO-Barrieren mit einer Mg-Konzentration von ca. 6% auf. Die Dicke des Quantenfilms an der Untersuchungsstelle beträgt ca. 4 nm. Die Lumineszenz aus dem ZnO-Quantenfilm liegt mit $E=3,19$ eV bei $T=5$ K und kleinen Anregungsdichten energetisch unterhalb des ZnO-Bulk-Materials. Dieser Umstand lässt sich mit dem QCSE erklären, der diese Probe auszeichnet. Die Auswertung anregungsdichteabhängiger Lumineszenzuntersuchungen zeigt eine Verschiebung der Lumineszenzenergie von $\Delta E=29$ meV/Dekade Anregungsdichte. Ferner zeigt die Analyse der Quantenfilmlumineszenz als Funktion von der Proben temperatur zwei Aktivierungsenergien. In Anlehnung an die Bindungsenergien von Exzitonen an „Dotanden“ im Bulk-System entsprechen diese den Elementen Gallium und einem bislang nicht näher definierbaren Dotanden, dessen strahlender Übergang jedoch mit „I₀“ bezeichnet wird.

Die anfängliche Lebensdauer der Exzitonen im Quantenfilm fällt monoton mit steigender Temperatur von $\tau=3,7$ ns bei $T=5$ K bis $\tau=400$ ps bei $T=180$ K. Die anfängliche Zerfallszeit,

welche aus den Transienten aus dem Lochkreis mit einem Durchmesser von 1 μm erhalten wurden, fallen ebenfalls mit steigender Temperatur, wahren jedoch aufgrund der Diffusion der Exzitonen unter die Maskierung entsprechenden Abstand zur anfänglichen Lebensdauer. Bei $T=5\text{ K}$ beträgt die Diffusionskonstante $D=0,3\text{ cm}^2/\text{s}$, bei $T=180\text{ K}$ beträgt sie hingegen $D=1,4\text{ cm}^2/\text{s}$. Die aus der Diffusionskonstanten und der anfänglichen Lebensdauer berechnete Diffusionslänge zeigt eine allmähliche thermische Aktivierung im Bereich von $T=5\text{ K}$ bis $T=12\text{ K}$. Sie steigt in diesem Temperaturbereich von $\lambda=300\text{ nm}$ auf $\lambda=375\text{ nm}$. Steigt die Temperatur weiter, so überwiegen mit steigender Temperatur stärker werdende Streuungen an Phononen. Somit fällt ab ca. $T=40\text{ K}$ bis $T=180\text{ K}$ die Diffusionslänge auf $\lambda=225\text{ nm}$ ab. Dieses Verhalten führt zu einer Beweglichkeit, welche im Bereich tiefer Temperaturen von $T=5\text{ K}$ bis $T=12\text{ K}$ ein konstantes Niveau um $\mu=600\text{ cm}^2/\text{Vs}$ zeigt und erst mit darüber hinaus steigender Temperatur deutlich bis $\mu=90\text{ cm}^2/\text{Vs}$ fällt. Eine Überlagerung charakteristischer Beweglichkeiten diverser Streumechanismen zeigt, dass sich dieser Verlauf der Beweglichkeit hervorragend unter Annahme der temperaturunabhängigen Grenzflächenrauigkeitsstreuung und der Fröhlichwechselwirkung reproduzieren lässt. Offenbar liegt also die Potentiallandschaft an den Grenzflächen vom Quantenfilm zum Barrierenmaterial bzgl. seiner Ausdehnungen unterschiedlicher „Inseln“ im Bereich oberhalb der Ausdehnung des Exzitonbohradius.

Die zweite Probe mit ZnO-Quantenfilm besitzt MgZnO-Barrieren mit einer Mg-Konzentration von 10% und einem leicht modifizierten Puffer, welcher nun aus MgZnO geringer Mg-Konzentration (ca. 2,5%) besteht. Die Dicke des Quantenfilms an der Untersuchungsstelle beträgt nun 5,5 nm, anstelle von 4 nm. Bei geringen Anregungsdichten und bei einer Proben-temperatur von $T=5\text{ K}$ liegt die Lumineszenz aus dem Quantenfilm bei $E=3,255\text{ eV}$. Diese ist ebenfalls geringer als die des Bulk-Materials und lässt sich abermals mit dem QCSE erklären. Dennoch liegt sie trotz der größeren Dicke des QW und der höheren Barrieren bei höheren Energien als bei der oben genannten Probe. Die Erklärung für die Differenz liegt in einem geringeren QCSE und wird auch durch die Analyse der anregungsdichteabhängigen Lumineszenz bestätigt. Hier zeigt sich, dass der Anstieg der Rotverschiebung mit steigender Anregungsdichte lediglich $\Delta E=19\text{ meV}/\text{Dekade}$ Anregungsdichte beträgt. Aus der absoluten Position und diesem Anstieg lässt sich bereits schlussfolgern, dass die Ausprägung des QCSE im Vergleich reduziert ist und diese unter Berücksichtigung des Probenaufbaus, auf „schlechtere“ Grenzflächen zurückzuführen ist.

Die anfängliche Lebensdauer der Exzitonen im Quantenfilm fällt monoton von $T=5\text{ K}$ bis $T=300\text{ K}$ von $\tau=11\text{ ns}$ bis $\tau=260\text{ ps}$. Die anfänglichen Zerfallszeiten für die Lumineszenz aus dem 1 μm Durchmesser besitzenden Lochkreis fallen ebenfalls mit steigender Temperatur ab. Jedoch ist die Steigung wesentlich geringer. Erwartungsgemäß liegt die anfängliche Zerfallszeit für alle betrachteten Temperaturen unterhalb der anfänglichen Lebensdauer. Dies führt unter Anwendung des theoretischen Modells zu Diffusionskonstanten, die von $T=5\text{ K}$ bis $T=12\text{ K}$ von etwa $D=4\text{ cm}^2/\text{s}$ auf knapp über $D=1\text{ cm}^2/\text{s}$ abfallen. Steigt die Temperatur weiter, so steigt die Diffusivität der Exzitonen bis $T=50\text{ K}$ auf $D=6\text{ cm}^2/\text{s}$ an und fällt mit noch weiter steigender Temperatur wieder ab auf ca. $D=0,8\text{ cm}^2/\text{s}$ bei $T=300\text{ K}$. Hieraus resultieren mit steigender Temperatur abnehmende Diffusionslängen von $\lambda=1,9\text{ }\mu\text{m}$ bei $T=5\text{ K}$ bis $\lambda=150\text{ nm}$ bei $T=300\text{ K}$. Die zugehörige Beweglichkeit als Funktion von der Proben-temperatur zeigt einen Abfall mit zunehmender Temperatur von $\mu=7900\text{ cm}^2/\text{Vs}$ bei $T=5\text{ K}$ bis $\mu=30\text{ cm}^2/\text{Vs}$ bei

$T=300$ K. Die beste Reproduktion des erhaltenen Verlaufes der Beweglichkeit in Abhängigkeit von der Proben temperatur wird erreicht unter der Annahme, dass sowohl Streuungen am akustischen Deformationspotential, als auch die Fröhlichwechselwirkung den Transport der Exzitonen dominant limitieren. Anders als bei der Vergleichsprobe mit ZnO-Quantenfilm zeigt sich hier also keine Grenzflächenstreuung durch ein ausgeprägtes Plateau der Beweglichkeit bei tiefen Temperaturen. Jedoch zeigt der Anstieg der Beweglichkeit um $T=50$ K eine thermische Aktivierung des Transports und erinnert an das Verhalten der exzitonischen Beweglichkeit bei rauen Grenzflächen, wie sie von Hilmer et. al gezeigt wurde ([HIL88]). Eine Erklärung für die bei kleineren Temperaturen höhere Beweglichkeit könnte eine Separation von an den Grenzflächen „gefangenen“ Exzitonen und innerhalb des Films von den Grenzflächen weitestgehend unbeeinflussten Exzitonen liegen. Die höhere Beweglichkeit bei tiefen Temperaturen liefern dabei die innerhalb des Films „liegenden“ Exzitonen, den Beitrag des Anstiegs liefern die grenzflächennahen Exzitonen mit thermischer Aktivierung ihres Transports.

Der Grund für das unterschiedliche Verhalten der beiden untersuchten Quantenfilmproben wurde modellhaft skizziert und lässt sich vornehmlich durch die Größe der sich formierten „Inseln“ gleicher Höhe an den Grenzflächen erklären. Diese Modellvorstellung deckt sich auch mit den Ergebnissen zum QCSE. Je größer die Bereiche gleicher Schichtdicke des Quantenfilms, desto weniger werden Polarisationsfelder im Grenzgebiet abgeschirmt und desto größer ist der Einfluss des QCSE. Gleichmaßen erreichen diese „Inseln“ damit Ausdehnungen, die im Bereich \geq des Exzitonbohradius liegen, so dass diese an den Potentialstufen der Inselgrenzen streuen, sich innerhalb dieser Inseln jedoch bezüglich der Grenzfläche ungehindert bewegen können.

Literaturverzeichnis

[ADA104] S. Adachi

Handbook on Physical Properties of Semiconductors, Vol. 3 II-VI Compound Semiconductors, Kluwer, USA (2004)

[ADA204] S. Adachi

Handbook on Physical Properties of Semiconductors, Vol. 2 III-V Compound Semiconductors, Kluwer, USA (2004)

[ANA08] Anatol Lochmann

Persönliche Korrespondenz, Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Berlin, Berlin (2008)

[ASH00] A. B. M. Ashrafi, A. Ueta, A. Avramescu, H. Kumano, I. Suemune, Y.-W. Ok, and T.-Y. Seong

Growth and characterization of hypothetical zinc-blende ZnO films on GaAs(001) substrates with ZnS buffer layers, Appl. Phys. Lett. **76**, 550 (2000)

[AUR94] D. Araújo, G. Oelgart, J.-D. Genière, F.K. Reinhart

Comparison of the lateral carrier transport between a GaAs single quantum well and the AlGaAs barrier during cathodoluminescence excitation, J. Appl. Phys. **76**, 342 (1994)

[BAC92] G. Bacher, J. Kovac, K. Streubel, H. Schweizer, and F. Scholz

Exciton dynamics for extended monolayer islands in thin $In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP$ quantum wells, Phys. Rev. B **45**, 9136 (1992)

[BAJ01] K. K. Bajaj

Use of excitons in materials characterization of semiconductor system, Mat. Sci. and Eng. R **34**, 59 (2001)

[BAL80] M. Balkanski, T.S. Moss

Handbook of Semiconductors, Vol. 2, North-Holland Publ., Amsterdam (1980)

[BAS10] B. Bastek, O. August, T. Hempel, J. Christen, M. Wieneke, J. Bläsing, A. Dadgar, A. Krost, U. Wendt

Direct microscopic correlation of crystal orientation and luminescence in spontaneously formed nonpolar and semipolar GaN growth domains, Appl. Phys. Lett **96**, 172102 (2010)

[BAS12] B. Bastek

Untersuchung der mikroskopisch optischen Eigenschaften von strukturellen Defekten in GaN-Epitaxie-Schichten mittels Tieftemperatur Kathodolumineszenzmikroskopie im Rasterelektronen- und Transmissionselektronenmikroskop, Dissertation, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg (2012)

- [BAS97] P.K. Basu, H. Kamimura, R.J. Nicholas, R.H. Williams
Theory of optical Processes in Semiconductors - Bulk and Microstructures, Oxford University Press (1997)
- [BAT53] H. Bateman, A. Erdelyi
Higher Transcendental Functions Vol. 2, McGraw-Hill. Book Company, inc. (1953)
- [BEL04] A. Bell, S. Srinivasan, C. Plumlee, H. Omiya, F. A. Ponce, C. Christen, S. Tanaka, A. Fujioka, Y. Nakagawa
Exciton freeze-out and thermally activated relaxation at local potential fluctuations in thick $Al_xGa_{1-x}N$ layers, J. Appl. Phys. **95**, 4670 (2004)
- [BER05] S. Blügel, M. Giesen, B. Hillebrands, H. Hillmer, H. Ibach, R. Kassing Hilbert v. Löhneysen, P. Luger, J. Salbeck, U. Scherz, W. Schilling, L. K. Thomas, P. Fumagalli
Bergmann · Schäfer - Lehrbuch der Experimentalphysik, Band 6 Festkörper Walter de Gruyter, Berlin, New York (2005)
- [BER06] F. Bertram, J. Christen
Persönliche Korrespondenz mit Dr. F. Bertram (2006)
- [BER97] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt
Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides, Phys. Rev. B **56**, R10024(R) (1997)
- [BER99] F. Bertram
Kathodolumineszenz-Mikroskopie an komplexen lokal-selektiven Epitaxie- und lateraler überwachsenen GaN-Strukturen, Dissertation, Universität Magdeburg, <http://dnb.info/957794525> (1999)
- [BOE102] K. W. Böer
Survey of Semiconductor Physics - Vol.I: Electrons and Other Particles in Semiconductors, Wiley-Interscience Publication John Wiley & Sons, Inc. (2002)
- [BOE202] K.W. Böer
Survey of Semiconductor Physics - Vol.II: Electronic Transport in Semiconductors, Wiley-Interscience Publication Hohn Jiley & Sons, Inc. (2002)
- [BOS24] S. Bose
Plancks Gesetz und Lichtquantenhypothese, Zeitschrift für Physik **26**, 178 (1924)
- [BOG97] P. Boguslawski, J. Bernholc,
Doping properties of C, Si, and Ge impurities in GaN and AlN, Phys. Rev. B **56**, 9496 (1997)
- [BRA10] M. Brandt, M. Lange, M. Stölzel, A. Müller, G. Benndorf, J. Zippel, J. Lenzner, M. Lorenz, M. Grundmann
Control of interface abruptness of polar MgZnO/ZnO quantum wells grown by pulsed laser deposition, Appl. Phys. Lett. **97**, 052101 (2010)

- [CHR90] C. Christen, D. Bimberg
Line shapes of intersubband and excitonic recombination in quantum wells: Influence of final-state interaction, statistical broadening, and momentum conservation, Phys. Rev. B **42**, 7213 (1990)
- [CHR91] J. Christen, M. Grundmann, D. Bimberg
Scanning cathodoluminescence microscopy: A unique approach to atomic scale characterization of heterointerfaces and imaging of semiconductor inhomogeneities, J. Vac. Sci. Technol. B **9**, 2358 (1991)
- [DAR07] V. Darakchieva, T. Paskova, M. Schubert, H. Arwin, P. P. Paskov, B. Monemar, D. Hommel, M. Heuken, J. Off, F. Scholz, B. A. Haskell, P. T. Fini, J. S. Speck, S. Nakamura
Anisotropic strain and phonon deformation potentials in GaN, Phys. Rev. B **75**, 195217 (2007)
- [DAV98] V. Yu. Davydov, Yu. E. Kitaev, I.N. Goncharuk, A. N. Smirnov, J. Graul, O. Semchinova, D. Uffmann, M. B. Smirnov, A. P. Mirgorodsky, and R. A. Evarestov
Phonon dispersion and Raman scattering in hexagonal GaN and AlN, Phys. Rev. B **58**, 12899 (1998)
- [DES98] S. Desgreniers
High-density phases of ZnO: Structural and compressive parameters, Phys. Rev. B **58**, 14102 (1998)
- [DUN97] H. Mohr, D.J. Dunstan
Electron-beam-generated carrier distributions in semiconductor multilayer structures, Journal of Microscopy **187**, 119 (1997)
- [EIN05] A. Einstein
Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen, Annalen der Physik **17**, 549 (1905)
- [EIN25] A. Einstein
Quantentheorie des einatomigen idealen Gases, Sitzungsber. K. Preuss. Akad. Wiss., Sitzungsber. phys.-math. Kl. 1925 (1925)
- [FAN05] F. Zhiyong, J. G. Lu
Zinc Oxide Nanostructures: Synthesis and Properties, J. Nanosci. Nanotechnol. **10**, 1561 (2005)
- [FER00] D. K. Ferry,
Semiconductor Transport, Taylor and Francis Group (2000)
- [FIT94] E.A. Fitzgerald, H.J. Gossmann, F.C. Unterwald, H.S. Luftman, D. Monroe
Electron-beam induced current determination of shallow junction depth, J. Vac. Sci. Technol. B **12**, 357 (1994)
- [FRE10] H. Frenzel
ZnO-based metal-semiconductor field-effect transistors, Der andere Verlag (2010)

- [GÄR06] A.O. Gärtner
Dynamik von Exzitonen in elektrostatisch definierten Potentiallandschaften, Dissertation
- Ludwig-Maximilians-Universität München (2006)
- [GIL95] B. Gil, O. Briot, R.-L. Aulombard
Valence-band physics and the optical properties of GaN epilayers grown onto sapphire with wurtzite symmetry, Phys. Rev. B. **52**, R17028(R) (1995)
- [GOL88] A. Gold
Scattering time and single-particle relaxation time in a disordered two-dimensional electron gas, Phys. Rev. B **38**, 10798 (1988)
- [GRE02] A.P. Greef, H.C. Swart
Modelling the effect of a thin ZnO layer on the cathodoluminescence generated in ZnS phosphor powders, Thin Solid Films **408**, 260 (2002)
- [GRU06] M. Grundmann
The Physics of Semiconductors - An Introduction Including Devices and Nanophysics, Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2006)
- [HIL89] H. Hilmer
Ambipolarer Ladungsträger-Transport in Halbleiter-Heterostrukturen, Dissertation - Universität Stuttgart (1989)
- [HIL90] H. Hillmer, A. Forchel, R. Sauer, C.W. Tu
Interface-roughness-controlled exciton mobilities in GaAs/Al_{0,37}Ga_{0,63}As quantum wells, Phys. Rev. B **42**, 3220(R) (1990)
- [HIL88] H. Hillmer, S. Hansmann, A. Forchel, M. Morohashi, E. Lopez, H.P. Meier, K. Ploog
Two-dimensional exciton transport in GaAs/GaAlAs quantum wells, Appl. Phys. Lett. **53**, 1937 (1988)
- [HUA03] Hui Zhao, H. Kalt
Energy-dependent Huang-Rhys factor of free excitons, Phys. Rev. B **68**, 125309 (2003)
- [HUT59] A. R. Hutson
Electronic Properties of ZnO, J. Phys. and Chem. of Solids Vol. **8**, 467 (1959)
- [IBA03] H. Ibach, H. Lüth,
Solid-State Physics - An Introduction to Principles of Materials Science, Springer (2003)
- [JAH96] U. Jahn, S.H. Kwok, M. Ramsteiner, R. Hey, H.T. Grahn, E. Runge
Exciton localization, photoluminescence spectra, and interface roughness in thin quantum wells, Phys. Rev. B **54**, 2733 (1996)
- [JEO12] H. Jeong, K. Min, S. Byun, C.J. Stanton, D.H. Reitze, J.K. Yoo, G.C. Yi, Y.D. Jho
Excitonic diffusion dynamics in ZnO, Appl. Phys. Lett. **100**, 092106 (2012)
- [KAN72] K. Kanaya, S. Okayama
Penetration and energy-loss theory of electrons in solid targets, J. Phys. D: App. Phys. **5**, 43 (1972)

- [KLI95] C. F. Klingshirn
Semiconductor Optics, Springer (1995)
- [KLU94] H. Klug, L. Alexander,
X-Ray Diffraction Procedures: For Polycrystalline and Amorphous Materials, Edition 2,
John Wiley & Sons, New York (1974)
- [KOI03] T. Koida, S. F. Chichibu, A. Uedono, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, T. Sota, Y. Segawa,
H. Koinuma
Correlation between the photoluminescence lifetime and defect density in bulk and epitaxial ZnO, Appl. Phys. Lett. **82**, 532 (2003)
- [KOP92] K. Kopitzki
Einführung in die Festkörperphysik, Teubner Studienbücher Physik, Bonn (1992)
- [KRO05] A. Krost
Metallorganische Gasphasenepitaxie von ZnO: Auf dem Weg zur p-Leitung FVS (Forschungsverbund Sonnenenergie), TCO für Dünnschichtszellensolarzellen und andere Anwendungen III, Freyburg / Unstrut (2005)
- [LAN99] R. Blachnik, J. Chu, R.R. Galazka, J. Geurts, J. Gutowski, B. Hönerlage, D. Hofmann,
J. Kossut, R. Levy, P. Michler, U. Neukirch, T. Story, D. Strauch, A. Waag
Landolt-Börnstein: Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology - New Series / Condensed Matter, Springer, Berlin Heidelberg (1999)
- [LEE93] R.B. Lee, K.J. Vahala, C.-E. Zah, R. Bhat
Direct determination of the ambipolar diffusion length in strained $In_xGa_{1-x}As/Inp$ quantum wells by cathodoluminescence, Appl. Phys. Lett. **62**, 2411 (1993)
- [LOO99] D.C. Look, D.C. Reynolds, Z.-Q. Fang, J.W. Hemsky, J.R. Sizelove, R.L. Jones
Point defect characterization of GaN and ZnO, Materials Science and Engineering **B66**, 30 (1999)
- [MEY04] , B. K. Meyer, H. Alves, D. M. Hofmann, W. Kriegsels, D. Forster, B. Bertram, J. Christen, A. Hoffmann, M. Straßburg, M. Dworzak, U. Haboeck, and A. V. Rodina
Bound exciton and donor-acceptor pair recombinations in ZnO, Phys. stat. sol. (b) **241**, 227 (2004)
- [MEY53] H. J. G. Meijer, D. Polder
Note on polar scattering of conduction electrons in regular crystals, Physica (Amsterdam) **19**, 255 (1953)
- [MOL93] R.J. Molnar, T. Lei and T.D. Moustakas
Electron Transport Mechanism in Gallium Nitride, Appl. Phys. Lett. **62**, 72 (1993)
- [MOR08] H. Morkoc
Handbook of Nitride Semiconductors and Devices, Volume 2, Electronic and Optical Processes in Nitrides, Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim (2009)

- [MOR09] H. Morkoc, Ü. Özgür
Zinc Oxide - Fundamentals, Materials and Device Technology, Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim (2009)
- [NAG84] B. R. Nag
Semiconductors Probed by Ultrafast Laser Spectroscopy - Vol. 1 Academic Press, New York (1984)
- [NGM94] Y. Nagamune, H. Watabe, F. Sogawa, Y. Arakawa
One-dimensional exciton diffusion in GaAs quantum wires, Appl. Phys. Lett. **67**, 1535 (1995)
- [NOL12] M. Noltemeyer, F. Bertram, T. Hempel, B. Bastek, A. Polyakov, J. Christen, M. Brandt, M. Lorenz, M. Grundmann
Excitonic Transport in ZnO, Journal of Materials Research **27**, 2225 (2012)
- [OBH93] D. Oberhauser, K.-H. Pantke, J.M. Hvam, G. Weimann, C. Klinghirn
Exciton scattering in quantum wells at low temperatures, Phys. Rev. B **47**, 6827(R) (1993)
- [OEZ05] Ü. Özgür, Ya. I. Alivov, C. Liu, A. Teke, M. A. Reshnikov, S. Dogan, V. Avrutin, S.-J. Cho, and H. Morkoc
A comprehensive review on ZnO materials and devices, J. Appl. Phys. **98**, 041301 (2005)
- [PFE89] L. Pfeiffer, K. W. West, H. L. Stormer, and K. W. Baldwin
Electron mobilities exceeding 10^7 cm²/Vs in modulation-doped GaAs, Appl. Phys. Lett. **55**, 1888 (1989)
- [PIE97] C. Piermarocchi, F. Tassone, V. Savona, A. Quattropani, P. Schwendimann
Exciton formation rates in GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells, Phys. Rev. B **55**, 1333 (1997)
- [POL121] A.N. Polyakov, M. Noltemeyer, T. Hempel, J. Christen, M.A. Stepovic
Experimental Cathodoluminescence Studies of Exciton Transport in Gallium Nitride, Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics **76**, 970 (2012)
- [POL122] A.N. Polyakov, M. Noltemeyer, T. Hempel, J. Christen, M.A. Stepovic
Two-Dimensional Diffusion and Cathodoluminescence of Excitons Generated by an Electron Beam in a Semiconductor Material: Results of Mathematical Modeling, Journal of Surface Investigation **6**, 901 (2012)
- [RAM98] P. Ramvall, S. Tanaka, S. Nomura, P. Riblet, Y. Aoyagi
Observation of confinement-dependent exciton binding energy of GaN quantum dots, Appl. Phys. Lett. **73**, 1104 (1998)
- [REY99] , D. C. Reynolds, D. C. Look, B. Jogai, C. W. Litton, G. Cantwell, and W. C. Harsch
Valence-band ordering in ZnO, Phys. Rev. B. **60**, 2340 (1999)
- [SAK87] H. Sakaki, T. Noda, K. Hirakawa, M. Tanaka, and T. Matsusue
Interface roughness scattering in GaAs/AlAs quantum wells, Appl. Phys. Lett. **51**, 1934 (1987)

- [SCH07] M. Schirra, A. Reiser, G.M. Prinz, A. Ladenburger, K. Thonke, R. Sauer
Cathodoluminescence study of single zinc oxide nanopillars with high spatial and spectral resolution, J. Appl. Phys. **101**, 113509 (2007)
- [SEE83] G. Seeger
Semiconductor Physics, Springer, New York (1973)
- [SHO49] J. Haynes, W. Shockley
Investigation of Hole Injection in Transistor Action, Phys. Rev. **75**, 691 (1949)
- [SHO51] W. Shockley, J.R. Haynes
The Mobility and Life of Injected Holes and Electrons in Germanium, Phys. Rev. **81**, 835 (1951)
- [SIN03] J. Singh
Electronic and Optoelectronic Properties of Semiconductor Structures, Cambridge University Press (2003)
- [STA91] C. R. Stanley, M. C. Holland, A. H. Kean, M. B. Stanaway, R. T. Grimes, and J. M. Chamberlain
Electrical characterization of molecular beam epitaxial GaAs with peak electron mobilities up to $\cong 4 \times 10^5 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$, Appl. Phys. Lett. **58**, 478 (1991)
- [TIK90] A. N. Tikhonov, A. A. Samarskii
Equations of Mathematical Physics, Dover Publ., New York (1990)
- [TOL76] G. Tolstov
Fourier Series, Dover Publications (1976)
- [VAR67] Y. P. Varshni
Temperature Dependence of the Energy Gap in Semiconductors, Physica **34**, 149 (1967)
- [WAG05] M. Wagner
Optical Spectroscopy of Defects and Impurities in ZnO, Diploma Thesis (2005)
- [WAN37] G. Wannier
The structure of electronic excitation levels in insulating crystals, Phys. Rev. **52**, 191 (1937)
- [WAS09] T. A. Wasser, B. Laumer, S. Maier, A. Laufer, B. K. Meyer, M. Stutzmann, M. Eickhoff
Optical properties and structural characteristics of ZnMgO grown by plasma assisted molecular beam epitaxy, J. Appl. Phys. **105**, 023505 (2009)
- [WOL12] *Hankel Transform*
<http://mathworld.wolfram.com/HankelTransform.html> (26.09.2012)
- [WOO08] C. Wood, D. Jena
Polarization Effects in Semiconductors, Springer, New York (2008)

- [YAC86] B.G. Yacobi, D.B. Holt
Cathodoluminescence scanning electron microscopy of semiconductors, J. Appl. Phys. **59**, R1 (1986)
- [ZAR89] H.A. Zarem, P.C. Sercel, J.A. Lebens, L.E. Eng, A. Yrivy, K.J. Vahala
Direct Determination of the Ambipolar Diffusion Length in GaAs/AlGaAs Heterostructures by Cathodoluminescence, Appl. Phys. Lett. **55**, 1647 (1989)

Eigenständigkeitserklärung

Dipl. Phys. Martin Noltemeyer
Olvenstedter Straße 65
39108 Magdeburg

Hiermit erkläre ich, dass ich die von mir eingereichte Dissertation zu dem Thema

**Hoch orts-/zeitaufgelöste optische Untersuchungen zum exzitonischen Transport
in GaN und ZnO**

selbstständig verfasst, nicht schon als Dissertation verwendet habe und die benutzten Hilfsmittel und Quellen vollständig angegeben wurden.

Weiterhin erkläre ich, dass ich weder diese noch eine andere Arbeit zur Erlangung des akademischen Grades doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.) an anderen Einrichtungen eingereicht habe.

Dipl.-Phys. Martin Noltemeyer

Magdeburg, 16.12.2015